



HAL
open science

Analyse radiative des photobioréacteurs

Jérémi Dauchet

► **To cite this version:**

Jérémi Dauchet. Analyse radiative des photobioréacteurs. Autre. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2012. Français. NNT : 2012CLF22304 . tel-00914315

HAL Id: tel-00914315

<https://theses.hal.science/tel-00914315v1>

Submitted on 5 Dec 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE BLAISE PASCAL - CLERMONT II
ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES POUR L'INGÉNIEUR

Thèse

présentée par

Jérémi DAUCHET

pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITÉ

Spécialité : Génie des procédés

Analyse radiative des photobioréacteurs

Soutenue publiquement le 7 Décembre 2012 devant le jury :

Rapporteur :	M. Laurent PILON	Professeur, Univ. of California, Los Angeles
Rapporteur :	M. Rodolphe VAILLON	Directeur de recherche, CNRS - CETHIL, Lyon
Directeur de thèse :	M. Jean-François CORNET	Professeur, ENSCCF, Clermont-Ferrand
Directeur de thèse :	M. Richard FOURNIER	Professeur, Univ. Paul Sabatier, Toulouse
Examineur :	M. Jean-Louis DUFRESNE	Directeur de recherche, CNRS - LMD, Paris
Examineur :	M. Claude-Gilles DUSSAP	Professeur, Polytech Clermont-Ferrand
Examineur :	M. Gilles FLAMANT	Directeur de recherche, CNRS - PROMES, Odeillo
Examineur :	M. Jérémy PRUVOST	Professeur, Univ. de Nantes, Saint-Nazaire

Année 2012

ANALYSE RADIATIVE DES PHOTOBIORÉACTEURS

Jérémi Dauchet ^{a,b}

sous l'encadrement de :

Stéphane Blanco ^b, Jean-François Cornet ^a, Mouna El Hafi ^c
et Richard Fournier ^b

^a Institut Pascal, Axe Génie des Procédés, Energétique et Biosystèmes (GePEB), UMR 6602, BP 10448, F-63000 Clermont-Ferrand.

^b Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (LAPLACE), UMR 5213, Bât. 3R1, 118 route de Narbonne, F-31062 Toulouse cedex 9.

^c Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, Campus Jarlard, Centre de Recherche d'Albi en génie des Procédés des Solides Divisés, de l'Energie et de l'Environnement (RAPSODEE), UMR 5302, F-81013 Albi CT cedex 09, France.

Je remercie très chaleureusement toutes les personnes qui ont permis à ce travail d'exister, et toutes celles qui ont fait de ces trois années une belle aventure scientifique et humaine.

RÉSUMÉ : L'ingénierie de la photosynthèse est une voie prometteuse en vue de produire à la fois des vecteurs énergétiques et des molécules plateformes pour palier la raréfaction des ressources fossiles. Le défi à relever est de taille car il faut réussir à mettre au point des procédés solaires de production de biomasse à constante de temps courte (quelques jours), là où une centaine de millions d'années a été nécessaire à la formation du pétrole. Cet objectif pourrait être atteint en cultivant des micro-organismes photosynthétiques dans des photobioréacteurs dont les performances cinétiques en surface et en volume seraient optimales. Une telle optimisation nécessite avant tout une analyse fine des transferts radiatifs au sein du procédé. L'analyse radiative des photobioréacteurs qui est ici proposée s'ouvre sur la détermination des propriétés d'absorption et de diffusion des suspensions de micro-organismes photosynthétiques, à partir de leurs caractéristiques morphologiques, métaboliques et structurales. Une chaîne de modélisation est construite, mise en œuvre et validée expérimentalement pour des micro-organismes de formes simples ; à terme, la démarche développée pourra directement être étendue à des formes plus complexes. Puis, l'analyse du transfert radiatif en diffusion multiple est introduite et illustrée par différentes approximations qui apparaissent pertinentes pour une conceptualisation des photobioréacteurs, menant ainsi à la construction d'un intuitif nécessaire à leur optimisation. Enfin, la méthode de Monte Carlo est mise en œuvre afin de résoudre rigoureusement la diffusion multiple en géométries complexes (géométries qui découlent d'une conception optimisée du procédé) et afin de calculer les performances cinétiques à l'échelle du photobioréacteur. Ce dernier calcul utilise une avancée méthodologique qui permet de traiter facilement le couplage non-linéaire du transfert radiatif à la cinétique locale de la photosynthèse (et qui laisse entrevoir de nombreuses autres applications dans d'autres domaines de la physique du transport). Ces outils de simulation mettent à profit les développements les plus récents autour de la méthode de Monte Carlo, tant sur le plan informatique (grâce à une implémentation dans l'environnement de développement EDStar) que sur le plan algorithmique : formulation intégrale, algorithmes à zéro-variance, calcul de sensibilités (le calcul des sensibilités aux paramètres géométriques est ici abordé d'une manière originale qui permet de simplifier significativement sa mise en œuvre, pour un ensemble de configurations académiques testées). Les perspectives de ce travail seront d'utiliser les outils d'analyse développés durant cette thèse afin d'alimenter une réflexion sur l'intensification des photobioréacteurs, et d'étendre la démarche proposée à l'étude des systèmes photoréactifs dans leur ensemble.

MOTS CLÉS : photobioréacteurs, micro-organismes photosynthétiques, propriétés radiatives, transfert radiatif, diffusion multiple, géométrie complexe, méthode de Monte Carlo, analyse de sensibilité, couplage cinétique.

RADIATIVE ANALYSIS OF PHOTOBIOREACTORS

ABSTRACT : Photosynthesis engineering is a promising mean to produce both energy carriers and fine chemicals in order to remedy the growing scarcity of fossil fuels. This is a challenging task since it implies to design process for solar biomass production associated with short time constant (few days), while oil formation took hundred million of years. This aim could be achieved by cultivating photosynthetic microorganisms in photobioreactors with optimal surface and volume kinetic performances. Above all, such an optimization necessitate a careful radiative study of the process. A radiative analysis of photobioreactors is here proposed that starts with the determination of the absorption and scattering properties of photosynthetic microorganisms suspensions, from the knowledge their morphological, metabolic and structural features. A model is constructed, implemented and validated for microorganisms with simple shapes ; the extension of this approach for the treatment of complex shapes will eventually be straightforward. Then, multiple scattering radiative transfer analysis is introduced and illustrated through different approximations that are relevant for the conceptualization of photobioreactors, leading to the construction of physical pictures that are necessary for the optimization of the process. Finally, the Monte Carlo method is implemented in order to rigorously solve multiple scattering in complex geometries (geometries that correspond to an optimized design of the process) and in order to calculate the kinetic performances of the reactor. In this trend, we develop a novel methodological development that simplifies the treatment of the non-linear coupling between radiative transfer and the local kinetic of photosynthesis. These simulation tools also benefit from the most recent developments in the field of the Monte Carlo method : integral formulation, zero-variance algorithms, sensitivity evaluation (a specific approach for the evaluation of sensitivities to geometrical parameters is here developed and shown to correspond to a simple implementation in the case of a set of academic configurations that are tested). Perspectives of this work will be to take advantage of the developed analysis tools in order to stimulate the reflexion regarding photobioreactor intensification, and to extend the proposed approach to the study of photoreactive systems engineering in general.

KEY WORDS : photobioreactors, photosynthetic microorganisms, radiative properties, radiative transfer, multiple scattering, complex geometry, Monte Carlo method, sensitivity analysis, kinetic coupling.

Table des matières

1	Introduction	1
1.1	Contexte et organisation du manuscrit	1
1.2	Illustration des concepts radiatifs utilisés pour l'optimisation des photobioréacteurs	6
1.2.1	Conversion de l'énergie rayonnante par les micro-organismes photosynthétiques : loi de couplage cinétique	7
1.2.2	Interaction des micro-organismes avec le rayonnement visible : premier modèle d'absorption	16
1.2.3	Présentation d'un dispositif expérimental privilégié pour l'analyse des photobioréacteurs	19
1.2.4	Transferts radiatifs dans les photobioréacteurs : une première analyse en l'absence de diffusion	19
1.2.5	Couplage du transfert radiatif à la cinétique locale de la photosynthèse	24
1.2.6	Productivité moyenne d'un photobioréacteur	26
2	Détermination prédictive des propriétés radiatives des micro-organismes photosynthétiques	35
2.1	Problématique	35
2.1.1	Attentes, état de l'art et résumé de la démarche	35
2.1.2	Bases du formalisme de l'électromagnétisme utilisé dans ce manuscrit	44
2.1.3	Micro-organismes photosynthétiques	51
2.2	Modèle et mise en œuvre pratique	54
2.2.1	Modèle	54

2.2.2	Détermination des paramètres d'entrée du modèle	67
2.2.3	Méthodes numériques	72
2.3	Résultats	74
2.4	Validation sur des mesures de transmittivités hémisphériques en diffusion multiple	79
2.4.1	Analyse des transmittivités hémisphériques mesurées en sphère d'intégration	79
2.4.2	Comparaison entre modèle et expérience	79
2.4.3	Analyse du point d'ancrage par inversion	83
2.5	Contributions et perspectives	84
3	Diffusion de la lumière par des particules de faible contraste d'indice	89
3.1	Formulation intégrale du problème de la diffusion	90
3.2	Particules petites devant la longueur d'onde	95
3.2.1	Approximation de Born en mécanique quantique	95
3.2.2	Approximation de Rayleigh-Gans	98
3.3	Particules grandes devant la longueur d'onde	102
3.3.1	Approximation de Schiff en mécanique quantique	103
3.3.2	Approximation de la diffraction anormale	114
3.3.3	Approximation de Schiff pour l'étude des ondes électromagnétiques	117
3.4	Mise en œuvre pratique de l'approximation de Schiff	121
3.4.1	Résolution numérique par méthode de Monte Carlo	121
3.4.2	Tendance de la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles	127
3.4.3	Validation du modèle de propriétés radiatives présenté au chapitre 2 sur quelques cas tests	128
3.5	Synthèse et perspectives	132
4	Analyse du transfert en diffusion multiple dans les photobioréacteurs	135
4.1	Introduction	136

4.2	Equation de transfert radiatif	138
4.2.1	Description mésoscopique	138
4.2.2	Forme locale (ou différentielle) de l'équation de transfert radiatif . . .	146
4.2.3	Construction de la forme intégrale de l'équation de transfert radiatif à partir de la statistique du transport corpusculaire.	151
4.3	Epaisseurs optiques et invariance d'échelle du transport	164
4.4	Approximation de la diffusion simple	169
4.4.1	Développement en ordres de diffusion.	169
4.4.2	Mise en œuvre de l'approximation de la diffusion simple dans le photobioréacteur torique	171
4.5	Approximation macroscopique P1	178
4.5.1	Dérivation de l'équation de diffusion à partir de l'équation de transfert radiatif	178
4.5.2	Conditions aux limites	183
4.5.3	Mise en oeuvre dans le photobioréacteur torique	188
4.6	Approximation à 2-Flux	196
4.7	Etude de l'influence de la modélisation de la diffusion multiple sur la productivité du photobioréacteur torique	198
4.8	Conclusion	202
5	Mise en œuvre de la méthode de Monte Carlo pour l'étude des photobioréacteurs	203
5.1	Principe de base de la méthode de Monte Carlo dans le contexte du transfert radiatif	204
5.2	Configuration radiative utilisée pour la modélisation du photobioréacteur DiCoFluv	207
5.3	Présentation d'un algorithme de Monte Carlo pour l'évaluation du champ de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons au sein du photobioréacteur DiCoFluV	210
5.4	Mise en œuvre pratique au sein de l'environnement de développement EDStar	215

5.5	Calcul de sensibilité et guidage de l'échantillonnage par importance grâce à l'approximation P1, ou à l'approximation de la diffusion simple : utilisation du concept de zéro-variance.	220
6	Intégration volumique d'une loi de couplage non-linéaire pour le calcul de la productivité d'un photobioréacteur par la méthode de Monte Carlo	233
6.1	Problématique	234
6.2	Formalisation	235
6.3	Principe de la reformulation intégrale proposée	238
6.4	Mise en œuvre pour la loi de couplage de <i>Chlamydomonas reinhardtii</i>	243
6.4.1	Estimation de la productivité du réacteur	243
6.4.2	Analyse de sensibilité	248
6.5	Résultats dans le photobioréacteur DiCoFluV	251
7	Modèles de sensibilité aux paramètres géométriques et résolution par la méthode de Monte Carlo	261
7.1	Problématique du calcul de sensibilité à la déformation du domaine par la méthode de Monte Carlo et organisation du chapitre	262
7.2	Principe de la méthode proposée	267
7.3	Dérivation des conditions aux limites pour une paroi plane non-émettrice soumise à une translation colinéaire à sa normale	274
7.3.1	Parois non-réfléchissantes : couplage avec le modèle de la luminance .	274
7.3.2	Parois réfléchissantes : couplage avec le modèle du gradient spatial . .	280
7.4	Résolution des modèles de sensibilité géométriques par la méthode de Monte Carlo	290
7.4.1	Configuration 1 : couplage avec le modèle de la luminance dans le cadre de la déformation d'une paroi non-réfléchissante	291
7.4.2	Configuration 2 : couplage avec le modèle de la luminance dans le cadre de la déformation d'une paroi réfléchissante	298
7.4.3	Configuration 3 : couplage avec le modèle du gradient spatial de luminance dans le cadre de la déformation d'une paroi réfléchissante . . .	306
7.5	Résumé et perspectives pour l'étude des photobioréacteurs	312

Conclusion	317
Bibliographie	321
Nomenclature	333
A Limite du régime de la diffusion indépendante	337
B Identification des paramètres de la loi de couplage cinétique de <i>Chlamydomonas reinhardtii</i> utilisée	343
C Longueurs d'extrapolation pour l'écriture des conditions aux limites de l'approximation P1 dans la situation académique d'un système conservatif	349
D Simplification de la géométrie du photobioréacteur DiCoFluV et mise en œuvre des approximations P1 et de la diffusion simple	357
E Calcul de sensibilités aux paramètres géométriques : première extension de la méthodologie présentée au chapitre 7, document de travail écrit en commun avec Olivier Farges	365

Chapitre 1

Introduction

1.1 Contexte et organisation du manuscrit

La thèse défendue dans ce mémoire s'inscrit dans la continuité d'un travail de fond mené par Jean-François Cornet, au sein de l'axe GePEB (Génie des Procédés, Energétique et Biosystèmes) de l'Institut Pascal, sur la modélisation des photobioréacteurs et plus largement des systèmes photoréactifs. L'ensemble de ses travaux est synthétisé dans une Habilitation à Diriger des Recherches [1] ainsi que dans plusieurs publications scientifiques, dont [2, 3, 4, 5, 6, 7]. Chacune des questions radiatives soulevées par l'étude du procédé y est traitée, en détail, depuis les fondements théoriques jusqu'à la mise en œuvre : propriétés radiatives, équation de transfert radiatif et résolution numérique par la méthode des Ordonnées Discrètes (DOM), utilisation de modèles approchés pour des besoins d'analyse ou de couplage, utilisation notamment de l'approximation à 2-Flux, etc. Ce travail a non seulement abouti à la construction de modèles robustes validés expérimentalement, mais a aussi constitué une base solide pour initier une interaction riche avec la communauté radiative, et plus particulièrement avec des chercheurs spécialistes de la méthode de Monte Carlo et de l'analyse du transfert en diffusion multiple. Cette interaction s'est bâtie sur une réciprocité des attentes : la communauté du génie des procédés d'une part bénéficiant des développements méthodologiques les plus récents en rayonnement tout en permettant, d'autre part, à la communauté radiative d'explorer les résonances que peuvent avoir les questions posées par le procédé. De cette rencontre entre deux communautés est née la présente thèse en rayonnement, qui s'est déroulée au contact de l'objet d'étude, et qui a été co-encadrée par Jean-François Cornet de l'Institut Pascal (Clermont-Ferrand, UMR 6602), Richard Fournier et Stéphane Blanco du laboratoire LAPLACE (Toulouse, UMR 5213) et Mouna El Hafi du laboratoire RAPSODEE (Albi, UMR 5302).

Il est rapidement apparu que si l'enjeu de la modélisation des transferts radiatifs dans les photobioréacteurs devait avant tout permettre à la communauté du génie des procédés de s'approprier et de mettre en œuvre des savoir-faire méthodologiques et interprétatifs bien établis, certaines questions posées par l'étude du procédé correspondaient aussi à des nœuds identifiés dans la littérature du transfert radiatif, nécessitant un travail exploratoire amont. Cette thèse a donc pour but de reprendre chacune de ces questions en tentant de pousser jusqu'à leur terme les pistes de recherche les plus avancées, telles que celles concernant la détermination des propriétés radiatives, et en invoquant autant que possible un savoir-faire méthodologique (notamment autour de la méthode de Monte Carlo) ainsi qu'un regard (images physiques, modèles approchés) issu de la communauté radiative, pour revisiter les champs d'investigation les plus ouverts. Au cours de ce travail une hiérarchie a émergé et certaines questions ont suscité une attention particulière, qui finalement dépasse le cadre de l'application aux photobioréacteurs. La modélisation de l'interaction entre la lumière visible et les particules de faible contraste d'indice, ainsi que le calcul de sensibilités géométriques ou l'intégration de fonctions non-linéaires par la méthode de Monte Carlo occupent une place centrale dans le présent manuscrit. Cependant, à tout instant, même dans les moments les plus techniques ou les plus abstraits de notre recherche, ce sont les procédés photobioréactifs qui ont fixés chacune de nos orientations.

Au sein de ces procédés, la réaction de photosynthèse est mise en œuvre par des organismes vivants : des micro-organismes photosynthétiques en suspension aqueuse. Les organismes photosynthétiques catalysent la réaction de photosynthèse qui, à partir d'énergie lumineuse, convertit le dioxyde de carbone (CO_2) et l'eau en un très grand nombre de molécules complexes (lipides, protéines, sucres, acides nucléiques, etc) constituant la biomasse, avec comme sous-produit intéressant le dioxygène (O_2). Bien que des efforts considérables soient investis dans la recherche de procédés photocatalytiques totalement maîtrisés par l'homme (production d'hydrogène à partir d'énergie solaire et d'eau, photo-conversion du CO_2 en méthanol, etc), la photosynthèse naturelle reste une piste sérieuse pour répondre aux enjeux de société actuels que constituent la réduction des émissions de CO_2 , le stockage de l'énergie solaire (ici sous forme de molécules stables), et la production de vecteurs énergétiques (biocarburants, gazéification de la biomasse, méthane, hydrogène), d'intermédiaires chimiques (en vue d'alternatives à la pétrochimie), ou d'autres molécules à haute valeur ajoutée, le tout au sein de bioraffineries. L'intérêt actuel pour ce processus biochimique est largement suscité par la fin annoncée des ressources fossiles dont l'origine, sur de très longues périodes, est justement la photosynthèse. Mais le défi technologique est énorme car la constante de temps doit cette fois être ramenée à quelques jours, et surtout, les productivités en surfaces de captation solaire doivent atteindre des valeurs élevées, compatibles d'une part avec la con-

currence exercée par les autres technologies solaires et d'autre part avec le besoin croissant de surfaces cultivables pour nourrir l'humanité. Les micro-organismes photosynthétiques sont les meilleurs candidats dans ce contexte exigeant [8, 9, 10], notamment car ils correspondent à des efficacités de conversion de l'énergie lumineuse et à des taux de fixation du CO_2 bien plus élevés que ceux des plantes supérieures [11] lorsqu'ils sont cultivés dans des environnements contrôlés tels que les photobioréacteurs. De plus, la culture en photobioréacteur permet une utilisation optimale des minéraux nécessaires à la croissance des organismes (nitrates, etc), un transfert CO_2/O_2 efficace et une gestion optimale des besoins en eau, ce qui constitue une réduction potentielle de l'impact environnemental et de la compétition avec les cultures nourricières. Cependant, ces avantages annoncés ne pourront être concrétisés qu'au terme d'une réflexion de fond autour de l'optimisation de ces procédés, sans quoi l'utilisation à grande échelle des photobioréacteurs s'expose aux mêmes travers que ceux rencontrés dans les zones où les cultures en plein champ ont été consacrées à la production d'agrocultures, entraînant des crises alimentaires conséquentes. Dans cette optique, des prototypes de photobioréacteurs clos conçus pour approcher l'efficacité maximale de la photosynthèse grâce à un contrôle rigoureux des champs de rayonnement et des apports en nutriments sont actuellement développés, notamment à l'Institut Pascal et au laboratoire GEPEA (Nantes, UMR 6144). Deux technologies différentes illustrent particulièrement bien deux aspects complémentaires de l'optimisation des photobioréacteurs. D'un côté, le prototype AlgoFilm à captation directe en couche mince Fig. 1.1 est conçu pour un fonctionnement à haute concentration en biomasse (c'est-à-dire à haute concentration en micro-organismes) afin d'atteindre des productivités volumiques élevées. De l'autre côté, le prototype DiCoFluV [7] (Dilution Contrôlée du Flux en Volume) à éclairage interne Fig. 1.2 est conçu pour diluer le rayonnement solaire incident dans la suspension de micro-organismes afin d'atteindre de hautes productivités en surface de captation solaire. Ces concepts sont aussi pensés pour assurer une faible consommation énergétique compatible avec une production de bioénergie. Cela passe notamment par une réflexion autour de la gestion du rayonnement infrarouge, un point qui est étudié en collaboration avec le laboratoire PROMES (Odeillo-Perpignan, UPR 8521). Cependant, le coût de ces technologies récentes étant bien plus élevé que celui des photobioréacteurs "classiques" ouverts de type bassin, un saut de performance significatif est nécessaire afin de les rendre compétitifs. La mise en œuvre du concept AlgoFilm a permis d'atteindre des concentrations 100 à 200 fois supérieures à celles classiquement rencontrées dans les photobioréacteurs ouverts et, par ailleurs, il a été montré sur le plan théorique que les concepts de type DiCoFluV permettent d'espérer des productivités surfaciques deux ordres de grandeurs supérieures à la moyenne européenne des cultures en plein champ [7].



FIGURE 1.1: Prototype AlgoFilm à captation directe développé au laboratoire GEPEA dans lequel le volume réactionnel est réduit à une couche mince grâce à un principe de film tombant.

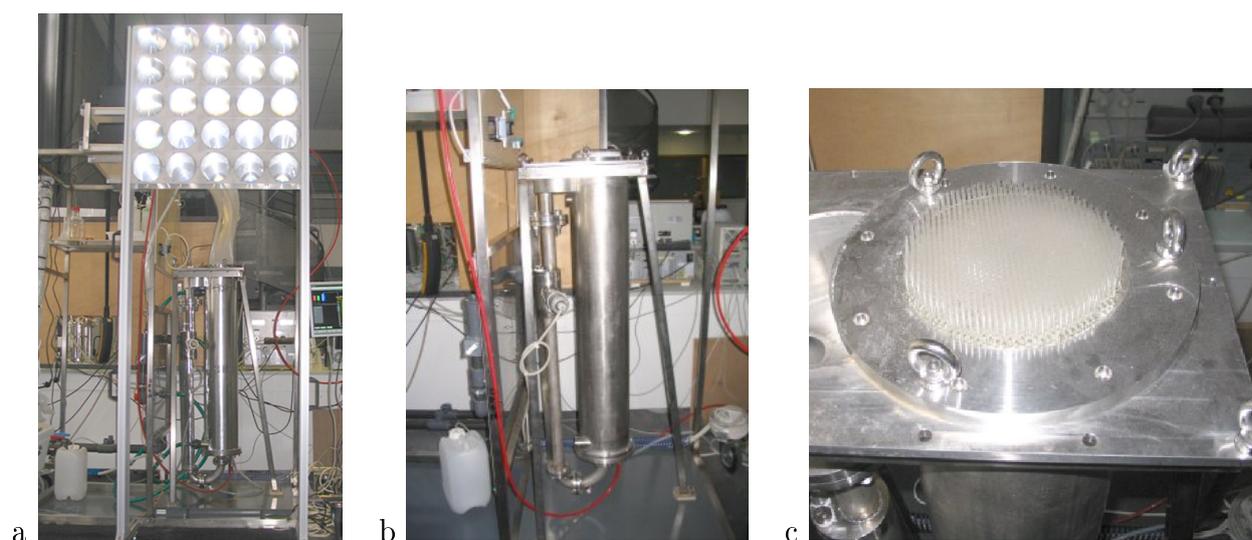


FIGURE 1.2: Prototype DiCoFluV [7] de photobioréacteur à éclairage interne développé à l'Institut Pascal dans lequel le rayonnement solaire incident est capté et concentré grâce à des lentilles de Fresnel (partie supérieure de a, module développé par le laboratoire PROMES) puis dirigé dans le réacteur (partie inférieure de a et b) où il est dilué dans le volume réactionnel grâce à un millier de fibres optiques à éclairage latéral assurant une densité surfacique de flux incidente quasi-homogène sur la totalité de leur surface (l'entrée des fibres dans le réacteur est montrée sur c).

Pour arriver à de telles performances, ces deux prototypes assurent en premier lieu un mélange parfait de la suspension de micro-organismes afin de pouvoir assurer que l'environnement (concentration en nutriments, CO_2 , pH, température, etc) soit homogène et contrôlé à l'optimum de croissance. Les technologies de mélange et le savoir-faire correspondant sont assez matures pour qu'en pratique, il soit relativement trivial d'assurer des conditions non limitantes à ce niveau. Un apport optimum en énergie lumineuse est conceptuellement beaucoup plus délicat à assurer, et à l'heure actuelle, les performances cinétiques et énergétiques des photobioréacteurs dépendent quasiment uniquement du champ de rayonnement au sein du volume réactionnel [7, 6, 12, 13, 14, 15]. Lors de la conception de tels prototypes, l'enjeu est donc d'assurer une utilisation efficace de l'énergie lumineuse. La présente étude attache une attention particulière au prototype DiCoFluV (Fig. 1.2), dans lequel le rayonnement solaire incident est dilué au sein du volume réactionnel grâce à un millier de fibres optiques à éclairage latéral. Ce concept original permet d'une part un contrôle beaucoup plus fin du champ de rayonnement interne en comparaison avec des concepts à captation directe, et d'autre part, il permet une homogénéisation en volume des puissances rayonnantes disponibles à la photosynthèse, alors qu'un éclairage direct a du mal à pénétrer profondément dans un grand volume (en raison des phénomènes d'absorption et de diffusion par les micro-organismes). Par rapport aux autres concepts de réacteur, la complexité géométrique du dispositif est par contre beaucoup plus élevée, ce qui est en tant que tel une source significative de difficultés théoriques et pratiques.

Ce manuscrit aborde un ensemble de problématiques de modélisation et de mise en œuvre qui sont soulevées par l'analyse radiative de tels procédés. Les chapitres 2 et 3 se concentrent sur l'étude des propriétés de diffusion et d'absorption de la lumière par un micro-organisme photosynthétique isolé. Au chapitre 2, une chaîne méthodologique est proposée qui permet la détermination de ces propriétés à partir des caractéristiques morphologiques, métaboliques et structurales des micro-organismes. Les modèles électromagnétiques utilisés, ainsi que la méthode retenue pour leur mise en œuvre, sont ensuite présentés avec plus de détails au chapitre 3. Le chapitre 4 ouvre alors la discussion sur l'analyse des transferts radiatifs en diffusion multiple au sein des photobioréacteurs. Il se concentre sur l'étude d'un photobioréacteur torique quasi-monodimensionnel simple, afin d'introduire tout d'abord un ensemble d'images physiques permettant d'appréhender le transport de photons dans le milieu réactionnel, puis de préciser le sens de différentes approximations parmi celles qui nous semblent les plus pertinentes pour l'étude du procédé. Dans le chapitre 5, la méthode de Monte Carlo est décrite et mise en œuvre, en incluant des développements théoriques et techniques très récents, qui permettent de résoudre l'équation de transfert radiatif avec précision dans la configuration de diffusion multiple en géométrie complexe du prototype DiCoFluV. Ce chapitre se concentre

sur la détermination des champs de rayonnement ; la question du couplage à la cinétique de production photosynthétique est ensuite abordée au chapitre 6. Le traitement de ce couplage correspond à un point bloquant vis-à-vis du calcul de la productivité des photobioréacteurs. Il rejoint théoriquement des difficultés de gestion des non-linéarités rencontrées par la méthode de Monte Carlo dans des domaines applicatifs très différents. Nous proposons dans ce chapitre une démarche originale (à notre connaissance) et nous la mettons en œuvre pour l'estimation de la productivité du prototype DiCoFluV (nous la mettons également en œuvre au chapitre 3 pour l'intégration des modèles électromagnétiques). Au terme des chapitres 5 et 6, nous disposons d'un outil de simulation permettant le calcul simultané de la productivité d'un photobioréacteur de géométrie quelconque et de ses sensibilités à de nombreux paramètres (un bénéfice immédiat des travaux de formulation intégrale de la section 5.5). Cependant, le calcul des sensibilités aux paramètres géométriques du procédé reste à l'heure actuelle inaccessible. Le chapitre 7 propose l'initiation d'une démarche permettant d'aborder cette question méthodologique d'une manière différente de celles proposées jusqu'alors, et nous montrons que sa mise en œuvre dans des configurations académiques simples, néanmoins inspirées de l'étude des photobioréacteurs, ne pose aucune difficulté pratique.

Avant de rentrer dans le détail de chacune de ces questions, la fin du présent chapitre introductif est une illustration des motivations qui ont présidé à notre travail, à travers une première rencontre des principaux concepts radiatifs utilisés pour l'optimisation des photobioréacteurs.

1.2 Illustration des concepts radiatifs utilisés pour l'optimisation des photobioréacteurs

La modélisation des photobioréacteurs implique un ensemble de mécanismes à différentes échelles du procédé. A l'échelle du micro-organisme, il faut étudier la conversion de l'énergie lumineuse par la réaction de photosynthèse, ainsi que la diffusion et l'absorption du rayonnement par un micro-organisme isolé (sous l'hypothèse de la diffusion indépendante). Puis, une première prise de moyenne consiste au passage à l'échelle d'un élément de volume, c'est-à-dire à une suspension de micro-organismes. Les propriétés radiatives du milieu continu équivalent (diffusion et absorption) sont alors exprimées comme la moyenne des propriétés des micro-organismes isolés sur leur distribution de tailles et d'orientations, et la cinétique locale de la photosynthèse correspond à la somme des contributions de chacun des micro-organismes présents dans l'élément de volume. Ce stade correspond à un raisonnement local

au sens des milieux continus : au sein de l'élément de volume, le champ de rayonnement est uniforme ; tous les micro-organismes disposent de la même quantité de lumière et catalysent la photosynthèse de manière identique. Lorsque l'on passe à l'échelle du volume réactionnel, c'est-à-dire à l'ensemble du réacteur, le champ de rayonnement doit être résolu par une analyse des transferts radiatifs dans la suspension de micro-organismes. Il apparaît alors que la lumière disponible est distribuée de manière très hétérogène dans le réacteur (en raison de la diffusion et l'absorption par les micro-organismes) et que par conséquent, la cinétique locale de la photosynthèse dépend elle aussi fortement de la position dans le volume (voir Sec. 1.2.5). Les performances du procédé résultent donc de l'intégration du couplage local transfert radiatif/photosynthèse sur l'ensemble du volume réactionnel. Une analyse des photobioréacteurs demande d'être en mesure de résoudre cette intégration volumique (ce qui pose des difficultés numériques conséquentes dès que la géométrie du réacteur devient complexe), et de comprendre l'influence des divers paramètres du procédé (à toutes les échelles) sur son comportement global.

Nous allons rentrer une première fois dans l'étude radiative des photobioréacteurs à travers l'illustration, sur des exemples simples, des principaux actes de modélisation et d'analyse que nous venons de lister. Il seront bien sûr repris en détail dans la suite du mémoire.

1.2.1 Conversion de l'énergie rayonnante par les micro-organismes photosynthétiques : loi de couplage cinétique

La conversion de l'énergie rayonnante par les micro-organismes photosynthétiques est communément étudiée grâce à des approches systémiques (plutôt que des approches génétiques et moléculaires), notamment à l'Institut Pascal et au GEPEA. Ces études donnent accès à des modèles du couplage entre les cinétiques de la réaction de photosynthèse et le transfert radiatif [6, 16], c'est-à-dire, entre la productivité d'un micro-organisme et la lumière dont il dispose (en l'absence de limitations autres que celle du transfert de rayonnement). L'étude de ces couplages est à l'heure actuelle en pleine transition. D'un côté, nous bénéficions d'une certaine expérience dans le traitement de ces problèmes grâce à la méthodologie de la thermodynamique linéaire des processus irréversibles, notamment pour les cyanobactéries qui soit respirent, soit catalysent la photosynthèse, mais ne font généralement pas les deux en même temps au sein d'un photobioréacteur. D'un autre côté, le traitement des eucaryotes (c'est-à-dire des micro-algues), qui respirent et catalysent la photosynthèse simultanément (ces deux processus biochimiques étant couplés) est encore l'objet de réflexions de fond.

1.2.1.1 La grandeur radiative utilisée comme paramètre d'entrée dans les modèles cinétiques

L'identification de la grandeur radiative pertinente pour l'étude des couplages avec le rayonnement mobilise une attention particulière au sein du groupe Institut Pascal/GEPEA. Bien que les premières lois de couplages aient été écrites en fonction de l'énergie lumineuse absorbée par le milieu réactionnel, tant dans le contexte des photobioréacteurs [17] que dans le contexte plus large des photoréacteurs [18], grand nombre de ces lois sont à l'heure actuelle écrites en fonction de l'irradiance, c'est-à-dire de l'énergie présente dans le milieu réactionnel indépendamment de la proportion qui en est absorbée [6, 16]. Cependant, il apparaît au sein de la communauté du génie des procédés en lien avec ce travail, qu'une écriture en fonction du nombre de photons absorbés par un micro-organisme est encore plus pertinente étant donné les différentes approches de modélisation aujourd'hui envisagées : méthode des flux métaboliques, thermodynamique des processus irréversibles. Au cours de cette thèse, nous sommes ici arrivés à des conclusions similaires avec une approche purement radiative, notamment lors de l'étude des aspects spectraux liés aux phénomènes d'absorption. Les vitesses de réaction locales au sein du volume réactionnel seront donc écrites par la suite en fonction de la vitesse spécifique d'absorption des photons \mathcal{A} (voir l'encart 1) : nous utiliserons une loi de couplage cinétique issue de la littérature que nous adapterons de façon à faire apparaître explicitement \mathcal{A} [16]. Mais nous proposons tout d'abord dans le paragraphe suivant une lecture schématique des mécanismes primaires de la photosynthèse qui suffit à étayer le choix d'une modélisation appuyée sur la vitesse d'absorption des photons \mathcal{A} .

Jusqu'au paragraphe 1.2.4 nous ne discuterons pas des moyens pratiques permettant d'évaluer \mathcal{A} en situation réelle. Cette question relèvera de la physique du transfert radiatif.

1.2.1.2 Mécanismes primaires de conversion des photons par la photosynthèse

Le processus photobiochimique de la photosynthèse commence par l'absorption des photons aux antennes photosynthétiques (ou unités photosynthétiques) dont une représentation est donnée à la figure 1.3. Ces structures sont composées d'une antenne collectrice comprenant des pigments photosynthétiques et d'un centre réactionnel. Seuls les photons appartenant à la gamme spectrale du PAR (pour Photosynthetically Active Radiation, ce qui correspond approximativement au spectre visible, voir l'encart 2) provoquent une excitation électronique des molécules de pigments lorsqu'ils sont absorbés sur un site de l'antenne collectrice. Lorsque cela se produit, l'excitation résultante est indépendante de l'énergie du photon absorbé : il s'agit d'une "loi du tout ou rien". Ces excitations électroniques se propagent par

résonance de site en site sur les antennes collectrices jusqu'à atteindre le centre réactionnel où elles donnent lieu à une séparation de charge. L'électron ainsi libéré entre dans le schéma réactionnel de la photosynthèse, qui consiste en une chaîne d'oxydoréductions, et aboutit à la production d'une certaine quantité de dioxygène, d'ATP (adénosine-5'-triphosphate) et de pouvoir réducteur pour la synthèse de biomasse. Mais toutes les excitations n'aboutissent pas à une séparation de charge au centre réactionnel. Certaines d'entre elles sont perdues de par des mécanismes dissipatifs qui sont schématiquement de deux types :

- (1) les désexcitations lors de la propagation sur les antennes collectrices, qu'elles soient spontanées ou stimulées (constantes de temps de l'ordre de la femtoseconde),
- (2) les désexcitations dues à l'arrivée d'une excitation au centre réactionnel alors que celui-ci est déjà occupé (le temps caractéristique de réactivation du centre réactionnel après une séparation de charge est de l'ordre de la picoseconde).

Les désexcitations correspondantes donnent lieu à une émission par fluorescence ou à une dissipation thermique. Ces phénomènes d'émission seront par la suite négligés lors du traitement des transferts radiatifs dans le procédé. Le rendement ρ des antennes photosynthétiques, ou rendement primaire de la photosynthèse, obéit donc à une loi de saturation traduisant l'augmentation des pertes lorsque la vitesse de production des excitations augmente. Ce mécanisme primaire est intensivement étudié en mécanique quantique depuis les années 70 (voir [20]). Sur la base de ces travaux de photo-physique et dans les conditions de limitation par le transfert de rayonnement, il est possible d'exprimer de façon relativement simple le rendement primaire ρ avec la forme fonctionnelle

$$\rho(\mathcal{A}) = \rho_M \frac{K}{K + \mathcal{A}} \quad (1.1)$$

où ρ_M est le rendement maximum, K est la constante de saturation et \mathcal{A} est la vitesse de production des excitations qui, dans le cadre de notre approche, est égale à la vitesse spécifique d'absorption des photons du PAR (puisque chacun de ces photons donne lieu à une excitation électronique). L'évolution du rendement primaire $\rho(\mathcal{A})$ en fonction de \mathcal{A} est représentée en gris sur la figure 1.4.a.

Maintenant que nous avons modélisé l'arrivée des excitations électroniques au centre réactionnel, nous nous intéressons aux séparations de charge qui y ont lieu. La vitesse spécifique de séparation de charge J_{e^-} au centre réactionnel est simplement la vitesse de production des excitations aux antennes \mathcal{A} multipliée par le rendement des antennes ρ :

$$J_{e^-}(\mathcal{A}) = \rho(\mathcal{A}) \mathcal{A} = \rho_M \frac{K \mathcal{A}}{K + \mathcal{A}} \quad (1.2)$$

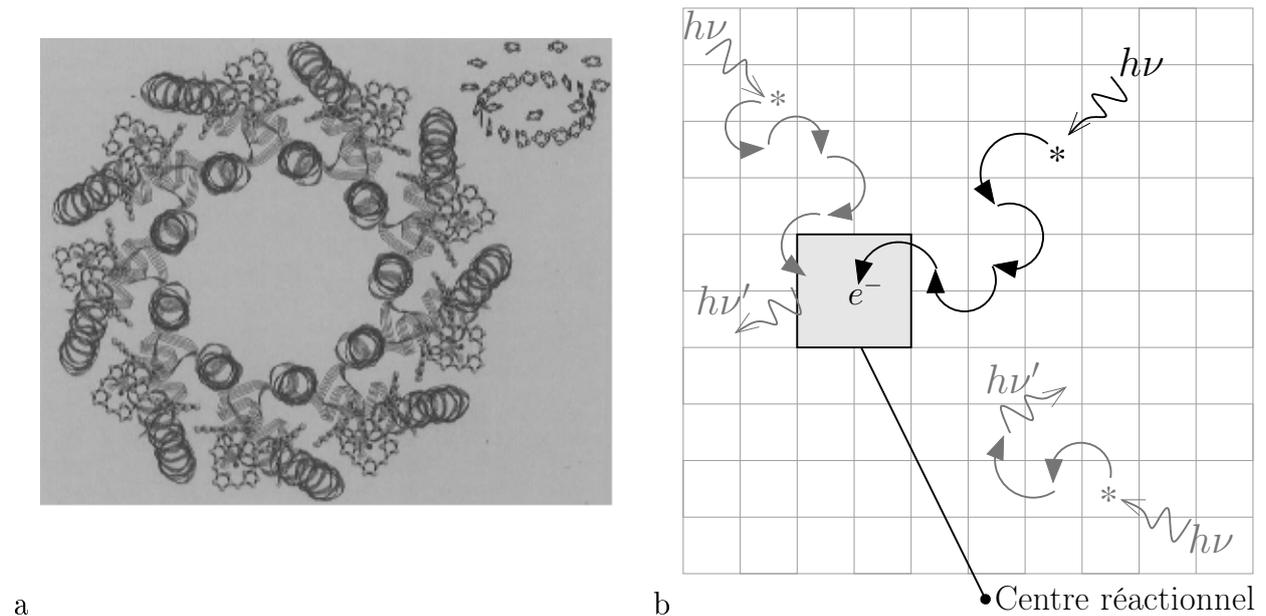


FIGURE 1.3: Antennes photosynthétiques. a : Structure d'un complexe pigment-protéine composant les unités photosynthétiques d'une bactérie ; d'après [19]. b : Schématisation du principe de fonctionnement ; un photon $h\nu$ est absorbé sur un site de l'antenne collectrice et provoque une excitation électronique $*$; en noir : l'excitation se propage de proche en proche jusqu'au centre réactionnel où elle donne lieu à une séparation de charge, l'électron ainsi libéré entre dans la chaîne d'oxydoréductions de la photosynthèse ; en gris : mécanismes de saturation des antennes ; désexcitation lors de la propagation sur l'antenne (en bas à droite) et arrivée d'une excitation électronique sur un centre réactionnel déjà occupé (en haut à gauche) ; ces désexcitations donnent lieu à une émission $h\nu'$ par fluorescence ou par dissipation thermique.

Chaque charge entrant dans le schéma réactionnel de la photosynthèse aboutit à la production d'une certaine quantité de dioxygène suivant le rendement quantique molaire $\bar{\phi}'$. Un résultat remarquable des études basées sur l'approche de la thermodynamique des processus irréversibles est que ce rendement quantique peut être considéré comme une constante, indépendamment de la vitesse de production des charges (chez les cyanobactéries tout au moins, l'hypothèse étant ici étendue aux eucaryotes [6, 16]). On aboutit ainsi à l'expression de la vitesse spécifique de production de dioxygène J_{O_2} par photosynthèse :

$$J_{O_2}(\mathcal{A}) = \bar{\phi}' J_{e^-}(\mathcal{A}) = \bar{\phi}' \rho_M \frac{K \mathcal{A}}{K + \mathcal{A}} \quad (1.3)$$

Bien que ce couplage à la cinétique de production de dioxygène soit particulièrement pertinent pour l'étude de la réaction de photosynthèse, notre analyse du procédé se concentre quant à elle sur la production de biomasse. La vitesse spécifique de production de biomasse J_x est proportionnelle à la vitesse spécifique de production de dioxygène J_{O_2} car la stœchiométrie de la photosynthèse étant fixe (en première approximation), on connaît le rapport ν_{O_2-x} correspondant au nombre de moles de O_2 produit pour chaque mole de biomasse produite :

$$J_x = \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} J_{O_2} \quad (1.4)$$

où le rapport stœchiométrique ν_{O_2-x} est égal à 1.183 (dans les conditions étudiées ici, voir [16]) et où on a introduit la masse molaire de la biomasse $M_x = 0.024 \text{ kg} \cdot \text{C} - \text{mol}^{-1}$ afin d'exprimer J_x en unités massiques plutôt que molaires (voir encart 1). En remplaçant J_{O_2} par son expression Eq. 1.3, il vient :

$$J_x(\mathcal{A}) = \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \bar{\phi}' \rho_M \frac{K \mathcal{A}}{K + \mathcal{A}} \quad (1.5)$$

La figure 1.4.a représente les variations respectives du rendement des antennes photosynthétiques et de la vitesse spécifique de production de biomasse J_x , en fonction de la vitesse \mathcal{A} à laquelle les photons sont absorbés par un micro-organisme. Cette figure met en exergue le comportement de saturation des antennes : lorsque \mathcal{A} augmente, la vitesse de production par photosynthèse augmente vers une valeur asymptotique, traduisant la chute du rendement des antennes.

1.2.1.3 La respiration chez les eucaryotes : production nette d'oxygène et point de compensation

Les micro-organismes eucaryotes *respirent* en même temps qu'ils catalysent la réaction de photosynthèse. Nous n'avons pour l'instant considéré que la photosynthèse et nous allons maintenant rajouter l'effet de cette respiration. Pour cela, il faut revenir à la cinétique de production de dioxygène. Les couplages qui existent dans la cellule entre photosynthèse et respiration sont complexes et encore mal compris. Nous considérons ici un comportement d'inhibition de la respiration par la lumière, modélisé par une loi proposée dans [16] (et adaptée à une écriture en fonction de \mathcal{A}) dont nous ne développerons pas les fondements :

$$J_{O_2}^{resp}(\mathcal{A}) = -\beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}} \quad (1.6)$$

où β et K_r sont deux paramètres détaillés dans l'annexe B. On notera que $J_{O_2}^{resp}(\mathcal{A})$ n'est nul pour aucune valeur de \mathcal{A} : la respiration a lieu en toute circonstance, que l'organisme soit ou non soumis à un rayonnement. La vitesse de production de dioxygène par un eucaryote résulte donc de deux contributions antagonistes : la production par photosynthèse et la consommation par respiration. En sommant les contributions Eq. 1.3 et Eq. 1.6, on obtient en effet :

$$J_{O_2}(\mathcal{A}) = \bar{\phi}' \rho_M \frac{K \mathcal{A}}{K + \mathcal{A}} - \beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}} \quad (1.7)$$

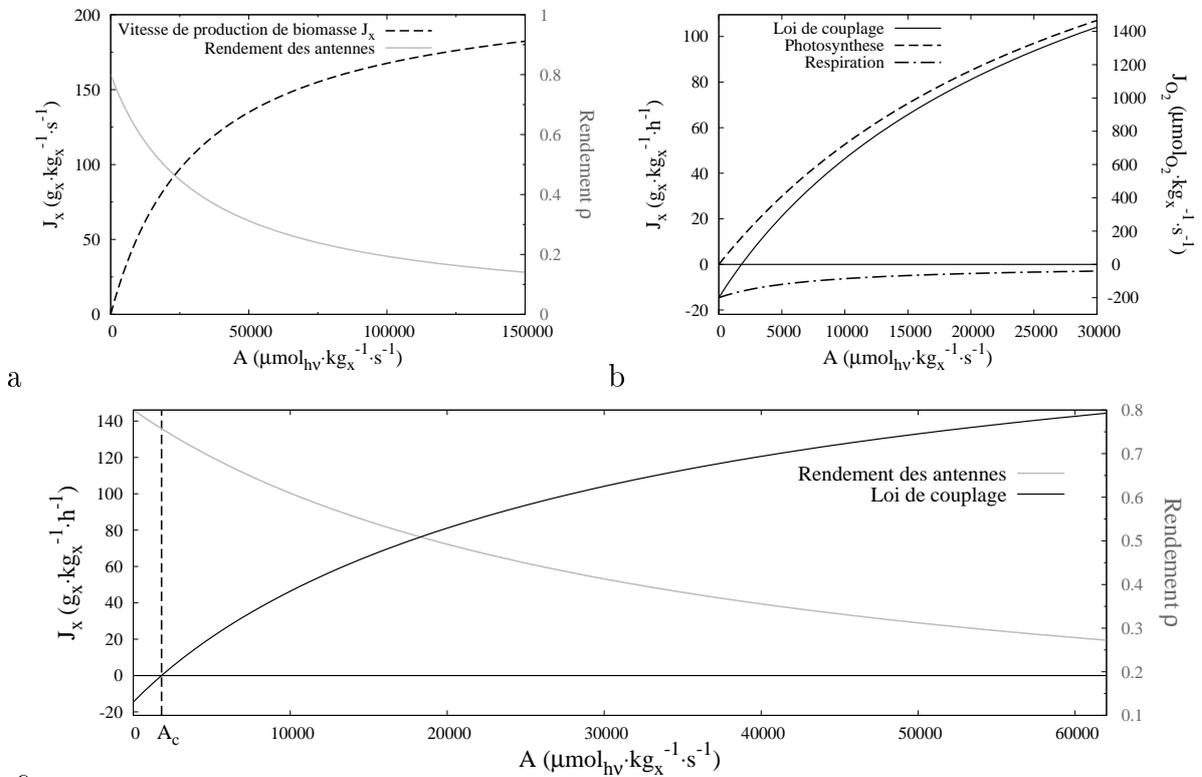


FIGURE 1.4: Loi de couplage cinétique d'un eucaryote (voir encart 1 pour une discussion sur les unités choisies). Les valeurs des paramètres utilisées sont celles obtenues pour *Chlamydomonas reinhardtii* dans l'annexe B en se basant sur les résultats de [16] : $\rho_M = 0.8$, $\bar{\phi}' = 1.183 \times 10^{-7} \text{ mol}_{O_2} \cdot \mu\text{mol}_{\text{hv}}^{-1}$, $K = 32000 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{kg}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $K_r = 7500 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{kg}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $\beta = 2 \times 10^{-4} \text{ mol}_{O_2} \cdot \text{kg}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. a : Production de biomasse par photosynthèse et rendement des antennes photosynthétiques. b : Bilan entre production de biomasse par photosynthèse et consommation par respiration. c : Loi de couplage et définition du point de compensation \mathcal{A}_c ; dans le cas présent $\mathcal{A}_c = 1800 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{kg}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$

Les contributions respectives du terme de gauche (photosynthèse) et du terme de droite (respiration), ainsi que le bilan qui en résulte, sont tracés à la figure 1.4.b. Comme nous l'avons vu dans le cadre de la photosynthèse seule, la vitesse spécifique de production de biomasse J_x est proportionnelle à J_{O_2} (voir Eq. 1.4) :

$$J_x(\mathcal{A}) = \bar{\phi}^I \rho_M \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K \mathcal{A}}{K + \mathcal{A}} - \beta \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}} \quad (1.8)$$

Cette loi de couplage cinétique des eucaryotes sera utilisée dans la suite de notre étude à la section 4.7 et au chapitre 6. Elle est représentée à la figure 1.4.c, où nous lui avons superposé le rendement des antennes photosynthétiques puisque l'optimisation des photobioréacteurs passe nécessairement par une utilisation efficace de l'énergie lumineuse. On observe sur cette figure trois comportements qui définissent le point de compensation \mathcal{A}_c :

- si $\mathcal{A} < \mathcal{A}_c$ le micro-organisme consomme de l'oxygène¹ (à gauche),
- si $\mathcal{A} = \mathcal{A}_c$ le micro-organisme équilibre parfaitement sa consommation d'oxygène par respiration et sa production d'oxygène par photosynthèse, la vitesse de production d' O_2 est nulle,
- et si $\mathcal{A} > \mathcal{A}_c$ le micro-organisme produit de l'oxygène.

Encart 1 LES UNITÉS UTILISÉES ET LEURS NOTATIONS

Puissance radiative. Conformément à ce qui est utilisé dans la littérature, nous exprimons dans ce manuscrit les grandeurs radiatives comme des nombres de photons (plus commodément des moles de photons notées ici $\text{mol}_{h\nu}$) par unité de temps. Cette écriture est cohérente avec les mécanismes de couplage qui ont été décrits dans la présente section. Ainsi, une irradiance ou un flux, qui s'expriment habituellement en $W \cdot m^{-2}$, seront ici exprimés en $\text{mol}_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$.

Lien entre les grandeurs particulières et massiques. La réaction de photosynthèse peut être vue comme une réaction auto-catalytique, dans le sens où les micro-organismes produisent la biomasse dont ils sont eux-mêmes constitués. Lorsque l'on parle de production de biomasse dans un photobioréacteur, cela signifie que les micro-organismes grossissent, puis se divisent en augmentant leur nombre. Ainsi, la concentration en biomasse dans le réacteur est strictement équivalente à la concentration en micro-organismes (les deux termes étant utilisés dans la suite de ce mémoire). A ce titre, l'ensemble des grandeurs associées à une particule peuvent aussi s'exprimer en unité massique, ce qui est particulièrement

1. Conceptuellement, il convient ici de raisonner sur le couplage à la cinétique de production de O_2 mais dans le cadre de la description que nous proposons, J_{O_2} est proportionnelle à J_x et nous pouvons utiliser la figure 1.4.c

pratique dans le contexte expérimental associé à la présente étude. L'unité massique qui représente un micro-organisme est sa masse sèche : chaque micro-organisme est constitué d'eau et de biomasse et pèse un certain poids une fois sec. On parle alors de kilogramme de biomasse sèche kg_x (où l'indice x signifie qu'il s'agit de biomasse). Ainsi, la concentration en micro-organismes C_x au sein d'un volume réactionnel sera exprimée en $kg_x \cdot m^{-3}$ (plutôt qu'en nombre de particules par m^{-3}). En particulier, les sections efficaces σ de diffusion et d'absorption des micro-organismes obéissent à ce constat. Nous utiliserons indifféremment, en fonction du contexte, des sections efficaces particulières (m^2 par particule) ou massiques ($m^2 \cdot kg_x^{-1}$). Pour autant, nous ne jugeons pas nécessaire d'introduire une nomenclature spécifique puisque le sens physique de ces grandeurs n'est en rien affecté par ce choix. Enfin, \mathcal{A} est un nombre de photons absorbés par unité de temps et par micro-organisme. Cette vitesse spécifique d'absorption des photons sera donc exprimée en $mol_{h\nu} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$. Dans le cadre d'une écriture de la section efficace d'absorption σ_a en unité massique et d'une irradiance \hat{G} exprimée en nombre de photons (voir discussion en début d'encart), $\mathcal{A} = \sigma_a \hat{G}$ est bien exprimé en $mol_{h\nu} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$.

Vitesse spécifique de production de biomasse et vitesse de réaction volumique. La vitesse spécifique de production de biomasse J_x est la vitesse avec laquelle un micro-organisme produit de la biomasse x . Nous avons vu à l'équation 1.4 que la quantité de biomasse produite est habituellement exprimée en unité massique plutôt qu'en unité molaire : le micro-organisme produit une certaine masse de biomasse par unité de temps. Cette masse sera exprimée comme des grammes de biomasse sèche g_x . La vitesse de production J_x est donc exprimée en $g_x \cdot h^{-1}$ par micro-organisme (les échelles de temps sont telles que l'on choisit généralement l'heure comme unité). Si l'on passe maintenant d'une unité particulière à une unité massique (voir paragraphe ci-dessus), J_x est exprimé en $g_x \cdot kg_x^{-1} \cdot h^{-1}$. On trouve dans la littérature des vitesses spécifiques de production de biomasse J_x exprimées en h^{-1} , ce qui est cohérent puisque s'agissant d'une réaction auto-catalytique, J_x est bien un taux de production. Cependant, nous préférons ici garder la première expression. Sur la figure 1.4, une valeur de J_x à $60 g_x \cdot kg_x^{-1} \cdot h^{-1}$ signifie donc qu'un kilogramme de biomasse soumis à une certaine vitesse d'absorption des photons (ici $\mathcal{A} \simeq 13000 \mu mol_{h\nu} \cdot s^{-1}$) produit 60 grammes de biomasse par heure. La vitesse de réaction volumique locale r_x représente quant à elle la vitesse de production d'un élément de volume d'une suspension de micro-organismes. Si la suspension est à une concentration en micro-organismes C_x (exprimée en $kg_x \cdot m^{-3}$) et que chaque micro-organisme produit de la biomasse avec une vitesse J_x , alors nous avons $r_x = C_x J_x$ exprimé en $g_x \cdot m^{-3} \cdot h^{-1}$.

1.2.1.4 Passage à l'échelle d'un élément de volume (vision de type milieu continu)

Jusqu'à présent, nous nous plaçons à l'échelle du micro-organisme : J_x était la vitesse avec laquelle un micro-organisme produit de la biomasse. Nous nous plaçons maintenant à l'échelle d'un élément de volume d'une suspension de micro-organisme. A cette échelle de description, on introduit une vitesse de réaction volumique r_x qui est simplement la somme des vitesses de production de tous les micro-organismes présents dans l'élément de volume considéré :

$$r_x(\mathcal{A}) = C_x J_x(\mathcal{A}) = C_x \left[\rho_M \bar{\phi}' \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K \mathcal{A}}{K + \mathcal{A}} - \beta \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}} \right] \quad (1.9)$$

où C_x est la concentration en micro-organismes (voir l'encart 1 pour une discussion sur l'unité de r_x).

1.2.1.5 Une première analyse du procédé

Une analyse radiative des photobioréacteurs peut déjà être proposée, à partir des descriptions précédentes (celle menée à l'échelle du micro-organisme et celle menée à l'échelle d'un élément de volume). Même si cette analyse ne peut que rester grossière, on peut en effet avancer que du point de vue de l'optimisation du procédé, il convient d'éviter que \mathcal{A} prenne des valeurs inférieures au point de compensation \mathcal{A}_c , puisque la vitesse de production est négative pour $\mathcal{A} < \mathcal{A}_c$ (de par la respiration). De plus, on voit à la figure 1.4 l'apparition d'un dilemme entre l'obtention d'une forte vitesse de production au détriment de l'efficacité de l'utilisation des photons (valeurs de \mathcal{A} élevées) ou au contraire, une vitesse de production faible correspondant à une utilisation optimum de l'énergie solaire (faibles valeurs de \mathcal{A}). Plus qu'un dilemme, il s'agit en fait d'un équilibre à trouver entre deux stratégies d'optimisation représentées par les deux concepts discutés dans la section 1.1 :

- (1) Le concept Algofilm Fig. 1.1 vise une optimisation de la vitesse de croissance volumique locale r_x dans le réacteur². Dans ce prototype, un rayonnement incident élevé (ici grâce à la captation directe du rayonnement solaire) éclaire une suspension très concentrée. Cela permet d'obtenir de fortes valeurs de \mathcal{A} , et donc de J_x , conjointement avec de fortes valeurs de la concentration C_x . Dans ce cas, $r_x = C_x J_x$ est maximisé.

2. Une optimisation de r_x mène à des productivité volumiques élevées (dans le cas d'une culture en continu), ce qui revient à optimiser le volume du procédé (on parle d'intensification). La volonté de travailler avec de faibles volumes est notamment justifiée par les coûts énergétiques liés au mélange et aux séparations.

- (2) Le concept Dicoflux Fig. 1.2 vise une optimisation de la productivité en surface de captation solaire (sans toutefois négliger la productivité volumique). Pour cela, il faut que chaque photon récupéré soit utilisé avec la meilleure efficacité. Il convient donc de minimiser \mathcal{A} dans le volume réactionnel (rendement ρ maximum) par une stratégie de dilution du rayonnement incident, telle que l'utilisation d'un grand nombre de fibres optiques à éclairage latéral.

La discussion que nous venons d'avoir sur l'optimisation du procédé est justifiée mais notre analyse est encore extrêmement limitée. En effet, nous sommes ici dans des images à l'échelle du micro-organisme (ou de l'élément de volume) et nous n'avons absolument pas considéré que, à l'échelle du procédé, \mathcal{A} est réparti de façon très hétérogène dans le réacteur. Or chacune des zones correspondantes (qu'elle soit à forte ou à faible valeur de \mathcal{A}) participe significativement au comportement global d'un photobioréacteur. Cette question sera abordée à partir de la section 1.2.5 en lien avec l'introduction de la physique du transfert radiatif.

1.2.2 Interaction des micro-organismes avec le rayonnement visible : premier modèle d'absorption

L'étude des propriétés de diffusion et d'absorption du rayonnement par les micro-organismes photosynthétiques fait l'objet des chapitres 2 et 3 du présent manuscrit. Nous verrons que cette étude implique une modélisation électromagnétique à l'échelle du micro-organisme, qui correspond à la résolution des équations de Maxwell pour une onde incidente sur une particule isolée (sous l'hypothèse du régime de la diffusion indépendante). Comme pour la cinétique, nous devons ensuite faire un passage à l'échelle d'un élément de volume de suspension, ce qui se traduit par une prise de moyenne des résultats obtenus pour la particule isolée sur les distributions de tailles et d'orientations des micro-organismes. Les propriétés radiatives ainsi obtenues seront celles d'un milieu continu équivalent et elles interviendront dans des modèles de transfert, à l'échelle du procédé, dont la mise en œuvre et l'analyse passeront par des considérations numériques avancées. Mais afin de rester très simple dans ce chapitre introductif, nous faisons dans un premier temps une hypothèse forte sur la nature de l'interaction électromagnétique entre le rayonnement et les micro-organismes : la diffusion de la lumière par les micro-organismes est négligée. Cette approximation serait justifiée pour des micro-organismes qui ne seraient constitués que d'eau et de pigments photosynthétiques suffisamment dilués. Dans ces conditions, la section efficace de diffusion des micro-organismes est nulle et leur section efficace d'absorption massique $\sigma_{a,\nu}$ est égale à celle d'une solution

aqueuse homogène et diluée de pigments (ce qui évite entre autres d'avoir à gérer l'intégration sur les tailles et les orientations des micro-organismes) :

$$\sigma_{a,\nu} = \sum_j w_{pig,j} E_{a_{pig,j}}(\nu) \quad (1.10)$$

où \sum_j représente une somme sur les différentes espèces pigmentaires j présentes dans le micro-organisme, $w_{pig,j}$ est la fraction de la masse sèche du micro-organisme correspondant à l'espèce j (les valeurs de $w_{pig,j}$ sont données au chapitre 2 pour trois micro-organismes) et $E_{a_{pig,j}}(\nu)$ est le spectre de la section efficace massique d'absorption de l'espèce j , ν étant la fréquence du rayonnement (les spectres $E_{a_{pig,j}}$ correspondant aux pigments photosynthétiques les plus courants dans la nature ont été rassemblés dans une base de données qui sera détaillée au chapitre 2 et qui est distribuée librement [21]). La justification complète de ce modèle d'absorption est reportée dans l'encart 2 car elle implique un certain nombre de notions qui seront développées aux chapitres 2 et 3. Il suffit ici de retenir qu'en première approximation, nous considérons un milieu purement absorbant correspondant au spectre de la section efficace d'absorption $\sigma_{a,\nu}$ représenté à la figure 1.6.a (résultats obtenus pour les caractéristiques de la micro-algue *Chlamydomonas reinhardtii*) et que le passage au coefficient d'absorption linéique $k_{a,\nu}$ du volume réactionnel se fait en multipliant $\sigma_{a,\nu}$ par la concentration C_x en biomasse (qui sera homogène au sein du volume réactionnel dans l'ensemble de notre étude) :

$$k_{a,\nu} = C_x \sigma_{a,\nu} \quad (1.11)$$

Tout rayonnement collimaté traversant le milieu de culture est donc atténué exponentiellement, en fonction de la distance parcourue d , selon la loi de transmittivité de Beer $T_\nu = \exp(-k_{a,\nu} d)$.

Encart 2 MODÈLE D'ABSORPTION PAR UNE SOLUTION DE PIGMENTS :

Dans ce travail, nous nous intéressons exclusivement à la gamme spectrale du PAR (Photosynthetically Active Radiation) qui correspond, pour la photosynthèse classique, aux longueurs d'ondes allant de 400 à 700 nanomètres. Nous verrons dans le chapitre 2 que l'absorption du rayonnement par les micro-organismes dans la gamme spectrale du PAR est exclusivement due à la présence de pigments photosynthétiques. Sous l'hypothèse d'une dilution suffisante des pigments dans les micro-organismes, la caractérisation de leurs propriétés d'absorption est ramenée à celle de leur section efficace massique d'absorption $E_{a_{pig,j}}$. Les spectres de $E_{a_{pig,j}}$ ont été rassemblés dans une base de données qui sera détaillée au chapitre 2. Dans ces conditions, on montre au chapitre 2 que la partie imaginaire κ_ν de

l'indice de réfraction des micro-organismes s'écrit :

$$\kappa_\nu = \frac{c_0}{4\pi\nu} \sum_j C_{pig,j} E a_{pig,j}(\nu) \quad (1.12)$$

où c_0 est la vitesse de la lumière dans le vide, ν est sa fréquence, $C_{pig,j}$ est la concentration de l'espèce pigmentaire j dans le volume du micro-organisme. En outre, les micro-organismes sont composés à 80% d'eau, ce qui leur confère un très faible contraste d'indice de réfraction avec leur milieu environnant. Si l'on fait l'approximation (certes grossière) que les micro-organismes ne sont composés que de pigments photosynthétiques (suffisamment dilués) et d'eau, on peut supposer que les parties réelles des indices de réfractations du milieu aqueux environnant et des particules sont égales. De plus, les épaisseurs optiques d'absorption dans les micro-organismes sont suffisamment faibles pour que l'on puisse considérer en première approximation le régime de la diffusion Rayleigh-Gans ($x\kappa_\nu \ll 1$ pour un contraste nul au niveau de la partie réelle de l'indice, voir Chap. 3), même si les paramètres de taille x étudiés sont de l'ordre de 100. La section efficace de diffusion est nulle et la section efficace d'absorption est alors proportionnelle au volume V_{part} de la particule (Eq. 3.27 dans laquelle $\kappa_r = \kappa_\nu/n_e$, n_e étant la partie réelle de l'indice du milieu environnant) :

$$\sigma_{a,\nu} = \frac{4\pi\nu}{c_0} V_{part} \kappa_\nu \quad (1.13)$$

Par ailleurs, $C_{pig,j}$ est la masse de pigment dans le micro-organisme divisée par son volume :

$$C_{pig,j} = \frac{M_{part}}{V_{part}} w_{pig,j} \quad (1.14)$$

où M_{part} est la masse sèche du micro-organisme et $w_{pig,j}$ est la fraction de la masse sèche du micro-organisme correspondant à l'espèce pigmentaire j . En injectant les équations 1.12 et 1.14 dans l'expression de $\sigma_{a,\nu}$ Eq. 1.13, il vient :

$$\sigma_{a,\nu} = \sum_j M_{part} w_{pig,j} E a_{pig,j}(\nu) \quad (1.15)$$

Afin d'exprimer la section efficace d'absorption en unité massique ($m^2 \cdot kg_x^{-1}$, voir l'encart 1), l'expression ci-dessus est divisée par la masse M_{part} de la particule, ce qui conduit à l'équation 1.10.

1.2.3 Présentation d'un dispositif expérimental privilégié pour l'analyse des photobioréacteurs

Afin de poursuivre ces premières discussions, nous prendrons comme exemple un photobioréacteur torique développé au laboratoire GEPEA (voir Fig. 1.5). Il s'agit d'un dispositif expérimental qui a été conçu pour faciliter l'analyse des mécanismes à l'échelle du réacteur : la configuration radiative est quasi monodimensionnelle (une lame éclairée par une face) malgré une structure torique qui permet un bon contrôle des paramètres de culture (concentration en biomasse, pH, température, nutriments, etc). Contrairement aux technologies présentées dans la section 1.1, ce photobioréacteur est conçu pour être un outil d'analyse et ne correspond à aucune stratégie d'optimisation. Ce dispositif a permis l'obtention de résultats expérimentaux fiables sur lesquels il est possible de s'appuyer lors des travaux de modélisation des photobioréacteurs [23, 16]. Comme tout au long de notre étude, la concentration en micro-organismes C_x sera considérée comme étant homogène dans le volume réactionnel \mathcal{V} (sous l'hypothèse du mélange parfait) et les phénomènes d'émission dans \mathcal{V} (notamment par fluorescence aux antennes) seront négligés, ce qui correspond à un très bon niveau d'approximation.

A ce stade de nos discussions, il est utile de préciser qu'il existe deux types de cultures en photobioréacteur : la culture en discontinu, dans laquelle le réacteur est "fermé" et où la concentration en biomasse augmente au cours du temps, et la culture en continu, dans laquelle la production en biomasse est extraite au fur et à mesure de la production afin que la concentration reste constante dans le réacteur. Nous nous concentrerons exclusivement dans le présent manuscrit sur ce second régime de fonctionnement qui est le seul permettant un contrôle du champ radiatif dans le réacteur, grâce à un contrôle de la concentration en micro-organismes qui pilote l'épaisseur optique du milieu. Dans ce cadre, un bilan matière sur la biomasse établit que la vitesse de réaction r_x (Eq. 1.9) est égale à la productivité volumique locale en biomasse dans le réacteur. Ce dernier terme sera par la suite systématiquement préféré.

1.2.4 Transferts radiatifs dans les photobioréacteurs : une première analyse en l'absence de diffusion

Dans un dispositif tel que celui que nous venons de présenter, la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} dépend de la position \mathbf{x}_0 considérée au sein du volume de culture. On comprend aisément que les micro-organismes seront soumis à un éclairage plus intense

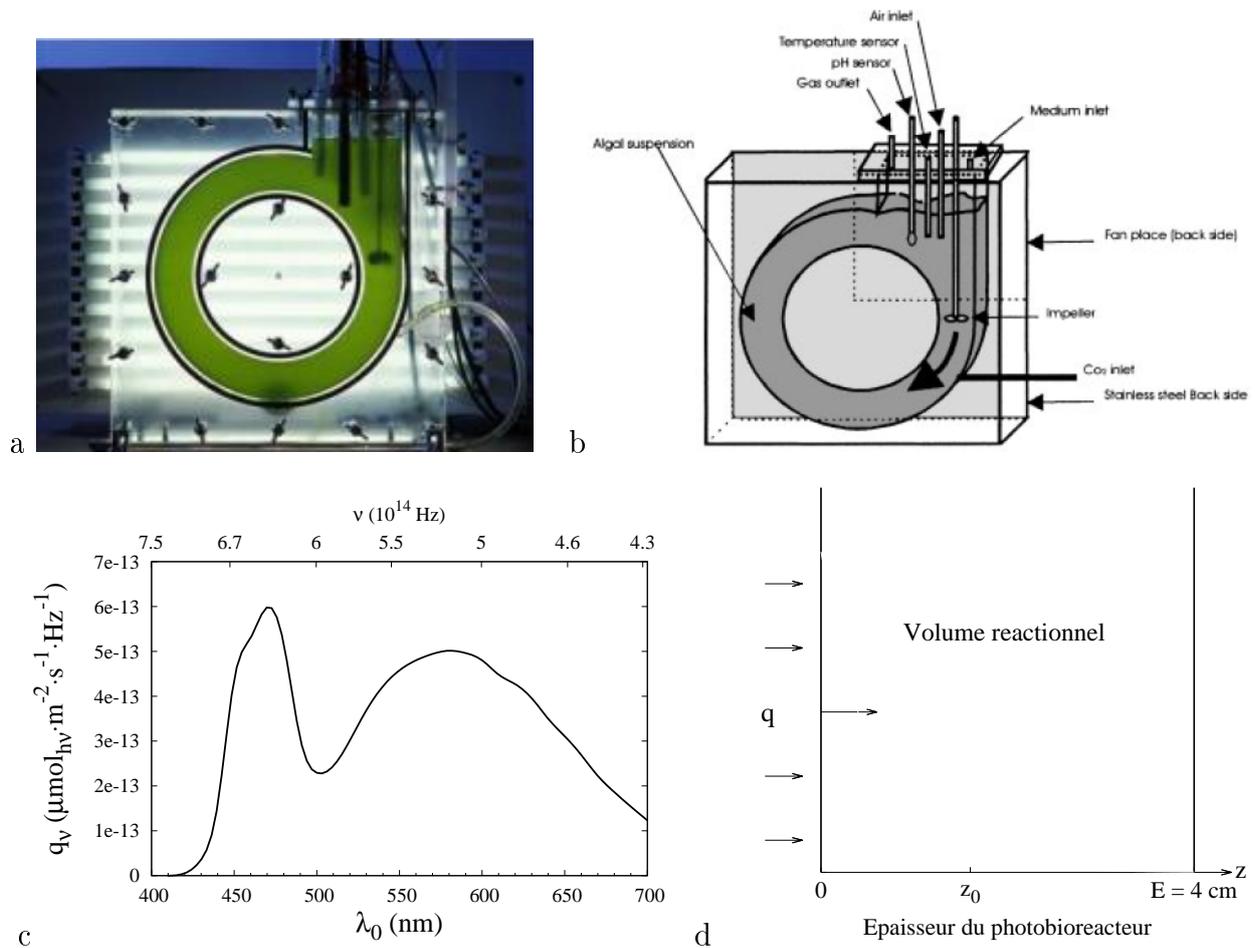


FIGURE 1.5: Configuration du photobioréacteur torique. a : Photographie d'une version transparente du photobioréacteur. b : Représentation schématique d'après [22] ; la géométrie torique permet de mettre en mouvement la suspension de micro-organismes grâce à une hélice afin d'en assurer le mélange tout en restant dans une configuration radiative quasi monodimensionnelle plane ; l'épaisseur du volume réactionnel est de 4 cm. c : Spectre d'émission du panneau de LED (Light Emitting Diode) utilisé pour l'éclairage de la suspension dans la gamme spectrale utilisé par *Chlamydomonas reinhardtii* (bien que des tubes fluorescents soient utilisés sur la photographie a, nous travaillons ici avec des LED) ; ν et λ_0 sont respectivement la fréquence du rayonnement et sa longueur d'onde dans le vide. d : Représentation schématique de la configuration radiative simplifiée correspondante ; géométrie monodimensionnelle d'abscisse z ; le volume réactionnel est contenu entre deux surfaces respectivement en $z = 0$ et $z = E$ ($E = 4$ cm) ; la surface en $z = 0$ émet un rayonnement collimaté normal ; en première approximation, les deux surfaces sont considérées comme étant non-réfléchissantes.

lorsqu'ils seront près de la face d'incidence et à un éclairage moins intense lorsqu'ils seront au milieu du volume réactionnel, les autres micro-organismes écrantant le rayonnement. La vitesse spécifique d'absorption des photons est donc une grandeur locale qui dépend de la densité de photon $\eta_\nu(\mathbf{x}_0)$ (nombre de photons par unité de volume et par unité de fréquence), ou alternativement de l'irradiance $G_\nu(\mathbf{x}_0) = h\nu c \eta_\nu(\mathbf{x}_0)$, où h est la constante de Planck, et $h\nu$ est l'énergie d'un photon de fréquence ν (voir l'encart 1) :

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \sigma_{a,\nu} c \eta_\nu(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \sigma_{a,\nu} \frac{G_\nu(\mathbf{x}_0)}{h\nu} \quad (1.16)$$

$\sigma_{a,\nu}$ étant la section efficace d'absorption et $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ la gamme spectrale du PAR (voir l'encart 2). En toute généralité, l'obtention des champs de rayonnement (donc de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ en fonction de la position \mathbf{x}_0) dans le volume réactionnel nécessite la résolution de l'équation de transfert radiatif dans un milieu non-gris (les propriétés radiatives du milieu dépendent de la fréquence du rayonnement) en présence de diffusion multiple anisotrope et de réflexion aux parois. Cependant, pour le photobioréacteur torique de la figure 1.5 il est raisonnable de négliger la réflexion aux parois, et nous travaillons de plus avec un modèle d'absorption pure. Cette succession d'approximations va nous permettre d'illustrer beaucoup plus simplement la question de l'analyse des transferts de rayonnement dans les photobioréacteurs.

Dans la situation quasi monodimensionnelle (radiativement) de la figure 1.5, la dépendance spatiale est ramenée à l'abscisse z_0 de la position \mathbf{x}_0 au sein du photobioréacteur torique. On écrit alors

$$\mathcal{A}(z_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \sigma_{a,\nu} \frac{G_\nu(z_0)}{h\nu} \quad (1.17)$$

Le rayonnement incident est collimaté dans la direction de l'axe des z et notre milieu est seulement absorbant. Comme nous négligeons de plus la réflexion aux parois, l'irradiance G_ν suit elle même la loi d'extinction de Beer (voir Sec. 1.2.2), soit

$$G_\nu(z_0) = G_\nu(0) \times T_\nu(z_0) = G_\nu(0) \times \exp(-k_{a,\nu} z_0) \quad (1.18)$$

où $k_{a,\nu} = C_x \sigma_{a,\nu}$ est le coefficient d'absorption linéique du milieu (voir Eq. 1.11) et $G_\nu(0) = \varphi_\nu$ est la densité de flux incident en $z = 0$, par unité de surface émettrice (ce qui est ici équivalent à la luminance incidente en $z = 0$ puisque nous sommes dans le cadre d'une incidence collimatée normale). Si on note q_ν la densité de flux incident en $z = 0$ une fois exprimée en nombre de photons plutôt qu'en Watts (voir Fig. 1.5.c), soit

$$q_\nu = \frac{\varphi_\nu}{h\nu} \quad (1.19)$$

alors on obtient l'expression suivante de \mathcal{A} :

$$\mathcal{A}(z_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \sigma_{a,\nu} q_\nu \exp(-k_{a,\nu} z_0) \quad (1.20)$$

1.2.4.1 Dimension spectrale

Intéressons nous dans un premier temps à la dimension spectrale de ce problème. On introduit pour cela la densité fréquentielle \mathcal{A}_ν de la vitesse spécifique d'absorption des photons :

$$\mathcal{A}_\nu(z_0) = \sigma_{a,\nu} q_\nu \exp(-k_{a,\nu} z_0) \quad (1.21)$$

telle que $\mathcal{A}(z_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \mathcal{A}_\nu(z_0)$. Les spectres de \mathcal{A}_ν obtenus à partir de l'équation 1.21 (avec la section efficace d'absorption de la figure 1.6) pour différentes distances z_0 à la paroi émettrice sont représentés à la figure 1.7. Afin d'analyser ces courbes, il faut commencer par comparer le spectre d'absorption des micro-organismes Fig. 1.6.a et le spectre d'émission des LED blanches utilisées Fig. 1.6.b. Les LED ont deux larges pics d'émission : le premier dans le bleu ($\lambda_0 \approx 400, 500 \text{ nm}$), une région spectrale très bien utilisée par les micro-organismes (pic d'absorption), et le second dans le vert et jusqu'au jaune ($\lambda_0 \approx 530, 600 \text{ nm}$), région spectrale qui est à l'opposé très peu utilisée par les micro-organismes. Par ailleurs, les micro-organismes ont un second pic d'absorption dans le rouge, autour de $\lambda_0 \approx 675 \text{ nm}$. On comprend immédiatement que le bleu et le rouge vont être absorbés dans les premiers millimètres de l'épaisseur du volume réactionnel alors que le vert et le jaune vont traverser le photobioréacteur, comme cela est visible sur la photographie Fig. 1.5.a. On retrouve ce comportement dans les spectres de \mathcal{A}_ν Fig. 1.7. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que \mathcal{A}_ν ne représente pas seulement la lumière présente dans le milieu mais la proportion qui en est absorbée. Il y a donc une balance entre l'absorption en z_0 qui augmente avec $\sigma_{a,\nu}$ et la transmission de la lumière jusqu'à z_0 qui elle, décroît exponentiellement avec $\sigma_{a,\nu}$ (voir Eqs. 1.21 et 1.11). Pour les très faibles distances à la paroi émettrice (Fig. 1.7.a), \mathcal{A}_ν possède bien deux pics correspondant aux pics d'absorption des micro-organismes. Puis, lorsque z_0 augmente, ces longueurs d'ondes s'épuisent (par absorption) jusqu'à arriver à une zone autour de $z_0 = 1 \text{ cm}$ où le spectre de \mathcal{A}_ν est quasiment gris : toutes les longueurs d'ondes participent avec le même poids à la photosynthèse. Enfin, lorsqu'on s'éloigne encore de la paroi émettrice (Fig. 1.7.b), la tendance s'inverse : le bleu et le rouge sont totalement épuisés ; le vert et le jaune participent majoritairement à la réaction de photosynthèse. Il est important de garder en tête cette dimension spectrale du problème mais nous allons pour l'instant l'abandonner afin de simplifier encore la discussion sur la répartition du champ de \mathcal{A} dans le volume réactionnel et d'en déduire quelques principes qualitatifs sur l'optimisation des photobioréacteurs. Nous retrouverons cette composante spectrale à partir du chapitre 2.

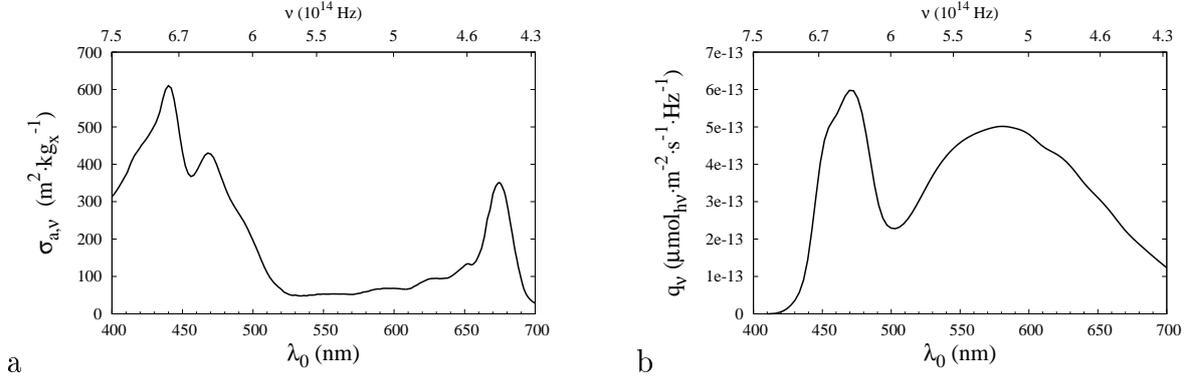


FIGURE 1.6: a : Spectre de la section efficace d'absorption de *Chlamydomonas reinhardtii* dans le cadre d'un modèle d'absorption par une solution de pigments ; résultats obtenus pour la composition pigmentaire " $q_{\Gamma} = 1000 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}, \gamma \simeq 1$ " donnée à l'annexe B et pour la base de données des propriétés d'absorption des pigments *in vivo* présentée au chapitre 2. b : Rappel du spectre d'émission des LED décrit à la figure 1.5. Sur les deux figures, ν et λ_0 sont respectivement la fréquence du rayonnement et sa longueur d'onde dans le vide.

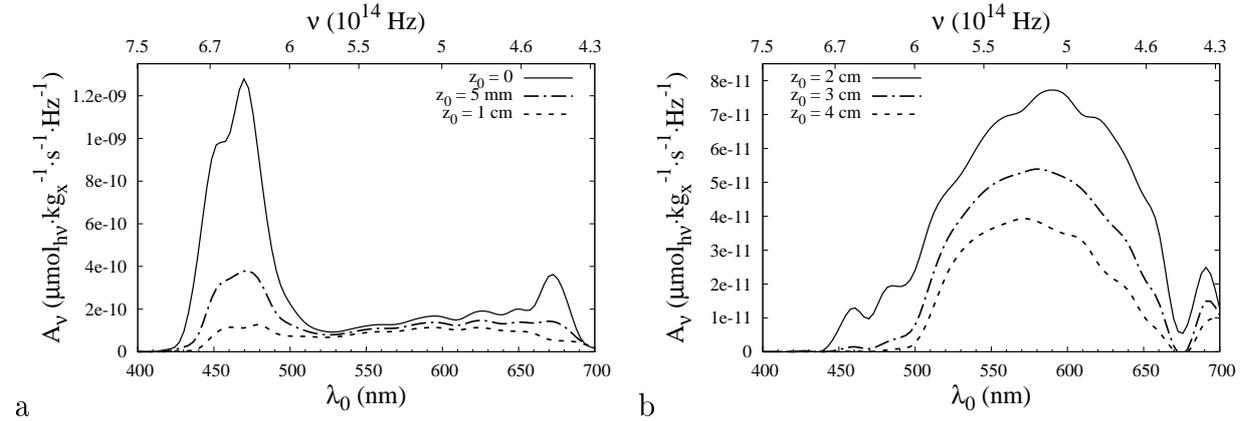


FIGURE 1.7: Spectre de la densité fréquentielle \mathcal{A}_{ν} de la vitesse spécifique d'absorption des photons dans la configuration simplifiée de la figure 1.5 pour un milieu purement absorbant dont les propriétés sont données à la figure 1.6.a. L'épaisseur du milieu est $E = 4 \text{ cm}$; $C_x = 0.57 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$; la densité surfacique de flux incident $q_{\Gamma} = \int_{\nu_{\min}}^{\nu_{\max}} d\nu q_{\nu}$ est de $500 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; le profil de q_{ν} est rappelé à la figure 1.6.b. a : A proximité de la paroi émettrice; z_0 petit. b : Plus grandes distances de la paroi émettrice; $z_0 \rightarrow E$. Par anticipation avec la suite de la discussion, nous remarquons que la valeur de $\mathcal{A} = \int_{\nu_{\min}}^{\nu_{\max}} d\nu \mathcal{A}_{\nu}$ correspondant à l'abscisse $z_0 = E = 4 \text{ cm}$ est proche du point de compensation (nous sommes ici dans une situation à $\gamma = 1$), ce qui implique que les profils représentés à la figure b ont une importance significative dans l'analyse du procédé.

1.2.4.2 Approximation d'un milieu gris équivalent

Les propriétés d'absorption sont dans la suite de ce chapitre considérées comme étant indépendantes de la fréquence ν du rayonnement (le milieu est gris et on note $\sigma_{a,\nu} \equiv \sigma_a$). L'expression de la vitesse spécifique d'absorption des photons Eq. 1.20 se simplifie ainsi à :

$$\mathcal{A}(z_0) = \sigma_a q_\Gamma \exp(-C_x \sigma_a z_0) \quad (1.22)$$

où $q_\Gamma = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu q_\nu$ est la densité surfacique de flux incident en $z = 0$ et $C_x \sigma_a$ est le coefficient d'absorption linéique du milieu (voir Eq. 1.11). Cette expression sera utilisée dans les sections suivantes afin d'illustrer simplement la dépendance spatiale du champ de \mathcal{A} dans le volume réactionnel. σ_a sera alors la moyenne fréquentielle de la section efficace monochromatique, pondérée par le spectre des LED : $\sigma_a = 1/q_\Gamma \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu q_\nu \sigma_{a,\nu}$.

1.2.5 Couplage du transfert radiatif à la cinétique locale de la photosynthèse

Nous nous concentrons maintenant sur le champ de rayonnement Eq. 1.22 au sein de la configuration radiative simplifiée qui vient d'être décrite (voir Fig. 1.5 à laquelle s'ajoute l'hypothèse d'un milieu gris seulement absorbant) et nous analysons son couplage à la cinétique locale de la photosynthèse. Sous l'action du mélange qui est mis en œuvre dans le photobioréacteur torique, les micro-organismes explorent en permanence l'intégralité du volume réactionnel. Ils expérimentent donc toutes les valeurs du champ de \mathcal{A} . Les temps caractéristiques de déplacement des micro-organismes étant beaucoup plus longs que ceux des mécanismes de conversion des photons aux antennes photosynthétiques (voir Sec. 1.2.1.2), la loi de couplage décrite à l'équation 1.9 est valable localement : la vitesse de réaction volumique locale $r_x(z_0)$ à l'abscisse z_0 est une fonction de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(z_0)$. La dépendance spatiale de l'équation 1.9 est exclusivement due à $\mathcal{A}(z_0)$, et il vient :

$$r_x(z_0) = C_x \left[\rho_M \bar{\phi}' \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K \mathcal{A}(z_0)}{K + \mathcal{A}(z_0)} - \beta \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}(z_0)} \right] \quad (1.23)$$

Dans la suite, nous nous attacherons à décrire les variations spatiales de $r_x(z_0)$ et à analyser leur impact sur l'efficacité du photobioréacteur.

1.2.5.1 Distribution spatiale de la productivité locale

Le champ de \mathcal{A} obtenu à partir de l'équation 1.22 et le champ de productivité locale r_x correspondant (voir Eq. 1.23) sont représentés à la figure 1.8. On distingue deux zones au sein du photobioréacteur, séparées par l'iso-surface $\mathcal{A} = \mathcal{A}_c$ correspondant au point de compensation (*i.e* sur laquelle le taux de production de biomasse par photosynthèse égale exactement le taux de consommation de biomasse par respiration, voir Fig. 1.4) :

- Dans la zone où $\mathcal{A} > \mathcal{A}_c$, il y a globalement production de biomasse par photosynthèse.
- Dans la zone "sombre" où $\mathcal{A} < \mathcal{A}_c$, il y a globalement consommation de biomasse (productivités négatives) pour une culture de micro-algues eucaryotes³.

3. Pour les eucaryotes, les processus de photosynthèse et de respiration sont mis en œuvre simultanément dans des organites distincts (structures spécialisées : les chloroplastes et les mitochondries). Dans le cas des cyanobactéries, la productivité dans cette zone sombre est nulle car photosynthèse et respiration sont mises en œuvre sur les mêmes chaînes de transporteurs d'électrons et le métabolisme n'a pas le temps de basculer d'un mode de fonctionnement à l'autre lors des passages rapides dans les régions où $\mathcal{A} < \mathcal{A}_c$. En effet, sous l'action du mélange les micro-organismes explorent l'intégralité du volume réactionnel en un temps beaucoup plus court que le temps caractéristique de réponse de leur métabolisme (à l'opposé du temps caractéristique de réponse des antennes photosynthétiques qui est lui beaucoup plus court que le temps de déplacement dans le volume réactionnel). Dans le cas des cyanobactéries, la zone sombre est donc un volume mort de productivité nulle dont l'agitation correspond quoi qu'il en soit à un coût énergétique inutile qu'il convient d'éviter. Bien que cette image soit validée expérimentalement, on note que les implications sur l'étude des couplages à l'échelle du micro-organisme sont encore mal comprises.

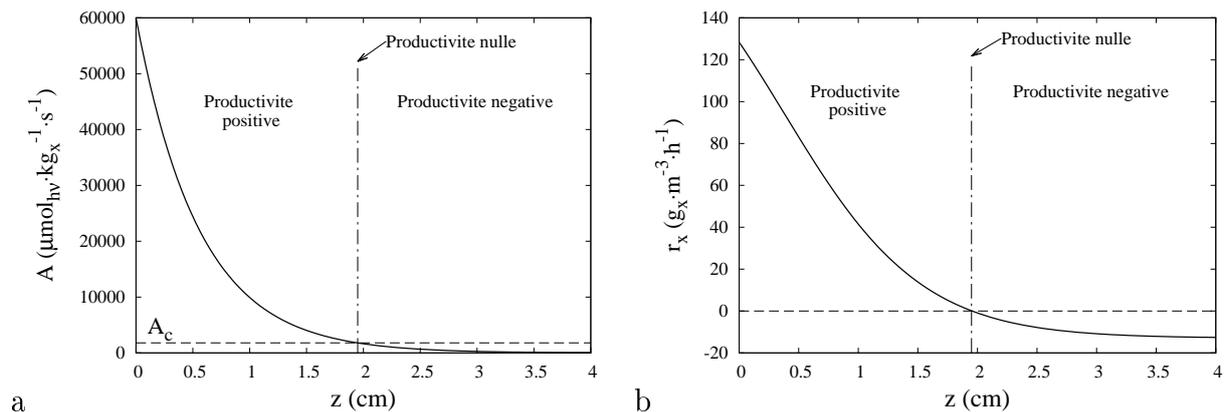


FIGURE 1.8: Champs dans la configuration simplifiée du photobioréacteur torique Fig. 1.5 pour un milieu gris purement absorbant. $E = 4 \text{ cm}$; $C_x = 0.9 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$; $q_\Gamma = 300 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; $\sigma_a = 200 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$. a : Champ de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} . b : Champ de la productivité volumique locale r_x pour la loi de couplage de *Chlamydomonas reinhardtii* (voir l'annexe B et fig. 1.4).

1.2.5.2 Présentation d'une règle d'optimisation des photobioréacteurs

De l'existence des deux zones du volume réactionnel décrites dans le paragraphe précédent découle une règle d'optimisation des photobioréacteurs qui est maintenant bien reconnue dans la communauté [7, 24, 25], et qui stipule que la fraction γ du volume réactionnel correspondant à des valeurs de \mathcal{A} supérieures à \mathcal{A}_c doit être égale à un. Afin de détailler cette règle (qui sous-entend notamment que, malgré sa définition, γ peut prendre des valeurs supérieures à l'unité) considérons les trois configurations radiatives analysées à la figure 1.9.a pour le champ de \mathcal{A} (voir Eq. 1.22) et à la figure 1.9.b pour le champ de productivité locale r_x (voir Eq. 1.23) :

1. $\mathbf{C}_x = 0.2 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$: $\gamma > 1$. La concentration en micro-organismes C_x est trop faible, ce qui aboutit à de faibles performances car d'une part, la majeure partie du rayonnement incident traverse la lame sans être absorbée (et est perdue à l'arrière du réacteur, en E) et d'autre part, les valeurs élevées de \mathcal{A} correspondent à de faibles efficacités énergétiques des réactions primaires de la photosynthèse. Dans ce cas, la fraction volumique éclairée γ du volume réactionnel est "supérieure à 1". Ce que la communauté entend ici par $\gamma > 1$ est que pour un milieu semi-infini l'abscisse à laquelle le profil de \mathcal{A} prendrait la valeur \mathcal{A}_c est bien supérieure à l'épaisseur E du photobioréacteur.
2. $\mathbf{C}_x = 0.9 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$: $\gamma < 1$. A l'opposé de la situation 1, lorsque la concentration C_x est trop élevée une partie du réacteur correspond à des valeurs de \mathcal{A} inférieures à \mathcal{A}_c , aboutissant à une fraction γ inférieure à 1. La situation n'est pas non plus optimale car cette zone sombre où $\mathcal{A} < \mathcal{A}_c$ correspond à une productivité négative.
3. $\mathbf{C}_x = 0.45 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$: $\gamma = 1$. Seule la situation dans laquelle $\gamma = 1$ est idéale. La concentration est telle que le point de compensation est atteint exactement en E . Dans ce cas, on maximise le nombre de photons contribuant à la réaction de photosynthèse (c'est-à-dire le nombre de photons absorbés dans des zones où $\mathcal{A} > \mathcal{A}_c$).

1.2.6 Productivité moyenne d'un photobioréacteur

Lorsque l'on souhaite pousser plus loin l'analyse du procédé dans son ensemble, la grandeur la plus communément employée est la productivité volumique moyenne $\langle r_x \rangle$ qui s'exprime comme la moyenne de la productivité volumique locale $r_x(\mathbf{x}_0)$ sur le domaine réactionnel \mathcal{V} :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 \frac{1}{V} r_x(\mathbf{x}_0) \quad (1.24)$$

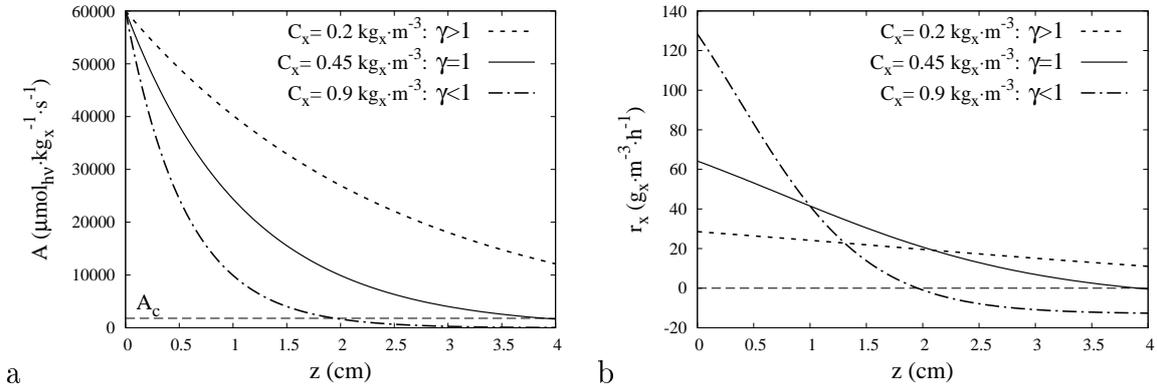


FIGURE 1.9: Règle du $\gamma = 1$ dans la configuration simplifiée du photobioréacteur torique Fig. 1.5 pour un milieu gris purement absorbant : $E = 4 \text{ cm}$; $q_{\Gamma} = 300 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; $\sigma_a = 200 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$. a : Champ de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} . b : Champ de la productivité volumique locale r_x pour la loi de couplage de *Chlamydomonas reinhardtii* (voir l'annexe B et fig. 1.4). Les figures a et b sont obtenues pour trois concentrations C_x représentatives des situations $\gamma < 1$, $\gamma = 1$, $\gamma > 1$.

où V est le volume de \mathcal{V} . Même si l'on choisit ainsi de raisonner à l'aide d'une grandeur moyenne, il s'agit bien d'une façon de quantifier la productivité totale du réacteur (puisque \mathcal{V} est connu), c'est-à-dire la somme de toutes les cinétiques locales.

1.2.6.1 Evolution de la productivité moyenne en fonction de la concentration en biomasse

Dans le cas de la configuration que nous avons choisie (configuration radiative quasi-monodimensionnelle du photobioréacteur torique, absorption pure, milieu gris) $\langle r_x \rangle = \int_0^E dz_0 \frac{1}{E} r_x(z_0)$ s'écrit simplement :

$$\langle r_x \rangle = C_x \left\{ C_1 K + \frac{C_1 K}{C_x \sigma_a E} \ln \left(\frac{\sigma_a q_{\Gamma} + K}{\sigma_a q_{\Gamma} + K \exp(C_x \sigma_a E)} \right) + \frac{C_2 K}{C_x \sigma_a E} \ln \left(\frac{\sigma_a q_{\Gamma} + K_r}{\sigma_a q_{\Gamma} + K_r \exp(C_x \sigma_a E)} \right) \right\} \quad (1.25)$$

où $C_1 = \rho_M \bar{\phi}' \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}}$ et $C_2 = \beta \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}}$. Nous verrons au chapitre 6 que lorsque la géométrie du photobioréacteur est plus complexe, le calcul de $\langle r_x \rangle$ pose au contraire des difficultés conséquentes. Mais ici, l'évolution de $\langle r_x \rangle$ en fonction de C_x est obtenue facilement à partir

de l'équation 1.25, ce que nous représentons à la figure 1.10.a. Ces résultats reproduisent de manière qualitative les résultats expérimentaux obtenus avec le photobioréacteur torique dans [16], mais nous retiendrons pour l'instant avant tout que la figure 1.10.a confirme strictement les analyses de la section 1.2.5.2 : l'optimum de la productivité volumique est bien obtenu pour $\gamma = 1$.

Les analyses de la section 1.2.5.2 étaient menées en toute généralité et γ pouvait dépendre d'ajustements à la fois de la géométrie, de la densité surfacique de flux q_Γ et de la concentration. Si l'on s'en tient à la figure 1.10.a, et que l'on analyse seulement l'effet de la concentration, il est alors intéressant d'interpréter cet optimum en notant que

$$\langle r_x \rangle = C_x \langle J_x \rangle \quad (1.26)$$

où

$$\langle J_x \rangle = \left\{ C_1 K + \frac{C_1 K}{C_x \sigma_a E} \ln \left(\frac{\sigma_a q_\Gamma + K}{\sigma_a q_\Gamma + K \exp(C_x \sigma_a E)} \right) + \frac{C_2 K}{C_x \sigma_a E} \ln \left(\frac{\sigma_a q_\Gamma + K_r}{\sigma_a q_\Gamma + K_r \exp(C_x \sigma_a E)} \right) \right\} \quad (1.27)$$

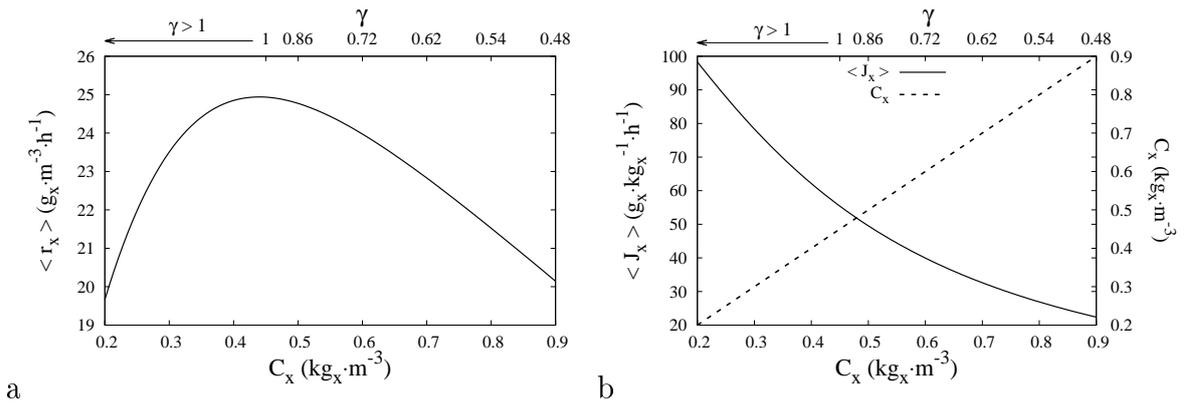


FIGURE 1.10: Productivité moyenne du photobioréacteur torique pour un milieu gris purement absorbant : $E = 4 \text{ cm}$; $q_\Gamma = 300 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; $\sigma_a = 200 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$. a. Productivité moyenne $\langle r_x \rangle$ en fonction de la concentration en biomasse. b. Vitesse spécifique moyenne $\langle J_x \rangle$ de production de biomasse. $\langle J_x \rangle$ est la moyenne des vitesses de production de tous les micro-organismes du volume réactionnel ($\langle J_x \rangle = \frac{\langle r_x \rangle}{C_x}$).

Ainsi défini, $\langle J_x \rangle$ est bien une moyenne sur l'ensemble du réacteur, mais il s'agit de la moyenne d'une propriété du micro-organisme : $\langle J_x \rangle$ est la moyenne des vitesses spécifiques de production de biomasse de tous les micro-organismes présents dans le volume réactionnel. Cette propriété dépend de l'éclairement, donc de l'écrantage du rayonnement par les autres micro-organismes. On observe donc à la figure 1.10.b que lorsque la concentration en biomasse augmente, $\langle J_x \rangle$ diminue : le rayonnement étant de plus en plus écranté, la production par micro-organisme diminue en moyenne. Cette diminution de la vitesse de production à l'échelle du micro-organisme est compensée, lorsque l'on s'intéresse à $\langle r_x \rangle$, par un autre effet qui se situe à l'échelle de l'élément de volume. Le terme C_x de l'équation 1.26 est celui qui nous a permis de passer de la section efficace au coefficient d'absorption linéique dans le paragraphe 1.2.2, mais il s'interprète ici simplement : plus il y a de micro-organismes soumis au même éclairement au même point, plus la productivité de l'élément de volume autour de ce point est grande. L'optimum de productivité $\langle r_x \rangle$ s'interprète alors comme un compromis entre un grand nombre de micro-organismes (C_x grand) produisant peu en moyenne (écrantage important) et peu de micro-organismes (C_x faible) produisant beaucoup en moyenne (faible écrantage). Cette interprétation est représentée à la figure 1.10.b.

Nous revenons ici à une discussion où C_x n'est plus le seul paramètre libre afin de décliner la règle d'optimisation de la section 1.2.5.2 dans deux cas particuliers de photobioréacteurs intensifiés. La situation optimale " $\gamma = 1$ " qui a été décrite agrège la géométrie du réacteur (ici paramétrée par E), la concentration en micro-organismes C_x et la densité surfacique de flux incident q_Γ . Dans le concept AlgoFilm Fig. 1.1, q_Γ est fixé par la qualité du rayonnement solaire incident puisqu'il s'agit d'une technologie à captation directe. Pour une opération à une concentration en biomasse donnée (C_x le plus élevé possible, voir notre première analyse du procédé au paragraphe 1.2.1.5) ce concept a l'avantage théorique de permettre un ajustement de l'épaisseur E du film tombant grâce à une régulation du débit et à un ajustement de l'angle d'inclinaison, ce qui permet de rester à $\gamma = 1$. Dans le cas du concept DiCoFluV Fig. 1.2, la situation est différente car la géométrie du procédé est fixe. La règle du $\gamma = 1$ (en admettant que cette règle soit transposable à des géométries multidimensionnelles) relie la concentration en micro-organismes à la densité surfacique de flux incident q_Γ . A ce stade, il existe donc une infinité de situations optimales, correspondant à une infinité de couples (C_x, q_Γ) assurant que $\gamma = 1$. Comme cela a déjà été évoqué, la priorité dans cette technologie est de maximiser les productivités en surface de captation solaire, puis seulement dans un second temps, d'optimiser les productivités volumiques afin de réduire les coûts associés au mélange du milieu réactionnel. En d'autres termes, il faut en premier lieu veiller à ce que le rayonnement solaire incident soit converti avec la meilleure efficacité énergétique possible (la productivité surfacique étant proportionnelle à l'efficacité thermodynamique), même si cela

entraîne des productivités volumiques plus faibles. Nous avons vu à la figure 1.4.c que le rayonnement solaire est converti efficacement lorsque les valeurs de la vitesse locale d'absorption des photons \mathcal{A} sont faibles (mais bien sûr supérieures au point de compensation \mathcal{A}_c), ce qui correspond à de faibles vitesses de production de biomasse. Le fonctionnement optimum du photobioréacteur DiCoFluV est donc obtenu, en plus de la règle du $\gamma = 1$, pour la densité surfacique de flux q_Γ la plus faible possible (assurant ainsi des faibles valeurs de \mathcal{A}) compatible avec la valeur du point de compensation \mathcal{A}_c du micro-organisme considéré (\mathcal{A} doit rester supérieur à \mathcal{A}_c dans tout le volume réactionnel). Il a en effet été montré théoriquement et validé expérimentalement que l'efficacité thermodynamique d'un photobioréacteur éclairé artificiellement avec une incidence collimatée (indépendamment de sa géométrie) est environ proportionnelle à $q_\Gamma^{-1/5}$ [7]. Le concept DiCoFluV, grâce à une surface interne éclairée bien supérieure à la surface de captation, permet de distribuer le rayonnement solaire incident dans le volume réactionnel avec des valeurs très faibles de q_Γ à la surface des fibres optiques, et permet ainsi d'atteindre des productivités en surface de captation solaire élevées (chaque photon capté est utilisé efficacement).

1.2.6.2 Analyse de la productivité moyenne à partir de la densité de probabilité de \mathcal{A}

Nous avons déjà mentionné que le mélange au sein du réacteur permet de raisonner en admettant que les micro-organismes visitent uniformément l'ensemble du domaine réactionnel. Or, la différence entre deux points \mathbf{x}_1 et \mathbf{x}_2 du domaine se résume pour nous à la valeur de \mathcal{A} en ces points : si $\mathcal{A}(\mathbf{x}_1) = \mathcal{A}(\mathbf{x}_2)$, alors les deux points contribuent à la photosynthèse de manière identique. En terme d'analyse, toute l'information dont nous avons besoin est donc contenue dans la distribution de \mathcal{A} , soit formellement, dans la fonction densité de probabilité $p_{\mathcal{A}}(a)$ d'observer que $\mathcal{A}(\mathbf{x}) = a$ lorsque l'on tire aléatoirement une position \mathbf{x} de manière uniforme au sein du domaine réactionnel. On peut ainsi judicieusement masquer l'information spatiale en réécrivant $\langle r_x \rangle$ (voir Eq. 1.24) de la façon suivante :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 \frac{1}{V} r_x(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) = \int_{\mathcal{A}_{min}}^{\mathcal{A}_{max}} da p_{\mathcal{A}}(a) r_x(a) \quad (1.28)$$

où \mathcal{A}_{min} est la valeur minimale que prend \mathcal{A} au sein du volume, \mathcal{A}_{max} est sa valeur maximale. De la même façon, la vitesse spécifique moyenne $\langle J_x \rangle$ de production de biomasse s'écrit

$$\langle J_x \rangle = \int_{\mathcal{A}_{min}}^{\mathcal{A}_{max}} da p_{\mathcal{A}}(a) J_x(a) \quad (1.29)$$

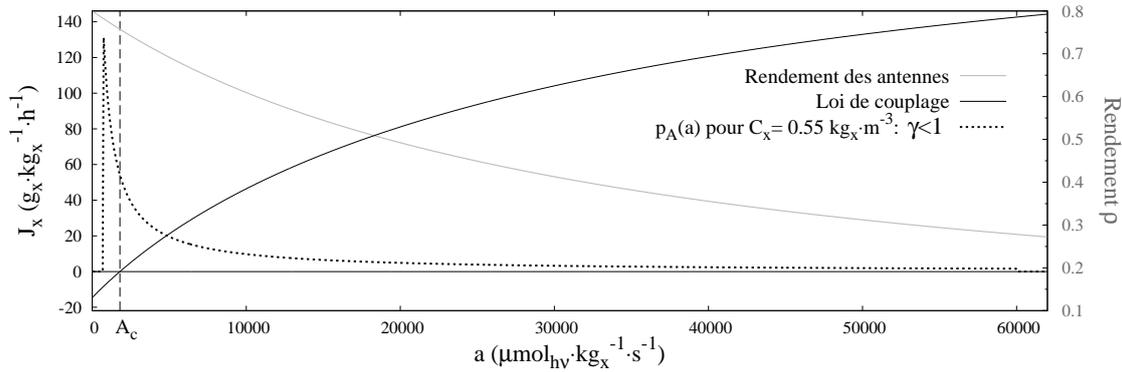


FIGURE 1.11: Densités de probabilité $p_{\mathcal{A}}(a)$ des valeurs de la vitesse spécifique d'absorption des photons \mathcal{A} dans le volume réactionnel de la configuration simplifiée du photobioréacteur torique Fig. 1.5 pour un milieu gris purement absorbant : $E = 4 \text{ cm}$; $\sigma_a = 200 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$; $q_{\square} = 300 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. La densité $p_{\mathcal{A}}(a)$ est superposée à la figure 1.4.c de la loi de couplage afin de visualiser le poids de chaque valeur de \mathcal{A} observée dans le volume. $p_{\mathcal{A}}(a)$ est représenté avec une échelle arbitraire.

où $J_x(a)$ est la fonction Eq. 1.8, et le rendement moyen des antennes $\langle \rho \rangle$ s'écrit

$$\langle \rho \rangle = \int_{\mathcal{A}_{min}}^{\mathcal{A}_{max}} da p_{\mathcal{A}}(a) \rho(a) \quad (1.30)$$

où $\rho(a)$ est la fonction Eq. 1.1. Dans la configuration quasi-monodimensionnelle d'épaisseur E du réacteur torique, \mathcal{A} ne dépend que de z et la fonction $\mathcal{A}(z)$ est bijective. On obtient alors facilement l'expression de $p_{\mathcal{A}}(a)$:

$$p_{\mathcal{A}}(a) = \frac{-1}{E} \frac{1}{\mathcal{A}'} = \frac{1}{C_x \sigma_a E} \frac{1}{a} \quad (1.31)$$

où \mathcal{A}' est la dérivée de \mathcal{A} par rapport à sa variable z (voir Eq. 1.22) et où l'on vérifie bien que la densité de probabilité $p_{\mathcal{A}}(a)$ est normalisée ($\int_{\mathcal{A}_{min}}^{\mathcal{A}_{max}} da p_{\mathcal{A}}(a) = 1$) puisque $\mathcal{A}_{min} = \sigma_a q_{\square} \exp(-C_x \sigma_a E)$ et $\mathcal{A}_{max} = \sigma_a q_{\square}$. Lorsque l'on superpose cette densité de probabilité aux caractéristiques cinétiques en fonction de \mathcal{A} (voir Fig. 1.4.c), on obtient une représentation de la distribution des valeurs a que prend \mathcal{A} au sein du volume réactionnel, que l'on peut interpréter au regard des valeurs de la vitesse de production $J_x(a)$ des micro-organismes et du rendement $\rho(a)$ des antennes. La figure 1.11 propose une telle interprétation du photobioréacteur torique pour une situation où $\gamma < 1$ (fortes concentrations

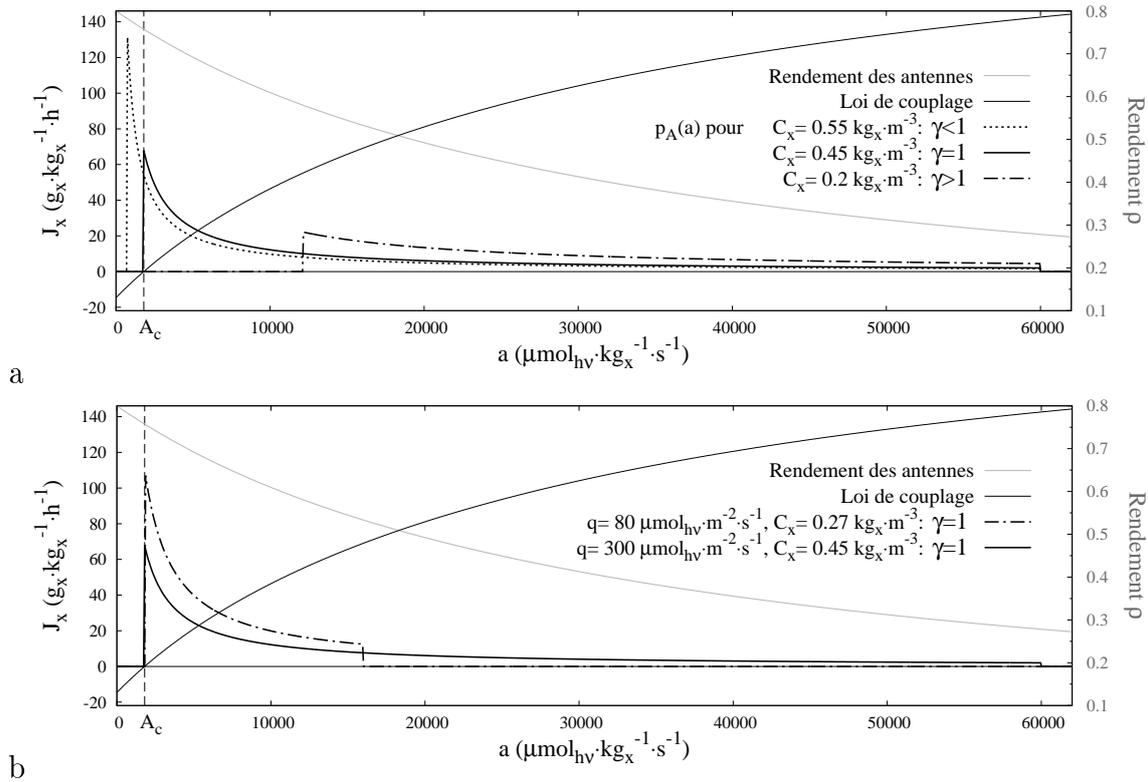


FIGURE 1.12: Densités de probabilité $p_{\mathcal{A}}(a)$ des valeurs de la vitesse spécifique d'absorption des photons \mathcal{A} dans le volume réactionnel de la configuration simplifiée du photobioréacteur torique Fig. 1.5 pour un milieu gris purement absorbant. $E = 4 \text{ cm}$; $\sigma_a = 200 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$. a : Trois situations $\gamma < 1$, $\gamma = 1$ et $\gamma > 1$ obtenues en faisant varier la concentration C_x ; $q_0 = 300 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. b : Deux situations à $\gamma = 1$ pour différentes densités surfaciques de flux incidentes q_0 , la concentration étant ajustée pour assurer $\gamma = 1$. Sur chacune des figures $p_{\mathcal{A}}(a)$ est superposé à la figure 1.4.c. $p_{\mathcal{A}}(a)$ est représenté avec une échelle arbitraire. Les aires sous les courbes $p_{\mathcal{A}}(a)$ représentées sur la même figure sont égales.

C_x). Nous observons que dans le cas du champ de \mathcal{A} étudié ici (voir Eq. 1.22), la densité de probabilité $p_{\mathcal{A}}(a)$ est maximale pour la valeur minimale \mathcal{A}_{\min} de \mathcal{A} . Pour la situation à $\gamma < 1$ que nous considérons, \mathcal{A}_{\min} est inférieur au point de compensation \mathcal{A}_c et la partie de l'intégrale $\langle J_x \rangle$ Eq. 1.29 correspondant à $\int_{\mathcal{A}_{\min}}^{\mathcal{A}_c} da p_{\mathcal{A}}(a) J_x(a)$ donne une contribution négative à la vitesse de production. Puis, lorsque la valeur a de \mathcal{A} augmente, la densité de probabilité décroît, la vitesse $J_x(a)$ augmente et le rendement $\rho(a)$ diminue. La figure 1.12.a compare les différents résultats obtenus pour chacune des situations $\gamma < 1$, $\gamma = 1$, $\gamma > 1$ que nous avons représentées dans le champ à la figure 1.9. Cette représentation en terme de la

densité de probabilité de \mathcal{A} permet notamment de distinguer différentes situations à $\gamma > 1$ (même si une seule situation à $\gamma > 1$ est ici représentée), tant que ces situations correspondent à des densités $p_{\mathcal{A}}(a)$ différentes. De plus, nous pouvons ici mettre des images simples sur le choix d'optimisation qui a été discuté au paragraphe précédent pour le photobioréacteur DiCoFluV. La figure 1.12.b montre l'intérêt d'une dilution du rayonnement incident par rapport à de fortes valeurs du flux q_{Γ} : pour les deux situations à $\gamma = 1$ qui sont représentées, lorsque $q_{\Gamma} = 80 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, le rendement des antennes est localement toujours supérieur à 50% alors que pour $q_{\Gamma} = 300 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, ce rendement descend jusqu'à 30%. Cette vision synthétique est très adaptée à l'analyse du procédé car elle unifie l'ensemble des concepts d'optimisation de la figure 1.9. Elle permet notamment d'étendre la règle du $\gamma = 1$ (approche fondamentalement monodimensionnelle) à des géométries quelconques et autorise la distinction entre différentes situations qui étaient jusqu'alors confondues (par exemple, les situations à $\gamma > 1$). Dans la suite de notre étude, nous garderons à l'esprit les images mentales associées à cette représentation, sans pour autant en donner explicitement les tracés.

1.2.6.3 Pour aller plus loin d'un point de vue radiatif

Il émane trois grandes questions radiatives de la discussion que nous venons d'avoir. Premièrement, est-il possible de développer une analyse fine des champs de rayonnement dans les photobioréacteurs lorsque l'on inclut toute leur complexité : diffusion multiple anisotrope, réflexion aux parois, géométrie complexe, intégration spectrale ? Puis, est-il possible de prédire les productivités intégrées et leurs sensibilités à différents paramètres afin de tester les stratégies d'optimisation que nous venons de développer sur un cas monodimensionnel simple dans des systèmes plus complexes tels que le photobioréacteur DiCoFluV ? Enfin, est-il possible de proposer des images simples de la physique du transfert radiatif (notamment en diffusion multiple) pouvant être étroitement combinées au type de raisonnements que nous venons d'illustrer, tout en préservant à chaque étape un lien direct à des considérations d'optimisation ? Ces questions ne seront pas abordées séquentiellement dans les chapitres suivants mais elles résument l'ensemble de nos motivations.

Chapitre 2

Détermination prédictive des propriétés radiatives des micro-organismes photosynthétiques

Résumé :

Ce chapitre propose une méthodologie générale pour la détermination des propriétés d'absorption et de diffusion des suspensions de micro-organismes photosynthétiques. Cette démarche de modélisation est mise en œuvre pour l'obtention des propriétés radiatives de trois micro-organismes représentant la diversité métabolique et structurale rencontrée dans l'étude des photobioréacteurs : la bactérie *Rhodospirillum rubrum*, la cyanobactérie *Arthrospira platensis* et la micro-algue *Chlamydomonas reinhardtii*. Les résultats obtenus sont validés sur des mesures expérimentales de transmittivités hémisphériques en configuration de diffusion multiple. Les propriétés radiatives résultantes seront utilisées par la suite dans l'analyse du procédé.

2.1 Problématique

2.1.1 Attentes, état de l'art et résumé de la démarche

Notre étude radiative des photobioréacteurs commence par ce chapitre dédié à la détermination des propriétés d'absorption et de diffusion de la lumière par les micro-organismes photosynthétiques. Cette première étape est nécessaire pour aller vers une description fine des transferts radiatifs car la pertinence de tous les résultats développés ultérieurement dépend

de la précision de ces propriétés. Or, cette question n'est pas triviale et il n'existe pas à notre connaissance de base de données satisfaisante incluant les informations spectrales et angulaires que notre étude nécessite. L'obtention de ces propriétés demande, soit de réaliser des mesures expérimentales très pointues, soit, dans un acte de modélisation, de résoudre les équations de Maxwell pour des particules dont les types d'hétérogénéités, de tailles et de formes mettent encore souvent en défaut les méthodes classiques telles que Mie, T-Matrice, etc. Dans la littérature internationale dédiée à l'étude des photobioréacteurs, l'équipe de Laurent Pilon (USA, UCLA) est la seule, à notre connaissance, à se concentrer sur la détermination expérimentale des propriétés radiatives des micro-organismes photosynthétiques grâce à des expériences en diffusion simple, incluant la mesure de la répartition angulaire des puissances diffusées [26, 27, 12]. En ce qui concerne les approches de modélisation électromagnétique, les équipes françaises de l'Institut Pascal et du laboratoire GEPEA sont les plus avancées en direction d'une chaîne méthodologique héritée du savoir-faire de la communauté de l'océanographie, ou plus largement de celui de l'ensemble des communautés confrontées à la problématique de l'interaction onde-particule, que ce soit la physique atmosphérique, l'astrophysique ou de nombreux pans des sciences pour l'ingénieur. Dans ce large contexte, la préoccupation de ces deux équipes est la prise en compte des spécificités, non seulement des micro-organismes photosynthétiques (par rapport à d'autres particules), mais aussi des exigences d'analyse et d'optimisation du génie des procédés photosynthétiques.

Les questions expérimentales et théoriques qui viennent d'être évoquées ont progressé graduellement durant les quinze dernières années, mais sont restées largement ouvertes. Face à ce constat, de nombreuses équipes n'ont pas eu d'autres choix que de faire appel aux outils empiriques disponibles, développés par la communauté pendant les vingt dernières années [28, 15, 13, 29, 30, 31, 14]. Ces outils s'appuient sur des lignes de modélisation radicalement différentes de celle que nous développerons. La dépendance spatiale des observables radiatives y est en effet fixée a priori selon des lois inspirées de la physique du rayonnement (Loi d'extinction de Beer-Lambert, lois hyperboliques, etc), avec un jeu de paramètres libres qui sont ajustés au cas par cas à partir des données expérimentales qui sont disponibles. Bien sûr ces approches empiriques rencontrent vite leurs limites dès que l'on étudie divers modes d'opération du procédé, de par la nécessité d'ajuster les paramètres pour chaque situation d'étude (par exemple, la géométrie du réacteur et la fréquence du rayonnement), ou dès que la géométrie du procédé devient complexe (les données expérimentales étant alors difficiles à obtenir). C'est cet enchaînement d'idées qui a conduit les équipes de l'Institut Pascal et du laboratoire GEPEA à identifier le besoin d'une méthodologie prédictive, basée sur des paramètres expérimentaux en nombre limité et "facilement" accessibles, représentant la variabilité des micro-organismes, d'une espèce à l'autre et en fonction des conditions de culture

(notamment en fonction des conditions d'éclairement) [3, 22, 32]. Nous nous inscrivons ici dans cette logique et le but du présent chapitre est donc de rassembler et compléter un savoir-faire afin de dessiner une chaîne méthodologique allant de la détermination des paramètres d'entrée jusqu'à la validation des résultats.

La plupart des méthodes utilisées dans ce chapitre sont décrites par ailleurs, indépendamment les unes des autres, dans la littérature dédiée à la modélisation de l'interaction onde-particule [33, 34, 35, 36]. L'ensemble de ces travaux s'articule autour d'un formalisme d'électromagnétisme qui est introduit au paragraphe 2.1.2. Au terme de ce paragraphe, le problème correspondant à la modélisation des propriétés radiatives d'une particule est posé de manière générale, et nous ne rentrons dans la spécificité de notre étude qu'à partir de la section 2.1.3, à travers une description détaillée des formes et des structures internes des micro-organismes. Il apparaît alors que la détermination des propriétés radiatives implique l'élaboration d'un modèle de connaissance des micro-organismes (c'est-à-dire de leur géométrie et de leurs caractéristiques internes en terme d'indices de réfraction), ainsi qu'une mise en œuvre du modèle électromagnétique (c'est-à-dire une résolution des équations de Maxwell pour ces diffuseurs). En pratique, ces deux tâches sont intimement liées car, même si nous disposions d'une description parfaite des propriétés électromagnétiques des micro-organismes, il serait impossible de résoudre les équations de Maxwell compte tenu du savoir-faire actuel : les hétérogénéités internes et les formes posent à ce jour des difficultés numériques incontournables. Notre modélisation électromagnétique passe donc par une simplification de la description des particules, et nous devons choisir des approximations acceptables au regard des exigences de notre étude. Le premier de ces choix est le suivant : nous refusons d'abandonner l'information sur la forme car il nous semble qu'il s'agit d'une caractéristique primordiale, vis-à-vis de l'interaction avec le rayonnement, qui distingue significativement les différentes espèces de micro-organismes. Par contre, nous sommes prêts à représenter les hétérogénéités internes à travers l'approximation d'un milieu homogène équivalent. En effet, cette approximation a été testée dans de nombreux cas et il apparaît qu'elle dégrade principalement les puissances diffusées aux grands angles [37, 38, 39, 40], ce qui nous semble ici acceptable puisque seule une très faible proportion de la puissance incidente sur un micro-organisme est rétrodiffusée (90% de la puissance diffusée est généralement contenue dans un angle solide d'ouverture $\sim 20^\circ$ autour de la direction d'incidence) et que, dans les situations radiatives que nous cherchons à étudier, le phénomène de rétrodiffusion a une influence limitée : les très rares photons diffusés dans les directions arrière n'ont que peu d'effet sur le transfert au sein du réacteur. Afin d'être en mesure de résoudre l'électromagnétisme, nous modifions donc notre description des diffuseurs, qui deviennent des particules

homogènes¹.

Si les micro-organismes que nous étudions étaient tous sphériques, cette simplification suffirait à permettre la résolution de l'électromagnétisme. Mais les micro-organismes photosynthétiques ont une grande diversité de formes, et la sphère est à l'heure actuelle la seule pour laquelle il est possible de résoudre les équations de Maxwell dans leur gamme de paramètres de taille. L'approximation à un milieu homogène équivalent ne suffit donc pas, et puisque nous tenons à conserver la description des formes, nous sommes cette fois-ci contraints de simplifier le modèle électromagnétique de l'interaction onde-particule. Il s'agit là d'une pratique courante qui correspond en général à l'utilisation d'approximations asymptotiques : l'approximation de Rayleigh lorsque les paramètres de tailles tendent vers zéro, l'approximation de l'optique géométrique lorsque les paramètres de tailles tendent vers l'infini, etc. Dans le cas des micro-organismes photosynthétiques, nous sommes dans des limites où les paramètres de tailles sont grands et où les contrastes d'indice sont faibles, ce qui correspond au domaine de validité de l'approximation de la diffraction anormale, que nous revisitons par l'approximation de Schiff au chapitre 3, section 3.3.3. L'utilisation conjointe de l'approximation d'un milieu homogène équivalent et de l'approximation de Schiff nous permet alors de disposer d'un modèle numériquement "manipulable", c'est-à-dire qui peut être abordé avec les méthodes numériques usuelles. Mais les temps de calcul associés, lorsqu'on inclut les prises de moyenne sur les distributions de tailles et d'orientations, sont de l'ordre de dix jours pour chaque longueur d'onde², ce qui est incompatible avec notre besoin de construire une base de données spectrale incluant plusieurs micro-organismes et diverses compositions internes. Le fait que l'intégration sur les statistiques de taille et les statistiques d'orientation soit une source de difficultés numériques nous a amenés à explorer l'idée d'employer la méthode de Monte Carlo pour la résolution de l'approximation de Schiff. En effet, si la méthode de Monte Carlo peut être utilisée pour intégrer numériquement les équations de l'électromagnétisme sous l'approximation de Schiff, alors on peut espérer que l'échantillonnage statistique nécessaire à une telle intégration suffira pour couvrir également

1. Le choix des approximations qui sont ici utilisées pour la simplification de la description des micro-organismes nous a été dicté par les spécificités de notre étude du procédé : nous gardons la forme mais notre diffuseur est maintenant homogène. Il convient de remarquer que pour d'autres applications, ces choix sont à juste titre symétriquement opposés. Dans le contexte océanographique de la télédétection par exemple, la rétrodiffusion du rayonnement solaire par les micro-organismes a au contraire une forte influence sur les observations. Les micro-organismes sont alors décrits comme des diffuseurs sphériques (approximation de la sphère équivalente) comportant une inclusion puisque les hétérogénéités sont dans ce cas plus importantes que la forme. La résolution de l'électromagnétisme est alors accessible, non pas parce qu'on a éliminé les hétérogénéités, mais parce qu'on a choisi de toujours se ramener à une géométrie sphérique (voir entre autres [37]).

2. Code spécifique basé sur des intégrations par quadratures développé sous Matlab 6.5. Temps de calculs sur un biprocesseur Xéon 2.8 GHz.

la double intégration taille/orientation, c'est-à-dire que le temps de calcul sera quasiment le même pour la détermination des propriétés radiatives du milieu, que pour celles d'un seul micro-organisme. Cependant, les non-linéarités dues à l'expression mathématique des observables nécessaires à notre étude ne sont pas immédiatement abordables dans le cadre théorique usuel de la méthode de Monte Carlo. La physique de l'électromagnétisme est ici linéaire mais nous aurons par exemple besoin d'évaluer le carré des modules d'amplitudes complexes. Nous verrons au chapitre 6 que cela revient à poser la question de l'intégration par Monte Carlo d'une fonction non-linéaire du résultat d'un Monte Carlo. Dans le chapitre 6, cette question se pose pour d'autres raisons que l'électromagnétisme, mais la solution pratique que nous y apportons satisfait aux attentes que nous venons de définir (l'intégration sur les tailles et les orientations est statistiquement couverte, voir Sec. 3.4.1).

Reste qu'avec Monte Carlo, comme avec les méthodes de quadrature usuelles, nous rencontrons des problèmes de convergence pour la diffusion des ondes électromagnétiques aux grands angles (voir Sec. 3.4.1). Cela nous amène, à la fin de la section 2.2.1, à proposer une approximation de la distribution angulaire des puissances diffusées aux grands angles (dont la dérivation est donnée à la section 3.4.2), que nous raccordons à nos résultats de calculs de la diffusion avant, en assurant normalisation et continuité. La conjonction de l'utilisation de la méthode de Monte Carlo pour les directions avant et de notre approximation aux grands angles résout complètement nos difficultés numériques : nous nous retrouvons en mesure de produire les banques de données dont nous avons besoin, avec des puissances de calcul raisonnables, et des temps de l'ordre de la semaine (pour toute la plage spectrale et une dizaine de compositions).

Dans la description précédente de notre modèle et de sa mise en œuvre numérique (qui est résumée dans la table 2.1.a), nous n'avons pas proposé de procédure permettant de déterminer la forme, l'indice de réfraction effectif et la distribution de taille des micro-organismes (quant à la distribution des orientations, elle est toujours prise isotrope compte tenu de l'agitation nécessaire au mélange du procédé). Pourtant, le but du présent chapitre est bien de dessiner une chaîne méthodologique cohérente avec l'étude des photobioréacteurs, et la question de la détermination de ces paramètres est donc centrale : nous devons être en mesure de saisir la dépendance des paramètres aux modes d'opération du procédé, à partir de données qui sont, soit accessibles expérimentalement (au sens de la pratique de la communauté des procédés photosynthétiques), soit disponibles dans des bases de données. Notre chaîne méthodologique implique donc de suivre un ensemble de procédures de caractérisation (résumées à la table 2.1.b) avant toute mise en œuvre du modèle énoncé précédemment. Pour commencer, la forme et la distribution des tailles des micro-organismes sont déterminées par

une analyse d'image de microscopie optique (voir Sec.2.2.2). Nous choisissons ici de nous ramener à des formes paramétriques simples à symétrie de révolution, et à des distributions de tailles modélisées par une distribution log-normale du rayon de la sphère équivalente en volume. L'ensemble des procédures qui suivent est dédié à l'obtention de l'indice de réfraction effectif des particules, car bien que l'approximation d'un milieu effectif constitue une simplification importante de l'interaction onde-particule, les propriétés spectrales de ce milieu homogène équivalent doivent refléter les hétérogénéités internes des micro-organismes. En premier lieu, nous déterminons la partie imaginaire de l'indice de réfraction, qui caractérise les propriétés d'absorption du rayonnement par le milieu continu dont les particules sont constituées. L'absorption de la lumière visible par les micro-organismes photosynthétiques est considérée comme étant exclusivement due à la présence de pigments photosynthétiques, rassemblés dans les antennes photosynthétiques. Les molécules de pigments sont suffisamment diluées pour être caractérisées par une section efficace d'absorption *in vivo* (indépendante du type d'étude et du micro-organisme), et une concentration interne de pigments (qui est elle extrêmement variable). En outre, dans la gamme spectrale du PAR (Photosynthetically Active Radiation, voir Sec. 1), pour les caractéristiques internes des micro-organismes (faibles variations de la partie réelle de l'indice et faibles épaisseurs optiques d'absorption), il est raisonnable de considérer que les propriétés d'absorption homogènes équivalentes sont simplement celles qu'on obtiendrait si les molécules de pigment étaient diluées de manière homogène dans le volume des particules. Nous modélisons donc la partie imaginaire de l'indice de réfraction effectif en sommant les spectres des sections efficaces d'absorption des pigments *in vivo* (soit disponibles dans la littérature, soit mesurés par notre équipe, voir Sec. 2.2.2), que nous avons rassemblés dans une base de données mise à disposition, chacun de ces spectres étant pondéré par la concentration de l'espèce pigmentaire correspondante dans le micro-organisme considéré. En résumé :

- Nous avons mis au point, à partir de protocoles éprouvés en microbiologie, une procédure permettant de déterminer la composition pigmentaire (c'est-à-dire les concentrations de chaque espèce pigmentaire) de chaque micro-organisme, pour chaque condition de culture étudiée (voir Sec. 2.2.2).
- Les protocoles expérimentaux que nous mettons en œuvre mènent dans un premier temps à la mesure de la composition pigmentaire en terme des fractions massiques sèches en pigments (la fraction de la masse des micro-organismes une fois leur eau extraite).
- Puis, afin de remonter à l'information sur les concentrations internes, la fraction volumique intracellulaire en eau est mesurée en recoupant diverses informations, notamment la distribution de taille.

La partie imaginaire de l'indice effectif est maintenant connue, et les procédures suivantes concernent sa partie réelle. La détermination de la partie réelle de l'indice de réfraction homogène équivalent est une difficulté majeure car d'une part, il n'existe que très peu d'informations dans la littérature dédiée aux micro-organismes, et d'autre part, contrairement à la partie imaginaire, cette propriété effective dépend fortement des hétérogénéités dans la gamme spectrale étudiée. Nous proposons donc d'utiliser les relations de Kramers-Krönig (voir Sec. 2.2.1), qui formalisent la redondance des informations contenues dans l'indice de réfraction complexe, et qui mènent à une expression de la partie réelle de l'indice effectif en fonction du spectre de la partie imaginaire. Si nous disposions de la partie imaginaire effective sur l'intégralité du spectre, cela suffirait à la mise en œuvre des relations de Kramers-Krönig, mais nous ne disposons que d'une information limitée car l'ensemble de la procédure précédente (protocoles et raisonnements physiques) ne concernait que l'obtention de la partie imaginaire dans la gamme spectrale du PAR. Cette situation est classique et différentes solutions pratiques existent afin de compenser (au moins partiellement) ce manque d'information. Nous choisissons ici de travailler avec l'approximation de Kramers-Krönig soustractive qui permet de corriger les résultats obtenus à partir de la seule information sur le PAR grâce à la connaissance de la partie réelle de l'indice de réfraction effectif pour une fréquence particulière, ce qui est appelé le point d'ancrage (voir Sec. 2.2.1). Il reste donc à déterminer la partie réelle de l'indice de réfraction à ce point d'ancrage qui est choisi à une fréquence pour laquelle le micro-organisme étudié est non-absorbant. Nous utilisons la loi de mélange de Bruggeman, qui donne l'indice de réfraction complexe d'une particule composite à partir de la connaissance des fractions volumiques et des indices de ses différentes structures (voir Sec. 2.2.1). Les fractions volumiques des structures sont ici obtenues par l'analyse de clichés de microscopie électronique d'une coupe du micro-organisme, ou beaucoup plus rarement, dans la littérature lorsque ces informations y sont disponibles (voir Sec. 2.2.2). Enfin, nous avons réussi à rassembler dans une petite base de données présentée à la section 2.2.2 un certain nombre d'informations sur l'indice réel des structures internes des micro-organismes, pour des fréquences où ceux-ci sont non-absorbants. En résumé, la procédure pour l'obtention de la partie réelle de l'indice de réfraction effectif des micro-organismes comprend :

- La détermination des fractions volumiques des structures internes par analyse d'image,
- L'extraction des indices réels des structures à partir d'une base de données,
- L'utilisation de la loi de mélange de Bruggeman pour l'obtention de l'indice réel au point d'ancrage,
- Et enfin la mise en œuvre de l'approximation de Kramers-Krönig soustractive.

Dans ce qui précède nous avons distingué, par souci de clarté, le modèle de l'interaction onde-particule et les procédures employées pour la détermination des tailles, des formes et

des indices de réfraction des micro-organismes. Cependant, dans la chaîne méthodologique complète, il apparaît clairement que les procédures présentées au paragraphe précédent impliquent un ensemble d'actes de modélisation qui ont le même statut que notre modèle de l'interaction onde-particule. Dans la suite de ce chapitre, nous avons donc retenu l'organisation suivante :

- La section 2.2.1 rassemble l'intégralité de notre modèle, incluant la formalisation des formes et des tailles, le modèle d'absorption par les pigments, l'utilisation de la loi de Bruggeman ainsi que l'approximation de Kramers-Krönig soustractive,
- La section 2.2.2 rassemble tout le savoir-faire associé à la détermination des paramètres d'entrée, c'est-à-dire à l'ajustement des paramètres de l'équation décrivant la forme des particules, l'ajustement des paramètres de la distribution des tailles, la mesure des fractions massiques sèches en pigments, de la fraction volumique en eau, des fractions volumiques des structures internes, ainsi que l'élaboration et l'utilisation des bases de données de spectres d'absorption des pigments *in vivo* et d'indice de réfraction des structures internes.
- Enfin, la section 2.2.3 rassemble les méthodes numériques employées pour la mise en œuvre de la chaîne jusqu'à l'obtention des propriétés radiatives d'une culture de micro-organismes.

Notre proposition ne s'arrête pas à l'obtention de ces propriétés car nous décrivons également une procédure de validation qui est partie intégrante de la chaîne méthodologique (voir Sec. 2.4). En effet, compte tenu de l'imbrication des diverses étapes décrites ci-dessus, il reste nécessaire de disposer d'une technique de contrôle des bases de données que nous souhaitons produire et diffuser. Là encore, cette démarche doit être cohérente avec l'objet d'étude, ce qui implique notamment qu'elle soit accessible à la communauté du procédé (à travers l'utilisation de protocoles expérimentaux "familiers") et qu'elle apporte une validation en lien avec la modélisation des transferts dans les photobioréacteurs. Cette validation comporte deux étapes :

- La mesure du spectre de la transmittivité hémisphérique d'une suspension du micro-organisme étudié grâce à un banc optique équipé d'une sphère d'intégration (voir Sec. 2.4).
- La simulation par méthode de Monte Carlo des transferts radiatifs en diffusion multiple dans la même configuration radiative, pour nos résultats des propriétés de diffusion et d'absorption de la suspension de micro-organisme (voir Sec. 2.4.1 et Chap. 5).

A la section 2.4.2, nous comparons les spectres obtenus expérimentalement avec ceux résultant de la mise en œuvre de notre chaîne méthodologique. A la section 2.4.3, nous validons la valeur que nous avons retenue pour l'indice de réfraction à la fréquence du point d'ancrage.

a. Modèle de l'interaction onde-particule

Electromagnétisme : problème de la diffusion sous l'hypothèse de la diffusion indépendante.	Rappels de base à la section 2.1.2
Description des particules : taille, forme et composition interne des micro-organismes.	Section 2.1.3
Simplification de la composition interne hétérogène des micro-organismes : approximation du milieu homogène équivalent.	Section 2.2.1
Changement de modèle d'électromagnétisme pour l'interaction onde-particule : approximation de la diffraction anormale revisitée par l'approximation de Schiff.	Section 2.2.1 et Chapitre 3
Mise en œuvre numérique : intégration de l'approximation de Schiff, des distributions de tailles, et des distributions d'orientations par la méthode de Monte Carlo.	Section 2.2.3, Chapitres 3 et 6

b. Chaîne de caractérisation

- (1) Détermination de la forme et de la distribution de taille du micro-organisme par analyse d'images (Sec. 2.2.2).
- (2) Extraction des pigments photosynthétiques et mesure de la composition pigmentaire (fractions massiques sèches, voir Sec. 2.2.2).
- (3) Mesure de la fraction volumique intracellulaire en eau (protocoles spécifiques et utilisation des résultats de (1), voir Sec. 2.2.2).
- (4) Construction de la concentration volumique de chaque espèce pigmentaire dans le micro-organisme à partir des résultats de (2) et (3) (Sec. 2.2.2).
- (5) Construction du spectre de la partie imaginaire de l'indice de réfraction effectif à partir des résultats de (4) et d'une base de données des spectres d'absorption des pigments *in vivo* (voir Sec. 2.2.1 et Sec. 2.2.2 pour la base de données).
- (6) Détermination des fractions volumiques des structures anatomiques internes par analyse d'images (Sec. 2.2.2).
- (7) Construction de la partie réelle de l'indice de réfraction effectif au point d'ancrage en utilisant la loi de mélange de Bruggeman pour les résultats de (6) et les indices réels des structures internes extraits d'une base de données (voir Sec. 2.2.1 et Sec. 2.2.2 pour la base de données).
- (8) Construction du spectre de la partie réelle de l'indice de réfraction effectif en utilisant l'approximation de Kramers-Krönig soustractive à partir des résultats de (5) et de (7) (Sec. 2.2.1).
- (9) Validation des résultats des propriétés radiatives à partir d'une analyse des transmittivités hémisphériques mesurées sur une suspension de micro-organismes (voir Sec. 2.4).

TABLE 2.1: Articulation des éléments importants de la chaîne méthodologique présentée dans ce chapitre, et de leur organisation au sein du présent mémoire. a : Modèle de l'interaction onde-particule. b : Chaîne de caractérisation.

2.1.2 Bases du formalisme de l'électromagnétisme utilisé dans ce manuscrit

Le problème de la diffusion par une particule est schématisé sur la figure 2.1. Une source externe génère un champ incident. En l'absence de tout autre objet, le champ électrique en tout point est le champ incident noté \mathbf{E}_i . En présence du diffuseur, le champ total peut s'écrire comme la superposition du champ incident (inchangé) et du champ diffusé \mathbf{E}_d qui est le champ rayonné par les courants induits dans le volume de la particule :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_i(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_d(\mathbf{r}) \quad (2.1)$$

Cette écriture fait l'hypothèse que les sources du champ incident ne sont pas perturbées par la présence de la particule. Dans notre étude, seul le régime de la diffusion indépendante est considéré (voir annexe A). Ainsi, nous nous attacherons dans un premier temps à la diffusion par une seule particule isolée, située à très grande distance de tout autre objet (y-compris des sources). Dans ce cas, le champ incident peut être représenté comme une *onde plane* et seules les propriétés en *champ lointain* nous intéressent. Dans de telles conditions, une fois que nous connaissons les propriétés radiatives d'une particule de taille et de forme quelconque, la question de l'interaction du rayonnement avec un ensemble de particules se résume à une prise de moyenne des propriétés des particules isolées sur leurs distributions d'orientations et de tailles. Nos sources (le soleil ou les diverses sources artificielles utilisées) correspondent à des champs incidents incohérents et non-polarisés. Dans les situations qui nous intéressent (sachant notamment que l'on peut négliger la polarisation induite par le milieu traversé, ici les particules), les ondes scalaires sont une bonne approximation des

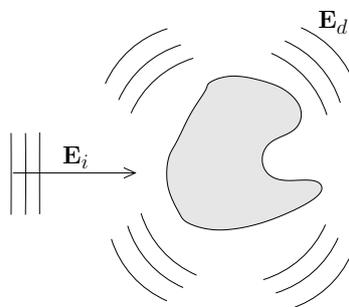


FIGURE 2.1: Diffusion d'une onde par une particule.

ondes électromagnétiques et les discussions qui suivent ne nécessitent pas l'utilisation d'un formalisme vectoriel.

Nous commençons par énoncer rapidement quelques concepts généraux et quelques définitions en lien avec la résolution de ce problème. Des présentations plus approfondies sont disponibles dans de nombreux ouvrages de référence dont [33, 34, 36].

Amplitude de diffusion. Nous nous intéressons à la diffusion par une particule quelconque d'une onde scalaire monochromatique plane de pulsation ω . Cette onde incidente a une amplitude

$$E_i(\mathbf{r}, t) = \text{Re} [E_0 \exp(-i \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} + i\omega t)] \quad (2.2)$$

où $\mathbf{k}_i = k_e \mathbf{e}_i$ est le vecteur d'onde incident : il a pour direction le vecteur unitaire \mathbf{e}_i et pour norme $k_e = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda_e}$, avec c la célérité de l'onde dans le milieu environnant la particule et λ_e la longueur d'onde dans ce même milieu. Le formalisme choisi pour notre étude utilise l'amplitude complexe

$$E_i(\mathbf{r}) = E_0 \exp(-i \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) \quad (2.3)$$

où la dépendance temporelle disparaît.

L'amplitude complexe de l'onde diffusée en champ lointain, à une distance r de la particule, et dans la direction \mathbf{e}_d (si la particule est placée au centre du repère : $\mathbf{r} = r \mathbf{e}_d$, voir Fig. 2.2) est celle d'une onde sphérique et peut s'écrire :

$$E_d(\mathbf{r}, \mathbf{e}_d) = S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \frac{\exp(-ik_e r)}{-ir} E_0 \quad (2.4)$$

où $S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i)$ est l'amplitude de diffusion, qui est un nombre complexe dont le module est homogène à une longueur³.

Section efficace de diffusion. La puissance totale P_d diffusée par la particule dans toutes les directions s'obtient par intégration de la puissance diffusée par unité de surface sur une sphère de rayon $R \rightarrow +\infty$ contenant la particule :

$$P_d = \lim_{R \rightarrow +\infty} \int_{4\pi} I_d(R, \mathbf{e}_d) R^2 d\mathbf{e}_d \quad (2.5)$$

3. Il existe différentes définitions de l'amplitude de diffusion. Ces définitions ne divergent que par des choix de conventions arbitraires : H. C. van de Hulst choisit par exemple d'écrire $E_d(\mathbf{r}, \mathbf{e}_d) = \hat{S}(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \frac{\exp(-ik_e r)}{ik_e r} E_0$, en mettant k_e au dénominateur et en changeant le signe, de sorte que l'amplitude de diffusion soit sans dimension [33].

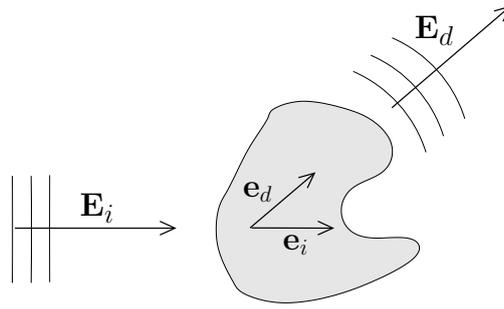


FIGURE 2.2: Représentation utilisée pour la définition de l'amplitude de diffusion.

où $I_d(R, \mathbf{e}_d) = |E_d(R, \mathbf{e}_d)|^2$ est la puissance par unité de surface perpendiculaire à \mathbf{e}_d véhiculée par l'onde sphérique diffusée et $d\mathbf{e}_d$ est l'angle solide élémentaire autour de la direction \mathbf{e}_d (notation courante en transfert radiatif) : $d\mathbf{e}_d = \sin\theta d\theta d\varphi$. La section efficace de diffusion σ_d est telle que la puissance diffusée P_d est égale à la puissance de l'onde plane incidente qui arrive sur la surface σ_d :

$$P_d = \sigma_d I_i \quad (2.6)$$

où $I_i = |E_i|^2 = E_0^2$ est la puissance par unité de surface perpendiculaire à \mathbf{e}_i véhiculée par l'onde plane incidente. D'après la relation 2.4, il vient

$$\sigma_d = \int_{4\pi} |S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i)|^2 d\mathbf{e}_d \quad (2.7)$$

qui est bien homogène à une surface.

Section efficace d'absorption. Comme dans le cas de la diffusion, on définit la section efficace d'absorption σ_a en écrivant que $\sigma_a I_i$ est la puissance absorbée par la particule.

Section efficace d'extinction La section efficace d'extinction σ_{ext} est la surface telle que $\sigma_{ext} I_i$ est la puissance prélevée par la particule, c'est-à-dire la puissance qui est diffusée et absorbée :

$$\sigma_{ext} = \sigma_d + \sigma_a \quad (2.8)$$

ce qui traduit la conservation de l'énergie dans le processus de diffusion.

Théorème optique. Le théorème optique est un résultat remarquable de l'étude du problème de la diffusion. Il permet d'exprimer la section efficace d'extinction en fonction d'une seule et unique information : l'amplitude de diffusion dans la direction avant $S(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_i)$.

$$\sigma_{ext} = \frac{4\pi}{k_e} \text{Re} [S(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_i)] \quad (2.9)$$

Nous ne développerons pas ici la démonstration de ce théorème qui est donnée dans divers ouvrages [33, 34]. Cependant, une interprétation physique simple de ce résultat est que l'extinction (l'atténuation de l'énergie de l'onde incidente par la particule) provient de l'interférence entre le champ incident et le champ diffusé vers l'avant.

Efficacités. Il est courant d'exprimer les sections efficaces comme le produit d'une efficacité Q et de la section géométrique P de la particule vue depuis la direction de l'onde incidente.

$$\sigma = P Q \quad (2.10)$$

Les efficacités peuvent être supérieures ou inférieures à 1.

Section efficace différentielle de diffusion et fonction de phase. La section efficace différentielle de diffusion $W_d(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i)$ représente la répartition angulaire de la puissance diffusée par une particule soumise à une onde incidente se propageant suivant la direction \mathbf{e}_i . La quantité $I_i W_d(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) d\mathbf{e}_d$ est la puissance diffusée dans l'angle solide élémentaire $d\mathbf{e}_d$ autour de la direction \mathbf{e}_d (voir Fig. 2.3) :

$$W_d(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) d\mathbf{e}_d = \lim_{R \rightarrow +\infty} I_d(R, \mathbf{e}_d) R^2 d\mathbf{e}_d \quad (2.11)$$

En utilisant $I_i = |E_i|^2 = E_0^2$, $I_d(R, \mathbf{e}_d) = |E_d(R, \mathbf{e}_d)|^2$, ainsi que l'Eq. 2.4, on obtient :

$$W_d(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) = |S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i)|^2 \quad (2.12)$$

dont l'intégrale sur l'angle solide total est bien égale à la section efficace de diffusion (cf. Eq. 2.7).

La fonction de phase $p(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i)$ est la section efficace différentielle de diffusion normalisée sur l'angle solide total, c'est-à-dire que $p(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) d\mathbf{e}_d$ est la fraction de la puissance $\sigma_d I_i$ qui est

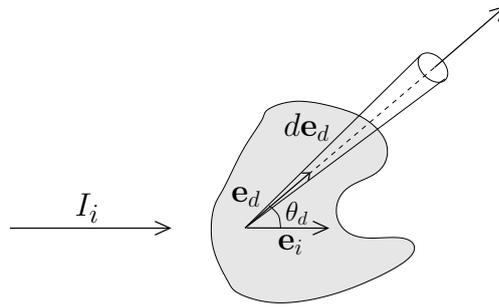


FIGURE 2.3: Représentation utilisée pour la définition de la section efficace différentielle de diffusion et de la fonction de phase.

diffusée dans l'angle solide élémentaire $d\mathbf{e}_d$ autour de la direction \mathbf{e}_d . On a :

$$p(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) = \frac{|S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i)|^2}{\sigma_d} \quad (2.13)$$

qui est bien normalisée (*cf.* Eq. 2.7) : $\int_{4\pi} p(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) d\mathbf{e}_d = 1$. Dans le cas des milieux épais, l'information de la fonction de phase peut généralement se réduire à son paramètre d'asymétrie g_ν , qui est la moyenne des cosinus sur la distribution angulaire :

$$g = \int_{4\pi} p(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i) \mathbf{e}_d \cdot \mathbf{e}_i d\mathbf{e}_d \quad (2.14)$$

Le paramètre d'asymétrie représente la répartition de l'énergie diffusée autour de la direction incidente : de manière générale $-1 < g < 1$, $g < 0$ si la majeure partie de la puissance incidente est diffusée vers l'arrière, $g = 0$ si la distribution est symétrique pour les directions avant et arrière, $g > 0$ si la majorité de la puissance incidente est diffusée vers l'avant. Pour les micro-organismes, g est souvent proche de 1. La connaissance de g n'est pas suffisante pour l'analyse des configurations radiatives rencontrées dans les photobioréacteurs, mais elle reste significative et la plupart des résultats que nous présenterons graphiquement concerneront g car les fonctions de phase contiennent une infinité d'informations angulaires qui sont difficilement représentables lorsqu'il s'agit de les analyser spectralement.

Équations d'onde. Ce paragraphe s'attache à poser l'équation et les conditions aux limites associées au problème de la diffusion par une particule isolée. Une fois ce système posé, on fera le lien avec le formalisme général qui vient d'être énoncé.

Les particules et le milieu environnant que nous considérons sont des matériaux isotropes linéaires et non-magnétiques, tous deux décrits macroscopiquement par leur champ d'indice de réfraction m . Les équations de Maxwell monochromatiques donnent deux équations d'ondes (équations de Helmholtz) pour le champ E : une dans le volume fini \mathcal{V}_{part} de la particule et l'autre dans le milieu infini environnant \mathcal{V}_e . Ces deux régions sont mutuellement distinctes et définissent la totalité de l'espace.

$$\begin{aligned} \nabla^2 E(\mathbf{r}) + k_e^2 E(\mathbf{r}) &= 0 & ; \mathbf{r} \in \mathcal{V}_e \\ \nabla^2 E(\mathbf{r}) + k_{part}^2 E(\mathbf{r}) &= 0 & ; \mathbf{r} \in \mathcal{V}_{part} \end{aligned} \quad (2.15)$$

où ∇^2 est le Laplacien, k_e est le nombre d'onde dans le milieu environnant et k_{part} le nombre d'onde dans la particule. Le milieu environnant est dans notre cas de l'eau. Ce milieu est considéré comme étant diélectrique ; il n'absorbe pas le rayonnement à nos longueurs d'ondes et possède donc un indice de réfraction réel $m_e = n_e$. Les particules, elles, ont un indice complexe $m_{part} = n_{part} - i \kappa_{part}$. Quand le milieu environnant peut être supposé uniforme (ce qui est tout à fait acceptable pour l'eau dans nos conditions d'étude), on définit l'indice relatif m_r des particules de sorte que $k_{part} = m_r k_e$, soit

$$m_r = \frac{n_{part}}{n_e} - i \frac{\kappa_{part}}{n_e} = n_r - i \kappa_r \quad (2.16)$$

Avec bien sûr $m_r = 1$ en tout point du milieu environnant. Le système d'équation 2.15 peut alors se réécrire en une seule équation différentielle inhomogène :

$$(\nabla^2 + k_e^2)E(\mathbf{r}) = -j(\mathbf{r}) \quad ; \mathbf{r} \in \mathcal{V}_e \cup \mathcal{V}_{part} \quad (2.17)$$

où la fonction indicatrice

$$j(\mathbf{r}) = k_e^2 (m_r(\mathbf{r})^2 - 1) E(\mathbf{r}) \quad (2.18)$$

représente la perturbation induite par la particule (elle est nulle à l'extérieur de la particule). La solution de l'équation 2.17 peut s'écrire comme la somme de sa solution homogène et de sa solution particulière. L'équation homogène ($j(\mathbf{r}) = 0$) est l'équation d'onde du champ incident. Compte tenu des spécificités de notre étude, la solution homogène est donc l'onde plane incidente $E_i(\mathbf{r}) = E_0 \exp(-i \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})$, où $\mathbf{k}_i = k_e \mathbf{e}_i$, c'est-à-dire la solution du problème en l'absence de particule. La solution particulière satisfaisant la conservation de l'énergie est le champ diffusé $E_d(\mathbf{r})$. L'écriture du champ diffusé sous forme d'une onde sphérique sortante est solution particulière de l'équation et vérifie la condition à la limite $\lim_{r \rightarrow +\infty} E_d(\mathbf{r}) = 0$.

On retrouve bien :

$$E(\mathbf{r}) = E_i(\mathbf{r}) + E_d(\mathbf{r}) \quad (2.19)$$

avec

$$E_d(\mathbf{r}) = S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \frac{\exp(-ik_e r)}{-ir} E_0 \quad (2.20)$$

La détermination des propriétés radiatives des micro-organismes nécessite donc de modéliser

1. leur indice de réfraction complexe (qui est une donnée spectrale),
2. leur géométrie, c'est-à-dire leur domaine \mathcal{V}_{part} ,
3. et leur interaction avec le rayonnement, c'est-à-dire résoudre l'équation 2.17.

Ce problème monochromatique (c'est-à-dire pour une fréquence donnée, donc pour la valeur correspondante de l'indice de réfraction) est résolu pour un certain nombre de longueurs d'onde appartenant à la gamme utilisée par la photosynthèse (le PAR, Photosynthetically Active Radiation) afin de construire le spectre de propriétés radiatives qui sera utilisé pour la résolution des transferts radiatifs.

Paramètre de taille. Le problème de la diffusion par une particule tel que posé à l'équation 2.17 est invariant si la taille de la particule et la longueur d'onde incidente sont multipliées par un même facteur. La taille des particules est donc habituellement définie par leur paramètre de taille x , qui est un nombre sans dimension représentant le ratio entre taille et longueur d'onde :

$$x = \frac{2\pi a}{\lambda_e} \quad (2.21)$$

où a est la dimension caractéristique de la particule (le rayon pour une particule sphérique).

Propriétés d'un ensemble de particules Outre l'utilisation de particules homogènes équivalentes (approximation du milieu effectif), notre étude se concentrera sur des particules à symétrie de révolution (de formes sphéroïdales et cylindriques) dont l'orientation par rapport au rayonnement incident sera définie par celle de leur axe de symétrie \mathbf{e}_o , et dont la taille sera définie par le rayon r_{eq} de la sphère équivalente en volume. Les propriétés radiatives d'une particule isolée de taille et d'orientation fixe (\mathbf{e}_o, r_{eq}) seront alors notées $\hat{\sigma}_{ext}(\mathbf{e}_o, r_{eq})$, $\hat{\sigma}_a(\mathbf{e}_o, r_{eq})$, $\hat{\sigma}_d(\mathbf{e}_o, r_{eq})$ et $\hat{W}_d(\mathbf{e}_d | \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq})$, et les propriétés radiatives d'une suspension de particules seront obtenues, dans le cadre du régime de la diffusion indépendante (voir annexe A), par une intégration sur les distributions de tailles $p_{R_{eq}}(r_{eq})$ et d'orientations $p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o)$

de la suspension :

$$\begin{aligned}
\sigma_{ext} &= \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o \int_0^\infty dr_{eq} p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{\sigma}_{ext}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) \\
\sigma_a &= \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o \int_0^\infty dr_{eq} p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{\sigma}_a(\mathbf{e}_o, r_{eq}) \\
\sigma_d &= \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o \int_0^\infty dr_{eq} p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{\sigma}_d(\mathbf{e}_o, r_{eq}) \\
W_d(\theta_d) &= \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o \int_0^\infty dr_{eq} p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{W}_d(\mathbf{e}_d | \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq})
\end{aligned} \tag{2.22}$$

On remarque qu'une fois l'intégration sur la distribution des orientations faite, nos particules étant à symétrie de révolution, la section efficace différentielle de diffusion ne dépend plus que de l'angle de diffusion θ_d (l'angle entre la direction incidente et la direction de diffusion, voir Fig 2.3). La fonction de phase de cet ensemble de particules est :

$$p(\theta_d) = \frac{W_d(\theta_d)}{\sigma_d} \tag{2.23}$$

Cumulée de la fonction de phase. La cumulée $\text{cdf}_{\Theta_d}(\theta_d)$ de la fonction de phase représente la proportion de la puissance diffusée qui est contenue dans le cône d'angle θ_d autour de la direction d'incidence :

$$\text{cdf}_{\Theta_d}(\theta_d) = 2\pi \int_0^{\theta_d} d\theta' \sin(\theta') p(\theta') \tag{2.24}$$

Elle contient la même quantité d'information que la fonction de phase et a l'avantage pratique d'être une fonction bijective monotonement croissante : $\text{cdf}_{\Theta_d}(0) = 0$, $\text{cdf}_{\Theta_d}(\pi) = 1$. A ce titre, elle est couramment substituée à la fonction de phase dans l'étude des transferts radiatifs.

Nous donnons dans la section suivante une brève description des micro-organismes photosynthétiques, de façon à bien identifier ce que sont leurs spécificités en tant que diffuseurs.

2.1.3 Micro-organismes photosynthétiques

Un bon nombre d'espèces de micro-organismes correspondent à des déformations plus ou moins importantes de formes à symétrie de révolution telles que le cylindre, le sphéroïde, le

super-sphéroïde, la particule de Tchebytchev, etc. La forme de certaines espèces peut significativement varier en fonction de la composition chimique et de la température du milieu de culture [41], mais ces deux paramètres sont extrêmement bien contrôlés dans une culture en photobioréacteur. Les dimensions typiques des micro-organismes photosynthétiques dans leur milieu naturel s'étendent de $0.1\mu m$ à $1mm$. Néanmoins, les tailles caractéristiques (définissant le paramètre de taille) des micro-organismes cultivés en photobioréacteur correspondent à une gamme plus restreinte : 1 à 20μ . Une culture de micro-organismes contenant une seule espèce possède généralement des distributions de tailles et de formes monomodales correspondant aux divers stades de maturité des individus. Ces distributions peuvent être considérées comme stationnaires, à part dans le cas très particulier des cultures synchronisées. La caractérisation des formes et des tailles des micro-organismes peut se faire grâce à des observations "classiques" au microscope optique assorties de logiciels de traitement d'image.

La structure interne des micro-organismes photosynthétiques est une caractéristique importante vis-à-vis de leur interaction avec la lumière. Par structure, on entend leur anatomie et leur composition chimique, ce qui détermine leur indice de réfraction. L'absorption de la lumière visible par les micro-organismes photosynthétiques a été le premier aspect radiatif à être étudié par la communauté de l'océanographie. Depuis, il est considéré que l'absorption par les pigments photosynthétiques est prédominante [42, 43, 44, 45, 46]. Il existe divers pigments photosynthétiques parmi lesquels les familles les plus courantes sont les chlorophylles, phycocyanines et les caroténoïdes. La mesure de leurs propriétés spectrales d'absorption dans des conditions *in vivo* a fait l'objet d'études entre les années 70 et les années 90, et nous disposons à l'heure actuelle de protocoles expérimentaux éprouvés ainsi que d'un certain nombre de données [45]. Chaque espèce possède sa propre composition pigmentaire qui correspond à la proportion respective des différents pigments présents dans le micro-organisme, ce qui lui confère une empreinte radiative propre. Il existe un mécanisme de régulation qui entraîne la diminution de la quantité totale de pigments d'un micro-organisme lorsque celui-ci est éclairé trop fortement, mais la composition, elle, reste généralement stable dans les conditions de limitation par la lumière seule [24]. Là encore, de nombreux protocoles éprouvés existent pour l'extraction et la mesure des compositions pigmentaires. L'ordre de grandeur typique de l'épaisseur optique d'absorption d'un micro-organisme est 10^{-2} .

Les structures anatomiques des micro-organismes sont observables avec des microscopes optiques travaillant dans le visible (ce qui implique notamment que ces hétérogénéités jouent un rôle dans la présente étude). Au niveau de la description dont nous avons besoin ici, les structures internes des micro-organismes photosynthétiques sont similaires à celles des autres

cellules biologiques [47] (si on laisse de côté la présence de pigments photosynthétiques qui leur est spécifique). L'indice de réfraction apparent des cellules biologiques a d'abord été étudié grâce à des expériences de réfractométrie à immersion [48, 37] ou des inversions sur des mesures de spectroscopie [49, 50, 51] conduisant à des valeurs allant de 1.02 à 1.2 (relatif à l'eau). Plus récemment, dans le cadre de la recherche sur les diagnostics médicaux et la cytologie non-invasive, la communauté de la tomographie a développé des microscopes capables de mesurer la cartographie tridimensionnelle des cellules vivantes [52, 53, 54, 55, 56, 57, 58, 59]. Ces cartographies révèlent des variations marquées d'environ 10% de l'indice de réfraction dans la cellule. Ces variations dessinent la forme des principales structures anatomiques telles que le noyau, les mitochondries, etc, chacune d'entre elles représentant de 1 à 10% du volume total de la cellule. Ainsi, on peut se représenter un micro-organisme comme un matériau composite dont le volume est divisé en différentes structures anatomiques d'indice de réfraction relativement homogène. Ces structures internes sont toutes quasiment non-absorbantes, à l'exception des régions contenant les pigments photosynthétiques, où la partie imaginaire de l'indice est non nulle. La diversité anatomique des micro-organismes photosynthétiques est communément représentée par trois groupes qu'il convient de distinguer (voir Fig. 2.4) : les bactéries, les cyanobactéries, et les eucaryotes (micro-algues). Chacun des trois micro-organismes qui sont étudiés dans ce travail représente une de ces catégories. On note qu'il a

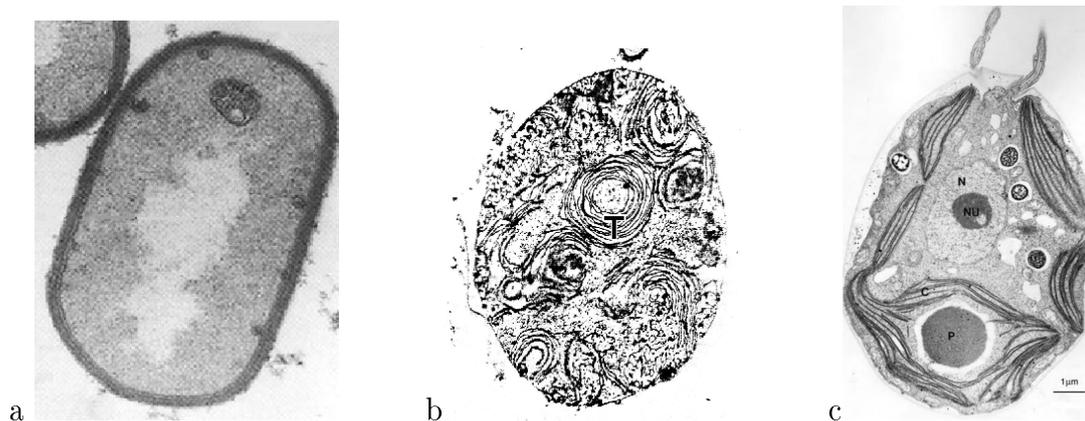


FIGURE 2.4: Diversité anatomique des micro-organismes photosynthétiques. a : Bactérie photosynthétique (d'après www.chem.ox.ac.uk). b : Cyanobactérie (microscopie électronique à transmission d'une section d'*Arthrospira platensis*, donnée interne); (T) Thylakoïdes. c : Micro-algue, *i.e.* un eucaryote (section médiane de *Chlamydomonas reinhardtii* d'après [60]); (N) noyau, (Nu) nucléole, (C) Chloroplaste.

été montré que l'indice de réfraction des mitochondries peut varier significativement en fonction de l'état métabolique des cellules vivantes [54]. Ces résultats issus de la communauté de la tomographie constituent de précieuses informations, mais à notre connaissance, seuls un petit nombre de cellules et de longueurs d'ondes ont été étudiés pour l'heure. De plus, presque aucune information n'est disponible quant à la taille, la position, la forme et le nombre des structures internes des micro-organismes. Ainsi, la complexité associée aux hétérogénéités est l'une des principales difficultés liées à la description radiative des micro-organismes.

2.2 Modèle et mise en œuvre pratique

2.2.1 Modèle

Comme il a été dit auparavant, la première étape de la construction de notre modèle consiste à faire l'approximation que les micro-organismes sont des particules homogènes. **L'approximation du milieu effectif** définit un milieu homogène équivalent qui conduit à des propriétés radiatives "aussi proches que possible" des propriétés du diffuseur hétérogène. Cette approximation est souvent employée pour les cellules biologiques [37, 61, 43, 44], les poussières interstellaires [40, 62, 63] et les aérosols atmosphériques [64, 65, 66]. Dans le cas des cellules biologiques [37, 38, 39], comme dans beaucoup d'autres situations [40], elle produit surtout des erreurs sur les puissances diffusées aux grands angles (c'est-à-dire une très faible proportion de la puissance totale diffusée par les micro-organismes), ce qui explique que cette approximation ait été utilisée avec succès pour l'étude des sections efficaces des micro-organismes en océanographie, et légitime son utilisation dans notre étude. Dans la suite, nous considérons donc que les micro-organismes sont constitués d'un milieu homogène d'indice de réfraction complexe $m_\nu^{eff} = n_\nu^{eff} - i\kappa_\nu^{eff}$ (où ν représente la dépendance spectrale de l'indice). Bien sûr, toute la difficulté associée à la représentation des hétérogénéités est alors reportée dans la définition des spectres de n_ν^{eff} et κ_ν^{eff} . Il s'agit de s'assurer que la résolution des équations de Maxwell, pour cette particule effective, conduit bien à une représentation satisfaisante de l'interaction de l'onde avec la particule réelle.

Aux fréquences que nous considérons, la **partie imaginaire de l'indice de réfraction** κ_ν est liée aux propriétés d'absorption des pigments présents dans les antennes photosynthétiques. Les molécules de pigment sont suffisamment diluées pour que l'on puisse faire l'hypothèse que l'interaction du rayonnement avec chacune des molécules de pigment se fait de manière indépendante (hypothèse communément retenue en océanographie [42, 43, 44, 45, 46]). On peut alors définir une section efficace moléculaire qui caractérise les propriétés d'ab-

sorption de chaque espèce pigmentaire indépendamment de sa concentration. Si on admet de plus que les molécules de pigment sont distribuées aléatoirement de façon uniforme dans le milieu (dans un petit voisinage autour du point considéré, hypothèse du milieu continu), alors la valeur locale de la partie imaginaire de l'indice de réfraction s'écrit en fonction des sections efficaces moléculaires et des concentrations locales selon

$$\kappa_\nu(\mathbf{r}) = \frac{c_0}{4\pi\nu} \sum_j \hat{C}_{pig,j}(\mathbf{r}) E_{a_{pig,j}}(\nu) \quad (2.25)$$

où $\hat{C}_{pig,j}(\mathbf{r})$ est la concentration massique de l'espèce pigmentaire j au point \mathbf{r} et $E_{a_{pig,j}}(\nu)$ est la section efficace d'absorption massique de cette même espèce pigmentaire dans des conditions *in vivo*. Les spectres de section efficace d'absorption *in vivo* $E_{a_{pig}}(\nu)$ sont publiés ou ont été établis pour de nombreux pigments photosynthétiques (comme cela sera détaillé dans la section 2.2.2) et constituent la base de tout modèle prédictif des propriétés radiatives des micro-organismes photosynthétiques. A partir de cette valeur locale $\kappa_\nu(\mathbf{r})$, la valeur de la partie imaginaire de l'indice homogène équivalent κ_ν^{eff} est communément calculée comme la moyenne volumique de $\kappa_\nu(\mathbf{r})$ sur l'ensemble de la particule, ce qui conduit à

$$\kappa_\nu^{eff} = \frac{c_0}{4\pi\nu} \sum_j C_{pig,j} E_{a_{pig,j}}(\nu) \quad (2.26)$$

où $C_{pig,j}$ est la concentration massique de l'espèce pigmentaire j dans le volume du micro-organisme, défini comme :

$$C_{pig,j} = \frac{1}{V_{part}} \int_{\mathcal{V}_{part}} \hat{C}_{pig,j}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2.27)$$

avec V_{part} le volume du domaine \mathcal{V}_{part} de la particule.

La détermination de la **partie réelle de l'indice de réfraction** n_ν^{eff} est une tâche difficile car cette grandeur doit refléter toute l'information associée à l'hétérogénéité des micro-organismes, notamment des spectres de n_ν pour chacune des sous-structures anatomiques. Dans ce qui suit, nous contournons partiellement ce problème en exprimant n_ν^{eff} en fonction du spectre de la partie imaginaire κ_ν^{eff} que nous venons de modéliser. Cela correspond à la théorie de Ketteler-Helmholtz [34], qui a entre autres été appliquée à l'étude des micro-organismes photosynthétiques [44, 67], ou aux relations de Kramers-Krönig [68, 69, 70], qui ont été utilisées pour l'étude des micro-organismes photosynthétiques [71, 67] et d'autres cellules biologiques [61, 71] (ainsi que dans bien d'autres domaines). Nous utilisons ici la relation de Kramers-Krönig suivante (voir [70] Chap. 4.3.2 pour l'application de Kramers-Krönig aux propriétés effectives d'un matériau, et [67] pour une comparaison entre Ketteler-Helmholtz

et Kramers-Krönig) :

$$n_{\nu}^{eff} = 1 + \frac{2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\nu' \kappa_{\nu'}^{eff}}{\nu'^2 - \nu^2} d\nu' \quad (2.28)$$

où P signifie que la valeur principale de Cauchy doit être considérée pour la singularité ($\nu' = \nu$). La relation ci-dessus (qui est exacte) consiste en une intégration sur $[0, +\infty]$ alors que κ_{ν} n'est connue que dans le spectre visible et proche infrarouge $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ (ne serait-ce que de par la limitation actuelle des bases de données pour les pigments). Cette situation est classique lors de la mise en œuvre pratique des relations de Kramers-Krönig et différentes approximations existent afin de compenser (au moins partiellement) le manque d'information spectrale. Les méthodes les plus classiques consistent

- soit à étendre κ_{ν}^{eff} en dehors de la plage de connaissance, avec un modèle ou des mesures sur des matériaux similaires [61],
- soit à transformer l'équation 2.28 et faire apparaître des paramètres libres qu'on ajuste ensuite grâce à un ensemble de fréquences pour lesquelles n_{ν}^{eff} est accessible expérimentalement [70].

Certaines approches mélangent ces deux techniques [72].

Dans ce travail, nous utilisons **l'approximation de Kramers-Krönig soustractive** à un point d'ancrage [70]. Cette approximation est obtenue en soustrayant à l'équation 2.28 (pour tout ν) la même équation 2.28 prise en une fréquence particulière ν_p pour laquelle $n_{\nu_p}^{eff}$ est connu. On assure ainsi que le spectre de n_{ν}^{eff} passe par la valeur $n_{\nu_p}^{eff}$ à la fréquence ν_p , même lorsque l'intégration est tronquée à $[\nu_{min}, \nu_{max}]$:

$$n_{\nu}^{eff} = n_{\nu_p}^{eff} + \frac{2(\nu^2 - \nu_p^2)}{\pi} P \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} \frac{\nu' \kappa_{\nu'}^{eff}}{(\nu'^2 - \nu^2)(\nu'^2 - \nu_p^2)} d\nu' \quad (2.29)$$

Une grande part de la complexité associée à la maîtrise de l'hétérogénéité des micro-organismes est ainsi réduite au **point d'ancrage**, c'est-à-dire à la recherche de l'indice de réfraction monochromatique équivalent $n_{\nu_p}^{eff}$ à la seule fréquence ν_p . Nous retenons une fréquence ν_p pour laquelle le micro-organisme est non-absorbant ($\kappa_{\nu}^{eff} \simeq 0$) afin d'accéder plus simplement aux propriétés des structures anatomiques internes. En effet, comme il a été souligné à la section 2.1.3, les micro-organismes photosynthétiques ne se distinguent des autres cellules vivantes que par leur absorption du rayonnement (non pas bien sûr d'un point de vue biologique mais uniquement en ce qui concerne notre étude). Pour la fréquence ν_p , nous considérerons donc que les propriétés des structures internes des micro-organismes photosynthétiques sont identiques à celles des autres cellules vivantes [47], ce qui nous permettra d'aller chercher les informations nécessaires dans une littérature beaucoup plus large. Mais

en parcourant cette littérature, il apparaît malheureusement que les biologistes ne se sont que peu intéressés à la plupart des propriétés que nous recherchons : typiquement aux fractions volumiques et aux spectres des indices de réfractions des noyaux, parois cellulaires, cytoplasme, etc. Afin d'utiliser au mieux l'information disponible, notre démarche est alors la suivante :

- Lorsque nous trouvons dans la littérature des résultats de mesure d'indice sur des structures anatomiques d'organismes photosynthétiques, les fréquences utilisées sont, pour des raisons pratiques, des fréquences auxquelles le micro-organisme est non-absorbant, c'est-à-dire proche de notre point d'ancrage. Nous les utilisons donc directement.
- Lorsque nous trouvons dans la littérature des résultats de mesure d'indice sur des structures anatomiques d'organismes non-photosynthétiques comparables, alors comme ceux-ci sont non-absorbants dans toute la plage optique, il n'y a aucune raison pour que les auteurs se soient placés proches de notre point d'ancrage. Cependant, les variations spectrales d'indice des organismes non-photosynthétiques sont beaucoup plus faibles que celles de leur équivalent photosynthétique [61, 48] et nous n'hésitons pas à considérer que ces mesures donnent les mêmes résultats que si elles étaient faites à notre point d'ancrage.

Nous construirons dans la section 2.2.2 une petite base de données contenant les indices de réfraction réels des différentes parties anatomiques que nous avons pu rassembler.

A partir de cette base de données, de nombreuses relations peuvent être utilisées pour exprimer l'indice de réfraction effectif d'un matériau composite (ici n_{ν_p}) en fonction de la structure interne (voir [35, 34, 73]). Ces **lois de mélange** sont entre autres appliquées à l'étude des poussières interstellaires [40, 62, 63], des aérosols atmosphériques [64, 65, 66, 74, 75] et des phytoplanctons [48]. Elles correspondent habituellement à une topologie donnée du matériau composite, ainsi qu'un certain nombre d'approximations dont les conséquences sont souvent mal maîtrisées [35, 64, 40, 62, 63, 65]. Les lois de mélange les plus classiques, telles que les relations de Lorentz-Lorenz, Maxwell-Garnett et Bruggeman, sont dérivées sous l'hypothèse que les hétérogénéités sont petites devant la longueur d'onde du rayonnement, ce qui n'est pas le cas pour les micro-organismes photosynthétiques. Un effort de recherche est à l'heure actuelle mobilisé autour de la construction de lois étendues permettant la description d'inclusions plus grandes [35]. Mais dans notre contexte, en considérant le manque d'information sur les structures internes, ainsi que l'erreur inévitable associée à l'utilisation d'une loi de mélange pour une particule aussi complexe qu'un micro-organisme, nous proposons d'utiliser la loi de Bruggeman Eq. 2.30 qui est simple, bien documentée, et compatible avec notre connaissance limitée car cette relation est dérivée pour des hétérogénéités sans formes

spécifiques et uniformément réparties dans le volume du diffuseur⁴ (voir [35]) :

$$\sum_i f_i \frac{n_i^2 - (n_{\nu_p}^{eff})^2}{n_i^2 + 2(n_{\nu_p}^{eff})^2} = 0 \quad (2.30)$$

où f_i et n_i sont respectivement la fraction volumique et la partie réelle de l'indice de réfraction de la i^{eme} structure interne du micro-organisme étudié (moyenné sur la population).

A ce stade, nous disposons d'un modèle de l'indice de réfraction complexe de la particule effective. Nous nous intéressons maintenant à la forme et à la taille de l'enveloppe externe des micro-organismes. La **distribution de taille** des micro-organismes étudiés au sein d'une culture est modélisée (en accord avec les observations expérimentales) comme étant une distribution log-normale $p_{Req}(r_{eq})$ du rayon r_{eq} de la sphère équivalente en volume :

$$p_{Req}(r_{eq}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} r_{eq} \ln(s)} \exp \left[-\frac{(\ln r_{eq} - \ln \bar{r}_{eq})^2}{2 \ln^2(s)} \right] \quad (2.31)$$

où \bar{r}_{eq} est la médiane et s représente la largeur de la distribution. Nous définissons le rayon effectif r_{32} (voir [33]) qui sera utilisé lorsque nous souhaiterons représenter cette distribution par une distribution monodisperse équivalente (notamment pour le calcul de la masse sèche des micro-organismes) :

$$r_{32} = \frac{\int_0^\infty p_{Req}(r_{eq}) \pi r_{eq}^2 r_{eq} dr_{eq}}{\int_0^\infty p_{Req}(r_{eq}) \pi r_{eq}^2 dr_{eq}} = \bar{r}_{eq} \exp \left(\frac{5}{2} \ln^2(s) \right) \quad (2.32)$$

La géométrie de l'enveloppe externe des micro-organismes est, dans notre contexte, une information cruciale car elle détermine largement notre capacité ou non à résoudre les équations de Maxwell (maintenant que le problème des hétérogénéités a été contourné grâce à l'utilisation d'un milieu homogène équivalent). La plupart des modèles de propriétés radiatives disponibles utilisent l'approximation de la sphère équivalente (voir [51, 43, 44, 67, 37] pour les micro-organismes mais cette pratique s'étend bien au-delà de ce contexte). La question de la modélisation de l'interaction onde-particule ne pose alors aucune difficulté puisque la sphère est la seule forme pour laquelle les équations de Maxwell sont à l'heure actuelle résolues rigoureusement et simplement pour toutes les tailles de diffuseurs (des codes libres largement validés étant disponibles et les temps de calculs étant très raisonnables). Avant d'aller plus loin dans la construction de notre modèle et d'indiquer comment nous choi-

4. De plus, nous avons comparé les valeurs de $n_{\nu_p}^{eff}$ données par les lois de Bruggeman et de Maxwell-Garnett et nous avons constaté des résultats extrêmement similaires.

sissons de rendre compte des formes des micro-organismes (et de leur interaction avec le rayonnement), nous décrivons rapidement le principe de l'approximation de la sphère équivalente en volume que nous conserverons par la suite comme point de comparaison. Nous considérons simplement que les micro-organismes sont des sphères homogènes dont l'indice de réfraction effectif a été modélisé précédemment, et dont le rayon r_{eq} est distribué suivant l'équation 2.31. Ce modèle est facilement mis en œuvre grâce au code de Lorenz-Mie référencé dans la section 2.2.3, et les résultats correspondants seront discutés ultérieurement. Mais l'approximation de la sphère équivalente peut générer des erreurs significatives dans les deux situations suivantes [76, 77, 78] :

1. le critère d'équivalence, qui est habituellement la surface ou le volume (comme ici) du diffuseur, est infondé,
2. de manière plus dramatique, il n'existe pas de sphère donnant des propriétés radiatives similaires à celles du diffuseur étudié [76].

Nous proposons donc à partir de maintenant un modèle qui inclut une description plus fine de la **forme des micro-organismes** afin de rendre compte de la variabilité et de la complexité des morphologies rencontrées dans le monde microbien. La question de la précision avec laquelle la géométrie des micro-organismes doit être décrite est toujours ouverte et notre objectif est ici de donner une première réponse en considérant des formes simples à symétrie de révolution, comme les cylindres (voir Eq. 2.33) et les sphéroïdes (voir Eq. 2.34), qui ne correspondent pas nécessairement à la forme exacte des micro-organismes étudiés mais qui constituent une amélioration en comparaison avec la sphère.

$$\begin{aligned} \rho(\varphi, z) &= a, \text{ pour } -b < z < b \\ R &= \frac{a}{b} \\ r_{eq} &= a \left(\frac{3}{2R} \right)^{\frac{1}{3}} \end{aligned} \tag{2.33}$$

où l'équation paramétrique ci-dessus du cylindre est exprimée dans le système de coordonnées cylindriques (ρ, φ, z) avec $\rho \in [0, +\infty]$, $\varphi \in [0, 2\pi]$ et $z \in [-\infty, +\infty]$.

$$\begin{aligned} r(\theta, \varphi) &= \left\{ \left| \frac{1}{a} \sin(\theta) \right|^2 + \left| \frac{1}{b} \cos(\theta) \right|^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} \\ R &= \frac{a}{b} \\ r_{eq} &= a \left(\frac{1}{R} \right)^{\frac{1}{3}} \end{aligned} \tag{2.34}$$

où l'équation paramétrique ci-dessus du sphéroïde est exprimée dans le système de coordonnées sphériques (r, θ, φ) avec $r \in [0, +\infty]$, $\theta \in [0, \pi]$ et $\varphi \in [0, 2\pi]$. Un nouveau paramètre

est donc nécessaire (en plus de r_{eq}) à la définition de la forme des micro-organismes : l'élongation⁵ R . La distribution de l'élongation sur la culture de micro-organismes est par la suite négligée (c'est-à-dire que R est l'élongation moyenne), ce qui est une approximation courante dans la littérature dédiée aux diffuseurs non-sphériques [79, 34, 80, 33, 35, 36, 81], dont les micro-organismes [50, 49] (voir [77] pour une discussion sur les effets de cette approximation).

Maintenant que les diffuseurs sont complètement définis (par leur indice de réfraction effectif et leur géométrie), nous allons nous concentrer sur l'analyse de leur **interaction avec le rayonnement**. Plusieurs méthodes sont disponibles pour résoudre le problème de la diffusion d'une onde électromagnétique par une particule homogène (équation 2.17 pour m_r uniforme). Chacune de ces méthodes est limitée par la gamme de paramètres de tailles et de géométries qui peuvent être traités [82, 33, 34, 35, 36]. L'identification de méthodes appropriées pour l'étude des micro-organismes photosynthétiques (d'un point de vue pragmatique) implique d'explorer de front les solutions formelles disponibles (incluant d'éventuelles approximations) ainsi que les méthodes numériques permettant de les mettre en œuvre, en retenant que

1. le paramètre de taille $x = \frac{2\pi r_{eq}}{\lambda_e}$ des micro-organismes cultivés en photobioréacteurs est compris entre 10 et 200,
2. de nombreux micro-organismes sont des particules très allongées pouvant être jusqu'à 50 fois plus longues que larges, impliquant des rayons de courbure très faibles,
3. les micro-organismes ont des indices de réfraction correspondant à de faibles contrastes d'indice par rapport à leur milieu environnant ($n_{r,\nu} \in [1.02, 1.2]$, $\kappa_{r,\nu} \in [10^{-3}, 10^{-2}]$).

La description ci-dessus correspond à l'heure actuelle à une situation identifiée comme étant très délicate (voir [77] dans le contexte des poussières minérales, [79] pour les cristaux de glace et [35] pour une discussion générale). En effet, la résolution rigoureuse des équations de Maxwell est habituellement obtenue en utilisant des méthodes numériques qui, à notre connaissance, échouent dans le cas de la conjonction des deux premiers critères listés. Les méthodes consistant en une division du volume ou de la surface des particules en éléments ou sources discrètes (voir [82] et les références citées, voir aussi [35] pour les plus populaires de ces méthodes) sont à l'heure actuelle limitées par le nombre trop élevé d'éléments/sources nécessaires pour la plupart des micro-organismes (en regard des tailles mémoires et vitesses d'accès disponibles). Les méthodes basées sur la décomposition du champ électromagnétique sur des bases de fonctions, telles que T-Matrice [35, 36], Lorenz-Mie [33, 34], et d'autres méthodes similaires (par exemple [83]), sont quant à elles limitées par la précision numérique des

5. Le terme élongation se réfère ici en fait à l'inverse de l'élongation : $R < 1$ pour les particules allongées, $R > 1$ pour les particules aplaties.

nombres à virgule flottante [84]. Les efforts de recherche déployés autour de ces méthodes suggèrent qu'il sera à terme possible de résoudre rigoureusement le problème de la diffusion par les micro-organismes [82, 85], mais à l'heure actuelle, on est encore conduit à utiliser des approximations. Les deux premiers critères listés sont en dehors de la gamme de validité de l'approximation Rayleigh ($x \ll 1$) et de l'approximation de l'optique géométrique ($x \gg 1$ et rayons de courbures beaucoup plus grands que la longueur d'onde), mais le faible contraste d'indice des micro-organismes (critère 3) entraîne des simplifications importantes du problème. Cela correspond à l'approximation de Rayleigh-Gans pour les petits paramètres de taille, et à l'approximation de la diffraction anormale ou à l'approximation de Schiff pour les grands paramètres de taille (voir [33, 34, 36], ainsi que le chapitre 3 de ce mémoire).

L'**approximation de la diffraction anormale** a été introduite par van de Hulst en 1957 [33] et fait toujours l'objet de nouveaux développements [86, 76, 87, 88], ainsi que d'une large utilisation. Elle est associée aux deux critères de validité suivants (critères qui définissent les particules ténues, *soft particles* en langue anglaise) :

1. $x \gg 1$,
2. $|m_r^2 - 1| \ll 1$

Elle est identifiée comme étant appropriée à l'étude de particules non-sphériques telles que les cristaux de glace [79, 35], certains agrégats fractals [81], et tout particulièrement les cellules biologiques [86, 44, 43, 89]. Dans le cadre de différentes études, il a été montré que cette approximation donne des résultats satisfaisants pour les sphères (seule forme pour laquelle on dispose d'une référence) diélectriques d'indice de réfraction et de paramètres de tailles correspondant aux micro-organismes (voir par exemple [90]). De plus, la précision de l'approximation augmente généralement lorsque les particules sont asphériques et absorbantes [91]. Nous avons confirmé ces résultats dans la zone restreinte de notre gamme de paramètres pour laquelle nous disposons d'une solution de référence [1] (notamment grâce à la méthode T-Matrice), mais nous n'aborderons pas ces comparaisons ici car la validation du modèle dans sa globalité est détaillée à la section 2.4 (quelques cas tests étant également discutés au chapitre 3). L'approximation de la diffraction anormale est construite sur des images physiques qui ne sont valides que pour les petits angles de diffusion. Ainsi, elle donne les sections efficaces d'absorption et de diffusion, de même que la section efficace différentielle de diffusion pour les directions proches de la direction incidente. Elle ne permet pas une description angulaire complète. Il s'agit d'un problème bien identifié (par exemple [44]) mais peu abordé dans la littérature. Des travaux relativement récents proposent une formulation de la fonction de phase (et donc de la section efficace différentielle de diffusion pour tout angle) à partir de l'approximation de la diffraction anormale [87, 88], mais aucune démon-

stration n'accompagne ces résultats. Pour les tailles et les indices de réfraction rencontrés dans notre étude, environ 90% de la puissance totale diffusée est contenue dans la gamme angulaire décrite par l'approximation de la diffraction anormale, et bien que l'approximation ne soit plus valide aux grands angles, nous avons constaté qu'en l'utilisant sur $[0, \pi]$, les résultats obtenus sont étonnamment bons, incluant même une bonne estimation du paramètre d'asymétrie. Ainsi, l'approximation de la diffraction anormale pourrait nous suffire (sauf dans le cas particulier de la diffusion simple arrière qui est essentielle en télédétection mais qui est hors du cadre de notre étude). Cependant, les temps de calcul correspondant à l'évaluation de la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles sont très élevés, si bien que le calcul d'une fonction de phase pour une longueur d'onde (incluant la prise de moyenne sur les distributions de tailles et d'orientations) prend à peu près dix jours⁶. Ces temps ne sont pas compatibles avec la nécessité pour notre étude de construire une base de donnée spectrale couvrant plusieurs micro-organismes et plusieurs compositions pigmentaires (correspondant à différentes conditions de culture). En effet, ne serait-ce qu'au sein de ce mémoire nous verrons que la simple étude des couplages cinétiques que nous proposons à l'annexe B nécessite de considérer cinq compositions pigmentaires distinctes et au minimum une trentaine de longueurs d'ondes pour chacune de ces compositions. La nécessité du calcul des propriétés radiatives pour un grand nombre de paramètres est encore exacerbée dans le cas de forçages physiologiques tels qu'on l'envisage aujourd'hui, par exemple pour la production de biocarburants. Cette problématique de réduction des temps de calculs nous a amenés à explorer l'approximation de Schiff [92], qui est le pendant de l'approximation de la diffraction anormale en mécanique quantique, mais qui inclut une description spécifique aux grands angles (voir chapitre 3). Les résultats donnés par ces deux approximations sont identiques aux petits angles, mais Schiff donne une expression pour la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles qui est au même degré d'approximation qu'aux petits angles. Nous argumentons ici que l'approximation de Schiff est à l'heure actuelle le meilleur des modèles disponibles pour l'étude des micro-organismes photosynthétiques, car elle permet de traiter leurs formes complexes et allongées, dans leur gamme de paramètres de tailles, en incluant une description angulaire des puissances diffusées vers l'arrière. Malheureusement, l'évaluation de l'approximation de Schiff aux grands angles pose exactement les mêmes problèmes numériques que dans le cas de l'approximation anormale : le modèle est physiquement justifié pour les directions arrière (alors qu'il ne l'est pas pour la diffraction

6. Code spécifique basé sur des intégrations par quadratures développé sous Matlab 6.5. et utilisant la fonction *quad8* (quadrature de Simpson adaptative d'ordre élevé) pour les intégrales de l'approximation de la diffraction anormale, la fonction *quadl* pour l'intégration sur la distribution de taille et une quadrature de Gauss d'ordre 24 pour l'intégration sur les orientations. Ces résultats ont été obtenus sur un biprocesseur Xéon 2.8GHz, sans parallélisation.

anomale), mais il est pratiquement inutilisable. Cependant, le formalisme correspondant a des propriétés mathématiques nouvelles qui peuvent être exploitées. La solution que nous proposons dans la suite de ce document consiste à retravailler l'expression de Schiff afin d'en extraire un comportement dégradé simple pour les 10% de la puissance diffusée aux grands angles. L'utilisation de ce comportement dégradé aux grands angles n'est bien sûr pas totalement satisfaisante dans le sens où nous préférierions résoudre l'expression exacte donnée par l'approximation de Schiff. Néanmoins, ce modèle simplifié est validé à la section 2.4 et au chapitre 3, où l'on montre qu'il donne des résultats satisfaisants pour notre étude, tout en réduisant les temps de calculs à seulement 40 minutes par longueur d'onde⁷. On retiendra donc que le modèle utilisé ici pour la diffusion aux grands angles est une proposition originale mais que l'obtention des propriétés de diffusion arrière par les particules ténues reste une question ouverte (qui sera abordée au chapitre 3 de ce manuscrit). Enfin, nous remarquons que d'autres méthodes peuvent être utilisées dans le cas de micro-organismes de petites tailles (T-Matrice, Rayleigh-Gans, etc) sans pour autant remettre en question l'intégralité de la chaîne méthodologique présentée dans ce chapitre.

L'**approximation de Schiff** [92] sera plus amplement détaillée au chapitre 3 et nous nous contentons ici de décrire brièvement les interprétations physiques sur lesquelles elle s'appuie et de donner les expressions générales auxquelles elle conduit. Elle est associée aux deux mêmes critères de validité que l'approximation de la diffraction anomale, et à la définition d'un angle θ_l qui fixe la limite entre les petits angles et les grands angles de diffusions :

$$\theta_l = \sqrt{\frac{2}{\tilde{x}}} \quad (2.35)$$

où \tilde{x} est le paramètre de taille calculé pour la plus petite dimension caractéristique du diffuseur (dimension qui gouverne l'ouverture angulaire de la puissance diffusée). Pour les petits angles de diffusion ($\theta_d < \theta_l$), l'approximation correspond à des images physiques simples associées à ses critères de validité :

- $x \gg 1$, ce qui permet de faire appel au concept de rayon de l'optique géométrique,
- $|m_r^2 - 1| \ll 1$, ce qui assure que la réflexion et la réfraction des rayons incidents par la particule peuvent être ignorées : les rayons traversent la particule en ligne droite, sans être déviés.

L'approximation est en outre basée sur le principe que l'extinction est le résultat de l'inter-

7. Code C++ spécifique basé sur des intégrations par la méthode de Monte Carlo. Les algorithmes correspondants seront présentés au chapitre 3. Ces résultats ont été obtenus sur une station de calcul Xserve composée de deux processeurs Quad-Core Intel Xeon de 2.66 GHz. Ces codes sont parallélisés mais le temps de calcul indiqué a été obtenu sur un seul processeur.

férence entre les rayons qui sont déphasés et atténués à la traversée de la particule, et ceux qui ne rencontrent pas la particule [33]. L'absorption est due à l'atténuation du rayonnement le long des rayons qui traversent la particule. Les expressions des propriétés radiatives correspondent donc à une simple intégration des atténuations et des déphasages dus à la longueur de traversée de la particule en chaque point de sa surface projetée vue depuis la direction des rayons incidents. Les phénomènes d'interférence donnent un schéma similaire à celui de la diffraction Fraunhofer. Pour une particule isolée d'orientation fixe \mathbf{e}_o (par rapport à la direction d'incidence \mathbf{e}_i de l'onde plane) et de taille représentée par le rayon r_{eq} de sa sphère équivalente, l'expression de l'amplitude de diffusion est la suivante :

$$\begin{aligned} \hat{S}_\nu(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq}) &= \frac{k_{e,\nu}}{2\pi} \int \int_{\mathcal{P}(\mathbf{e}_o, r_{eq})} dx dy \exp [ik_{e,\nu} \theta_d (x \cos \varphi_d + y \sin \varphi_d)] \\ &\quad , \theta_d < \theta_l \\ &\quad \times \{ 1 - \exp [-ik_{e,\nu} l(x, y; \mathbf{e}_o, r_{eq}) (m_{r,\nu} - 1)] \} \end{aligned} \quad (2.36)$$

D'après les définitions de la section 2.1.2, il vient :

$$\hat{\sigma}_{ext,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) = \frac{4\pi}{k_{e,\nu}} \operatorname{Re} \left\{ \hat{S}_\nu(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq}) \right\} \quad (\text{Théorème optique})$$

$$\hat{\sigma}_{a,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) = \int \int_{\mathcal{P}(\mathbf{e}_o, r_{eq})} dx dy [1 - \exp(-2k_{e,\nu} l(x, y; \mathbf{e}_o, r_{eq}) \kappa_{r,\nu})] \quad (2.37)$$

$$\hat{\sigma}_{d,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) = \hat{\sigma}_{ext,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) - \hat{\sigma}_{a,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq})$$

$$\hat{W}_{d,\nu}(\mathbf{e}_d | \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq}) = |\hat{S}_\nu(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq})|^2 \quad , \theta_d < \theta_l$$

où Re est la partie réelle, $k_{e,\nu} = \frac{2\pi}{\lambda_{e,\nu}}$ est le nombre d'onde dans le milieu environnant d'indice $n_{e,\nu}$ où la longueur d'onde de l'onde incidente est $\lambda_{e,\nu} = \frac{\lambda_0}{n_{e,\nu}}$. Toutes les autres notations sont définies à la figure 2.5. Nous remarquons que dans l'expression ci-dessus de $\hat{\sigma}_{ext,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq})$, l'angle θ_d est nul car \hat{S}_ν est pris pour la direction avant $\mathbf{e}_d = \mathbf{e}_i$, ce qui donne une expression très simple :

$$\hat{\sigma}_{ext,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) = 2 \operatorname{Re} \left\{ \int \int_{\mathcal{P}(\mathbf{e}_o, r_{eq})} dx dy \{ 1 - \exp [-ik_{e,\nu} l(x, y; \mathbf{e}_o, r_{eq}) (m_{r,\nu} - 1)] \} \right\} \quad (2.38)$$

où les notations géométriques, notamment la surface projetée \mathcal{P} , sont définies à la figure 2.5.

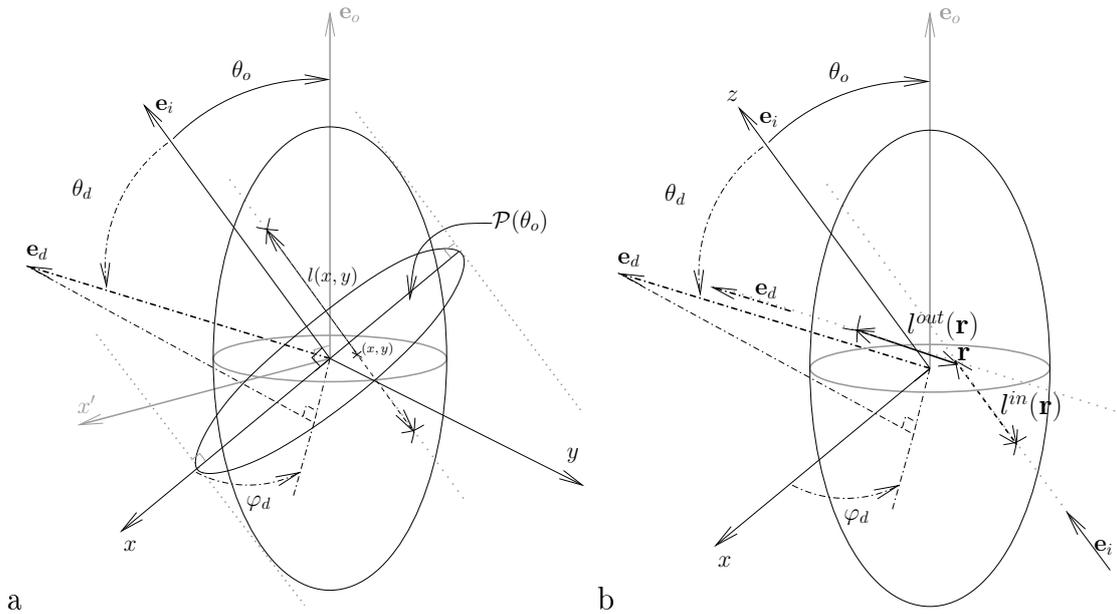


FIGURE 2.5: Définitions des notations utilisées pour l'approximation de Schiff : schéma d'un sphéroïde dont l'axe de révolution \mathbf{e}_o fait un angle θ_o avec la direction d'incidence \mathbf{e}_i . \mathcal{P} est la surface projetée de la particule sur un plan perpendiculaire à \mathbf{e}_i . a : \mathcal{P} est associée à un repère (x, y) (pour $\theta_o = 0$: $x' \equiv x$ et $\mathbf{e}_i \equiv \mathbf{e}_o$). La direction de diffusion \mathbf{e}_d fait un angle θ_d avec \mathbf{e}_i et φ_d avec l'axe x du plan contenant \mathcal{P} . $l(x, y)$ est la longueur de traversée d'un rayon colinéaire à \mathbf{e}_i passant à travers la particule en ligne droite en intersectant \mathcal{P} à la position (x, y) . b : $l^{in}(\mathbf{r})$ est la longueur d'un rayon incident (de direction \mathbf{e}_i) entre son entrée dans la particule et la position \mathbf{r} du volume de la particule ; $l^{out}(\mathbf{r})$ est la longueur d'un rayon partant de la position \mathbf{r} avec la direction de diffusion \mathbf{e}_d jusqu'à sa sortie de la particule.

Aux grands angles, les images physiques restent très voisines mais la déviation des trajets optiques par la particule ne peut plus être négligée. Cette déviation n'est pas due aux phénomènes de réfraction et de réflexion à l'interface entre la particule et son environnement (nous restons dans les mêmes images que précédemment) mais à l'interaction entre le rayonnement incident et la matière dont est constituée la particule homogène équivalente. L'amplitude de diffusion est exprimée comme la somme des atténuations et déphasages le long de tous les rayons qui arrivent avec la direction \mathbf{e}_i , puis interagissent en un point \mathbf{r}_0 du volume de la particule et repartent avec la direction de diffusion \mathbf{e}_d . L'intégration ne peut plus se

réduire à la surface projetée de la particule et elle porte maintenant sur son volume \mathcal{V} :

$$\begin{aligned} \hat{S}_\nu(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq}) &= \frac{i k_{e,\nu}^2}{2\pi} (m_{r,\nu} - 1) \int_{\mathcal{V}(r_{eq})} d\mathbf{r}_0 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \\ &\times \exp \left\{ -i k_{e,\nu} (m_{r,\nu} - 1) \left[l^{in}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq}) + l^{out}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_d; \mathbf{e}_o, r_{eq}) \right] \right\} \end{aligned} \quad , \theta_d > \theta_l \quad (2.39)$$

où toutes les notations sont définies à la figure 2.5. On montre au chapitre 3 qu'en première approximation, on peut considérer que $|\hat{S}|^2 \propto \frac{1}{\sin^3(\theta_d/2)}$. Ce comportement "lisse" de $|S|^2$ est encore plus solidement justifié lorsque l'on considère une distribution de taille et d'orientation (ce qui est notre cas dans la suite). De plus, nous sommes ici à des angles de diffusion pour lesquels les effets liés à la nature vectorielle du rayonnement électromagnétique ne peuvent plus être négligés. L'amplitude de diffusion est une matrice dont la norme (définie au chapitre 3) est $|S|^2 \propto \frac{1}{\sin^3(\theta_d/2)} \frac{1+\cos^2(\theta_d)}{2}$. Sur cette base, nous proposons de dégrader encore le modèle de diffusion arrière avec $|S|^2 = \frac{r}{\sin^n(\theta_d/2)} \frac{1+\cos^2(\theta_d)}{2}$ afin d'obtenir un modèle à deux paramètres libres r et n permettant de satisfaire aux critères de continuité de W_d en θ_l , à la normalisation $\sigma_d = \int_{4\pi} d\mathbf{e}_d W_d(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i)$ et à $W_d > 0$, sans avoir à altérer les résultats donnés par l'approximation de Schiff aux petits angles. En effet, il est ici important de ne pas dégrader la description des petits angles car elle est pour nous essentielle et qu'elle correspond à un meilleur niveau d'approximation. On remarque que dans toutes les situations traitées à la section 2.3, on retrouve des valeurs de n proches de 3 (plus précisément $2 \lesssim n \lesssim 4$), comme dans l'expression de $|S|^2$ avant dégradation. Après la prise de moyenne sur les distributions d'orientations $p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o)$ et de tailles $p_{R_{eq}}(r_{eq})$ (voir Sec. 2.1.2), notre modèle de la diffusion par la solution de micro-organismes est :

$$\begin{aligned} \sigma_{ext,\nu} &= \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{\sigma}_{ext,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) \\ \sigma_{a,\nu} &= \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{\sigma}_{a,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq}) \end{aligned} \quad (2.40)$$

$$\sigma_{d,\nu} = \sigma_{ext,\nu} - \sigma_{a,\nu}$$

$$W_{d,\nu}(\theta_d) = \begin{cases} \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{W}_{d,\nu}(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq}) & , \theta_d \leq \theta_l \\ \frac{r}{\sin^n(\theta_d/2)} \frac{1 + \cos^2(\theta_d)}{2} & , \theta_d \geq \theta_l \end{cases} \quad (2.41)$$

où, compte tenu du mélange qui a lieu dans les photobioréacteurs, la distribution des orientations est isotrope $p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) = \frac{1}{4\pi}$ sur l'angle solide total (qui est ici noté 4π), $p_{R_{eq}}(r_{eq})$ est défini à l'équation 2.31, $\hat{\sigma}_{ext,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq})$, $\hat{\sigma}_{a,\nu}(\mathbf{e}_o, r_{eq})$, $\hat{W}_{d,\nu}(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq})$ sont donnés aux équations 2.36 et 2.37, et où les deux paramètres r et n du modèle dégradé aux grands angles sont ajustés pour satisfaire aux deux conditions suivantes :

1. $W_{d,\nu}$ est continu à l'angle limite :

$$\frac{r}{\sin^n(\theta_l)/2} \frac{1 + \cos^2(\theta_l)}{2} = \int_{4\pi} d\mathbf{e}_o p_{\mathbf{E}_o}(\mathbf{e}_o) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \hat{W}_{d,\nu}(\theta_l, \varphi_d; \mathbf{e}_o, r_{eq}) \quad (2.42)$$

où $\hat{W}_{d,\nu}(\mathbf{e}_d|\mathbf{e}_i; \mathbf{e}_o, r_{eq})$ est écrit en fonction des deux angles θ_d et φ_d définis à la figure 2.5 afin de spécifier que l'intégration se fait à $\theta_d = \theta_l$,

2. et la section efficace de diffusion $\sigma_{d,\nu}$ Eq. 2.40 est l'intégrale de $W_{d,\nu}$ sur l'angle solide total :

$$2\pi \int_0^\pi d\theta_d \sin(\theta_d) W_{d,\nu}(\theta_d) = \sigma_{d,\nu} \quad (2.43)$$

où l'intégration de $W_{d,\nu}(\theta_d)$ est analytique pour $\theta_d \geq \theta_l$.

La construction de notre modèle est maintenant complète et les expressions de l'approximation de Schiff dans le cas particulier des cylindres et des sphéroïdes sont données au chapitre 3. Ce modèle est basé sur un jeu de paramètres d'entrées qui sont : les spectres d'absorption des molécules de pigment *in vivo*, la composition pigmentaire des micro-organismes, la partie réelle de l'indice de réfraction des structures internes pour n'importe quelle longueur d'onde où le micro-organisme est non-absorbant, la fraction volumique de ces structures internes, la distribution de taille et l'élongation moyenne des micro-organismes. Un schéma résumant la chaîne de modélisation est donné à la figure 2.6. Dans la prochaine section, les protocoles expérimentaux et les bases de données que nous utilisons à l'heure actuelle pour la détermination de ces paramètres d'entrée sont présentés.

2.2.2 Détermination des paramètres d'entrée du modèle

Mis à part les spectres d'absorption des pigments *in vivo*, les paramètres discutés dans cette section dépendent des conditions de cultures des micro-organismes (la composition pigmentaire étant la plus sensible). Dans les situations traitées à la section 2.3, des conditions standards de pré-culture sont considérées : erlenmeyer de 250 mL, agitation 100 rpm, faible densité de flux de photons $\sim 30 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, pH et température optimums. Cependant, nous mettons ici l'accent sur les protocoles plutôt que sur les valeurs obtenues dans les

conditions standards que nous étudions (valeurs qui seront données à la section 2.3) afin de souligner clairement la nécessité de mesurer à nouveau ces paramètres si les conditions de culture sont changées (ou de trouver les valeurs correspondantes dans la littérature).

Les spectres d'absorption *in vivo* $E_{a_{pig}}(\nu)$ des pigments purs sont une des clés de la méthodologie présentée dans ce chapitre. Le fait que ces spectres correspondent aux propriétés des pigments dans des conditions *in vivo* est crucial car l'environnement des molécules peut significativement modifier leur absorption. Deux caractéristiques principales de l'environnement immédiat des molécules de pigment dans les micro-organismes définissent ce que nous appelons les conditions *in vivo* :

- les pigments sont associés à des protéines au sein de complexes situés dans les antennes photosynthétiques. Il existe un fort couplage des transferts d'énergie dans ces complexes pigment-protéine, ce qui a pour conséquence d'élargir significativement les raies d'absorption et de conférer aux micro-organismes des spectres d'absorption continus et lisses [19, 42].
- Ces édifices moléculaires sont entourés d'eau intracellulaire.

Deux approches se distinguent pour la mesure de ces spectres d'absorption. La première consiste en une inversion à partir de spectres d'absorption mesurés pour les suspensions de micro-organismes [44, 42, 43]. La difficulté est alors de prendre en compte la diffusion et de distinguer la contribution des différentes espèces pigmentaires lors de leur déconvolution. Par contre, ces mesures assurent que les pigments sont dans des conditions *in vivo*. La seconde approche consiste en une mesure des spectres d'absorption des pigments purs en solution. Dans ce cas, la difficulté est d'assurer des conditions *in vivo* car, beaucoup de pigments isolés n'étant pas solubles dans l'eau, l'utilisation de solvants organiques est parfois inévitable (typiquement pour les chlorophylles et les caroténoïdes). L'utilisation de ces solvants peut provoquer des décalages des spectres d'absorption pouvant aller jusqu'à 40 nm pour les caroténoïdes et jusqu'à 100 nm pour les bacteriochlorophylles. On tente alors de tenir compte de cet effet en corrigeant les spectres obtenus à partir des spectres d'absorption des micro-organismes non dégradés [45]. Il nous semble ici important de décorréler la détermination des propriétés d'absorption des pigments du modèle de diffusion de la lumière par les micro-organismes. Pour cette raison, la seconde méthode a été utilisée, en s'appuyant sur le travail fondateur de Bidigare [45], afin de créer une base de données rassemblant les propriétés de 14 des pigments photosynthétiques les plus importants dans la nature (et représentatifs des bactéries photosynthétiques, des cyanobactéries et des micro-algues) pour chaque nanomètre dans la gamme spectrale utilisée par la photosynthèse, allant de 350 ou 400 nm à 780 ou 950 nm. Cette base de données est mise à disposition [21]. Elle peut être utilisée avec confiance et constitue une contribution significative de l'équipe de l'Institut Pascal.

Pour la chlorophylle *a*, les caroténoïdes photosynthétiques et les Caroténoïdes de protection qui requièrent l'utilisation de solvants organiques, les données sont celles de [45] étendues et légèrement corrigées. Pour les chlorophylles *b* et *c*, deux autres pigments uniquement solubles dans des solvants organiques, les données sont directement celles de [45], incluant une interpolation à tous les nanomètres. Sept pigments solubles dans l'eau sont aussi rassemblés dans la base de données. A l'exception de la phycocyanine Y qui a été interpolée à partir de [45], les données concernant les phycoérythrine R, phycoérythrine B, phycoérythrinocyanine, phycocyanine C, phycocyanine R et l'allophycocyanine sont des données expérimentales obtenues dans l'équipe grâce à une analyse quantitative des spectres d'absorption. Enfin, deux autres pigments caractéristiques de la bactérie pourpre non-sulfureuse *Rhodospirillum rubrum*, la bactériochlorophylle *a* et les caroténoïdes spécifiques ont aussi été déterminés expérimentalement au sein de l'équipe.

La composition pigmentaire des micro-organismes est déterminée à partir du ratio de la concentration pigmentaire d'un échantillon de culture sur sa concentration totale en biomasse sèche (pesée après séchage de l'échantillon à l'étuve : 110 °C, 24 h). La concentration pigmentaire sus-mentionnée est obtenue en utilisant deux approches distinctes en fonction du solvant employé. Pour les solvants organiques, un certain volume de culture est centrifugé (5000 g, 5 min., 4 °C) et le surnageant est extrait. Un volume prédéfini d'un solvant approprié est ensuite ajouté pour extraction jusqu'à la dépigmentation totale des cellules. L'échantillon est encore une fois centrifugé dans les mêmes conditions et le surnageant est utilisé pour lire les densités optiques (DO) à des longueurs d'ondes spécifiques. Pour les pigments solubles dans l'eau, un aliquot est congelé et décongelé sept fois (Azote liquide à 77 K) puis centrifugé (10000 g, 5 min., 4 °C) avant de lire les DO du surnageant à des longueurs d'ondes spécifiques. Dans tous les cas, la concentration pigmentaire est obtenue à partir de corrélations bien établies dans la littérature permettant une estimation suffisamment précise de la contribution de chaque pigment à partir de la seule lecture des DO (spectrophotomètre SAFAS, MC2, Monaco) pour quelques longueurs d'ondes spécifiques [93, 94, 95, 96]. Cette méthode classique est très pratique car elle évite le recours à une séparation chromatographique de chaque pigment. La fraction massique sèche $w_{pig,j}$ correspondant à chaque pigment j est ainsi obtenue. Cette mesure constitue une source d'incertitude expérimentale majeure au sein de la présente méthodologie ($w_{pig,j}$ est déterminé à $\sim 15\%$ près) et son impact sur les résultats sera étudié aux sections 2.3 et 2.4. Une fois les $w_{pig,j}$ mesurés, la concentration $C_{pig,j}$ des espèces pigmentaires dans le volume du micro-organisme est déduite de la relation :

$$C_{pig,j} = w_{pig,j} \rho_{dry} (1 - x_w) \quad (2.44)$$

où ρ_{dry} est la densité de la biomasse sèche, donnée remarquablement constante quel que soit le micro-organisme : $\rho_{dry} = 1400 \pm 100 \text{ kg.m}^{-3}$ [97, 98], et où x_w est la fraction volumique intracellulaire en eau, qui est aussi une propriété relativement constante allant de 0.75 à 0.85 pour tous les micro-organismes [99, 50]. Bien que très peu variable, x_w reste à déterminer expérimentalement. De par le fait que ρ_{dry} soit constant, on peut établir la relation suivante qui doit être vérifiée afin de concilier un certain nombre de paramètres du modèle :

$$\frac{C_x}{N_p} = \bar{V}_p \rho_{dry} (1 - x_w) \quad (2.45)$$

où C_x est la concentration en biomasse sèche de l'échantillon, N_p est le nombre de micro-organismes par unité de volume (mesuré expérimentalement grâce à une cellule de Malassez) et $\bar{V}_p = \frac{4}{3}\pi r_{32}^3$ est le volume moyen du micro-organisme considéré, qui est calculé à partir du rayon effectif r_{32} de la distribution de taille de la sphère équivalente en volume (voir Eq. 2.32) dont la mesure est présentée plus loin. Ainsi, x_w est déterminée expérimentalement en mesurant $\frac{C_x}{N_p}$ pour plusieurs échantillons de différentes concentrations et en calculant la valeur moyenne de $1 - \frac{\frac{C_x}{N_p}}{\bar{V}_p \rho_{dry}}$. Cette estimation de x_w est très sensible aux erreurs lors de la détermination des principaux paramètres du modèle (x_w, C_x, \bar{V}_p) et constitue une étape cruciale de validation de la méthodologie expérimentale. Les mesures de $w_{pig,j}$ et x_w obtenues pour chacun des trois micro-organismes étudiés sont données aux figures 2.7, 2.8 et 2.9. Les valeurs de $Ea_{pig}(\nu)$ et de $C_{pig,j}$ sont utilisées pour la détermination de la partie imaginaire de l'indice de réfraction à partir de l'équation 2.29.

La partie réelle de l'indice de réfraction des structures internes des micro-organismes fait l'objet d'une petite base de données récemment mise à jour qui est présentée dans la table 2.2. Cette base de données rassemble des informations trouvées dans la littérature pour différentes parties constitutives des trois types de micro-organismes considérés dans cette étude, dans la région du visible et du proche infrarouge. Les valeurs retenues dans notre étude y sont indiquées.

Groupe Structure	Bactéries [49, 50, 51]		Cyanobactéries (cellules végétatives ^d) [58]		
	Paroi ^c	Cytoplasme	Paroi ^c	Thylakoïdes Nucléoïde	
<i>n</i>	1.40 - 1.42	1.37 - 1.38	1.39	1.47	
Valeur retenue	1.41	1.375	1.39	1.47	
Eukaryotes					
Groupe Structure	Paroi ^c	Nucléole	Noyau ^a	Mitochondrie	Cytoplasme
	1.36 - 1.53 [48]	1.38 [53]	1.36 [53]	1.36 - 1.40 [48]	1.41 - 1.43 [53]
<i>n</i>	1.5 [37]	1.375 - 1.385 [56]	1.355 - 1.365 [56]	1.38 [53]	1.36 - 1.39 [56]
Valeur retenue	1.5	1.44 [58]	1.36 [58]	1.51 [37]	1.34 [58]
				1.42	1.35 [37]
				1.51	1.36 ^b

^a Hors nucléole. ^b Reste du cytoplasme. ^c Membrane cytoplasmique, paroi cellulaire et couches externes.

^d Les hétérocystes et les akinètes étant ignorés. * stock de Polyhydroxybutyrate.

TABLE 2.2: Partie réelle de l'indice de réfraction des principales structures internes des micro-organismes dans la région du visible et du proche infrarouge.

La fraction volumique des structures internes des micro-organismes (pour la division définie au tableau 2.2) est déterminée au cas par cas. Il existe très peu d'informations dans la littérature concernant cette division structurelle du volume et dans la plupart des cas il n'y a pas d'autres choix que d'utiliser une estimation grossière. On remarque tout de même que ces informations sont disponibles pour *Chlamydomonas reinhardtii* dans [101], où elles ont été obtenues à partir d'une analyse de coupes du micro-organisme réalisées par microscopie électronique. Pour *Arthrospira platensis*, nous avons nous même estimé ces fractions volumiques à partir de clichés de microscopie électronique. Les fractions volumiques des structures de *Rhodospirillum rubrum* ont été obtenues en recoupant quelques informations trouvées dans littérature. Les valeurs utilisées pour chacun des trois micro-organismes étudiés sont données aux figures 2.7, 2.8 et 2.9.

La partie réelle de **l'indice de réfraction de l'eau** est obtenue par la corrélation donnée dans [102].

La taille et la forme des micro-organismes sont déterminées par analyse d'image de microscopie optique. Un ensemble de clichés (microscope Olympus BX41, Japan associé à une caméra CCD Kappa, PS 30) sont analysés grâce à un logiciel de traitement (Image Pro Plus software, Media Cybernetics, USA) afin de mesurer les distributions d'élongations R et des rayons de la sphère équivalente r_{eq} . Les paramètres \bar{r}_{eq} et s de la distribution de taille Eq. 2.31 sont ajustés à partir de la distribution expérimentale. R est pris comme étant la moyenne sur l'ensemble des clichés. Les résultats obtenus pour chacun des trois micro-organismes étudiés sont donnés aux figures 2.7, 2.8 et 2.9.

2.2.3 Méthodes numériques

Le point d'ancrage satisfaisant la loi de mélange de Bruggeman est déterminé à partir d'un algorithme de Newton-Raphson. L'approximation de Kramers-Krönig soustractive est implémentée à partir d'un code Matlab 6.5 adapté de [70]. La résolution des équations de Maxwell pour les sphères équivalentes est réalisée grâce au code de type Lorenz-Mie fourni à www.giss.nasa.gov/staff/mmishchenko en référence à [36]. L'approximation de Schiff est résolue par la méthode de Monte Carlo grâce aux algorithmes décrits à la section 3.4 du chapitre 3. Les paramètres r et n du modèle de la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles sont ajustés à partir d'un algorithme de Newton-Raphson.

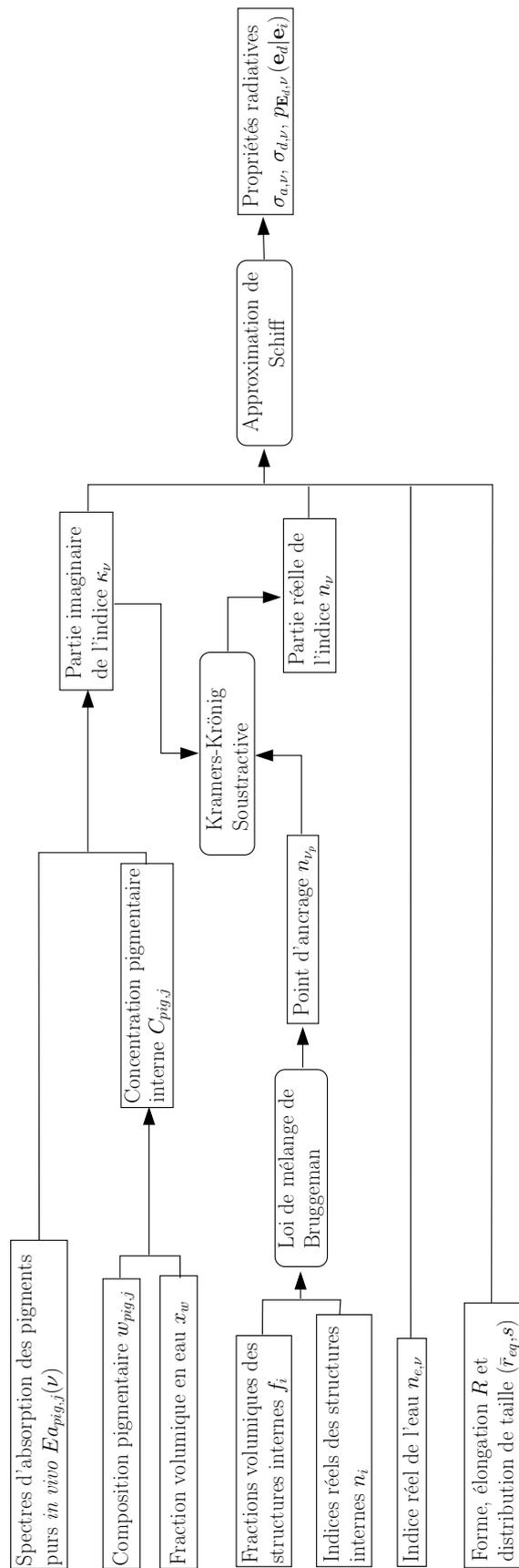


FIGURE 2.6: Résumé de la chaîne de modélisation pour la détermination de propriétés optiques et radiatives des micro-organismes photosynthétiques.

2.3 Résultats

Les résultats obtenus par la mise en œuvre de la méthodologie présentée à la section précédente sont donnés à la figure 2.7 pour *Rhodospirillum rubrum*, à la figure 2.8 pour *Arthrospira platensis* et à la figure 2.9 pour *Chlamydomonas reinhardtii*. Ces résultats incluent trois niveaux successifs de précision dans la description des micro-organismes :

1. seule l'absorption par une solution homogène de pigments est prise en compte, comme cela a été décrit dans le chapitre 1,
2. les propriétés de diffusion et d'absorption sont dérivées en utilisant l'approximation de la sphère équivalente en volume,
3. la forme des micro-organismes est modélisée de manière plus précise grâce à l'approximation de Schiff.

Les sections efficaces sont exprimées en m^2 par kilogramme de biomasse sèche en considérant la masse sèche effective M_{eff} du micro-organisme étudié⁸ :

$$M_{eff} = \rho_{dry}(1 - x_w)\frac{4}{3}\pi r_{32}^3 \quad (2.46)$$

avec ρ_{dry} et x_w définis à la section 2.2.2 et r_{32} défini à l'équation 2.32. Les erreurs associées à l'incertitude sur la mesure de la composition pigmentaire (qui est identifiée comme étant la principale source d'incertitude expérimentale du modèle) sont étudiées en reportant en tant que barre d'erreur les résultats obtenus pour les valeurs minimum et maximum de $w_{pig,i}$ (sous l'hypothèse d'une variation linéaire des propriétés optiques et radiatives dans cette gamme). Pour une meilleure lisibilité des résultats cette étude de sensibilité n'est réalisée que pour le modèle 3 (voir liste ci-dessus), mais nous notons que les autres modèles sont associés à des erreurs de même ordre de grandeur.

Ces résultats indiquent que plus l'indice de réfraction est proche de celui de l'eau, plus la section efficace d'absorption est indépendante de la forme du micro-organisme, et donc du modèle utilisé. Le modèle d'absorption par la solution de pigment, qui ne prend en compte aucune forme, donne les mêmes résultats que les autres modèles lorsque $n_{r,\nu} \rightarrow 1$. Cette limite est bien illustrée par *Rhodospirillum rubrum*. Par contre, bien que les contrastes diélectriques restent relativement faibles, l'influence de la forme sur σ_a est bien plus marquée

8. Nous travaillons ici avec des unités massiques comme expliqué au chapitre 1. Cette grandeur est pratique à mesurer et appropriée aux études cinétiques basées sur des bilans de masse. Dans le cadre de la diffusion indépendante, les coefficients d'absorption et de diffusion d'une suspension sont $k_{a,\nu} = C_x \sigma_{a,\nu}$ et $k_{d,\nu} = C_x \sigma_{d,\nu}$ (loi de Beer), où C_x est la concentration en micro-organismes exprimée en $kg.m^{-3}$. Les sections efficaces massiques sont obtenues en divisant par M_{eff} les résultats exprimés en m^2 par particule.

pour *Arthrospira platensis* et *Chlamydomonas reinhardtii*. A l'opposé, le modèle de forme du micro-organisme a toujours une influence sur les propriétés de diffusion (aucun modèle de diffusion ne peut être dérivé indépendamment d'une forme de particule). On observe que les propriétés radiatives obtenues avec le modèle de sphère équivalente peuvent être significativement différentes de celles obtenues avec une meilleure description de la forme, en particulier dans le cas de *Arthrospira platensis* où la sphère et le cylindre sont très différents. Dans le cas de *Chlamydomonas reinhardtii*, la sphère et le sphéroïde de faible élongation étant très proches, les résultats obtenus avec ces deux modèles sont relativement similaires bien que quelques différences soient déjà visibles.

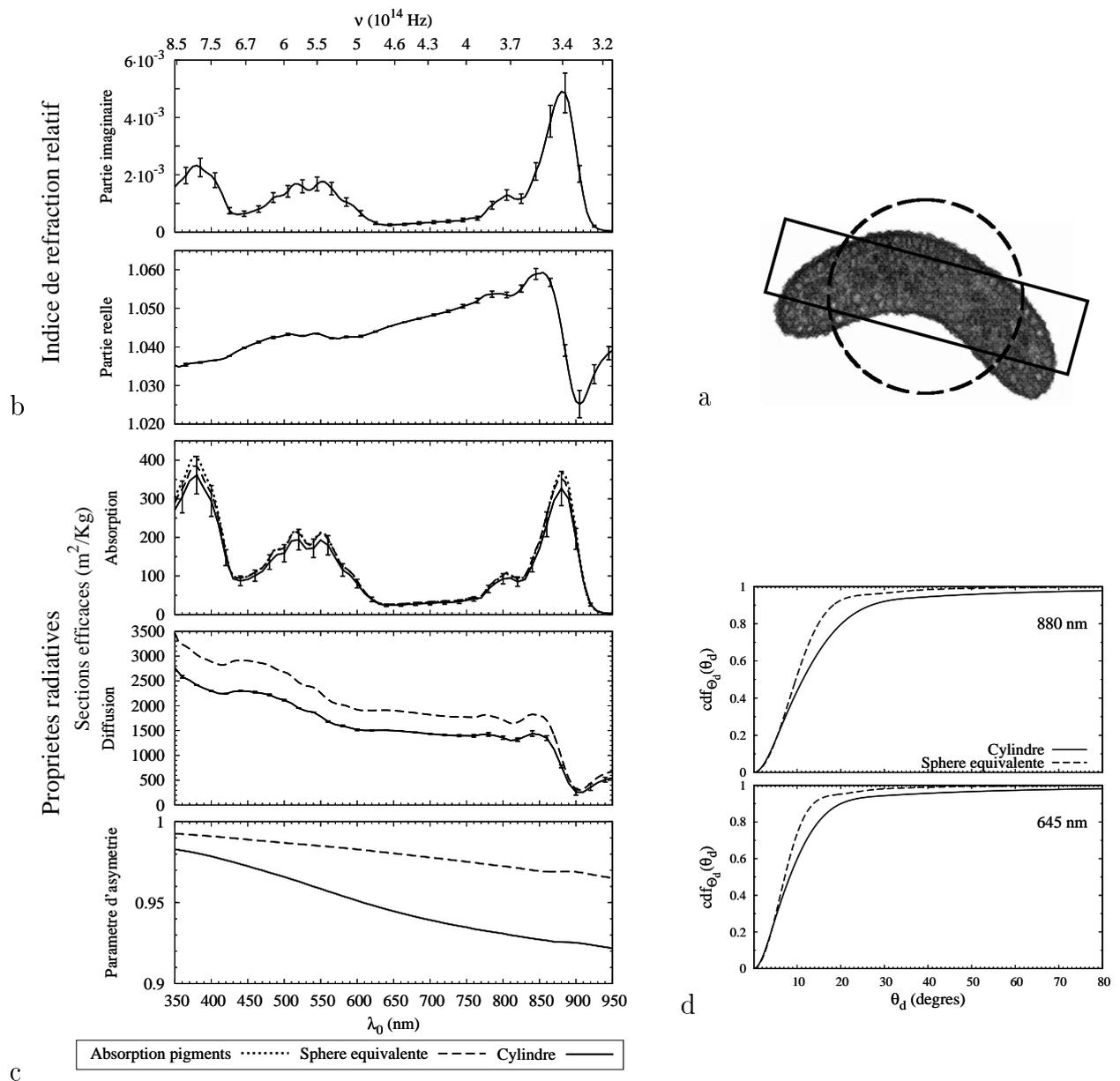


FIGURE 2.7: a : Bactérie pourpre *Rhodospirillum rubrum*; forme cylindrique d'élongation $R = 0.263$ (trait continu); distribution de taille $\bar{r}_{eq} = 0.983 \mu m$ et $s = 1.1374$ (voir Eq. 2.31) de la sphère équivalente en volume (pointillés). b : Indice de réfraction obtenu pour la composition pigmentaire suivante (fractions massiques sèches $w_{pig,i}$ en %) : Bacteriochlorophylle a 1.75 ± 0.25 , Caroténoïdes spécifiques 0.35 ± 0.05 ; et le point d'ancrage $n_{645nm} = 1.39$ dérivé à partir des fractions volumiques : $f_{paroi} = 30\%$, $f_{cytoplasme} = 65\%$, $f_{PHB} = 5\%$ (voir Tab. 2.2); $x_w = 0.82$. c : Propriétés radiatives; $M_{eff} = 1.1354 \cdot 10^{-15} kg \cdot particule^{-1}$. d : Cumulée de la fonction de phase en fonction de l'angle de diffusion pour $\lambda_0 = 645$ et 880 nm

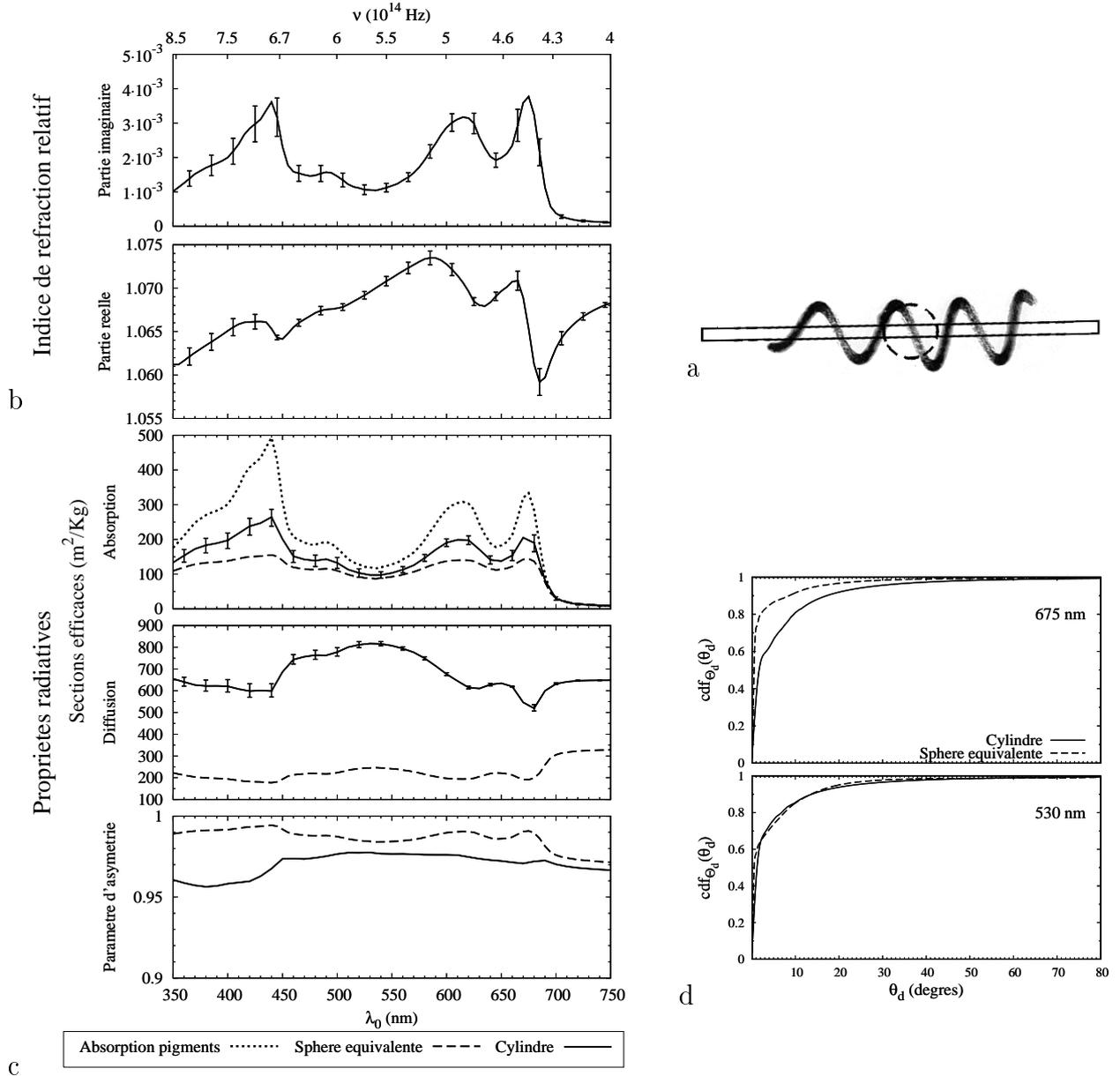


FIGURE 2.8: a : Cyanobactérie filamenteuse pluricellulaire *Arthrospira platensis*; forme cylindrique d'élongation $R = 0.0284$; distribution log-normale du rayon du cylindre $\bar{a} = 4.1946 \mu m$ et $s = 1.11$ (voir Eq. 2.31 où r_{eq} est remplacé par a et \bar{r}_{eq} par \bar{a}); rayon effectif du cylindre $a_{32} = 4.31 \mu m$ (trait continu); distribution de taille $\bar{r}_{eq} = 15.52 \mu m$ et $s = 1.11$ de la sphère équivalente en volume (pointillés). b : Indice de réfraction obtenu pour la composition pigmentaire suivante (fractions massiques sèches $w_{pig,i}$ en %) : Chlorophylle a 1 ± 0.2 , Phycocyanine C 9 ± 0.6 , Allophycocyanine 6 ± 0.4 , Caroténoïdes photosynthétiques 0.1715 ± 0.0285 , Caroténoïdes de protection 0.1285 ± 0.0215 ; et le point d'ancrage $n_{825nm} = 1.42$ dérivé à partir des fractions volumiques : $f_{paroi} = 10\%$, $f_{thylakoides} = 40\%$, $f_{nucleoïde} = 5\%$, $f_{cytoplasme} = 45\%$ (voir Tab. 2.2); $x_w = 0.8$. c : Propriétés radiatives; $M_{eff} = 4.7576 \cdot 10^{-12} kg.particule^{-1}$. d : Cumulée de la fonction de phase en fonction de l'angle de diffusion pour $\lambda_0 = 530$ et $675 nm$.

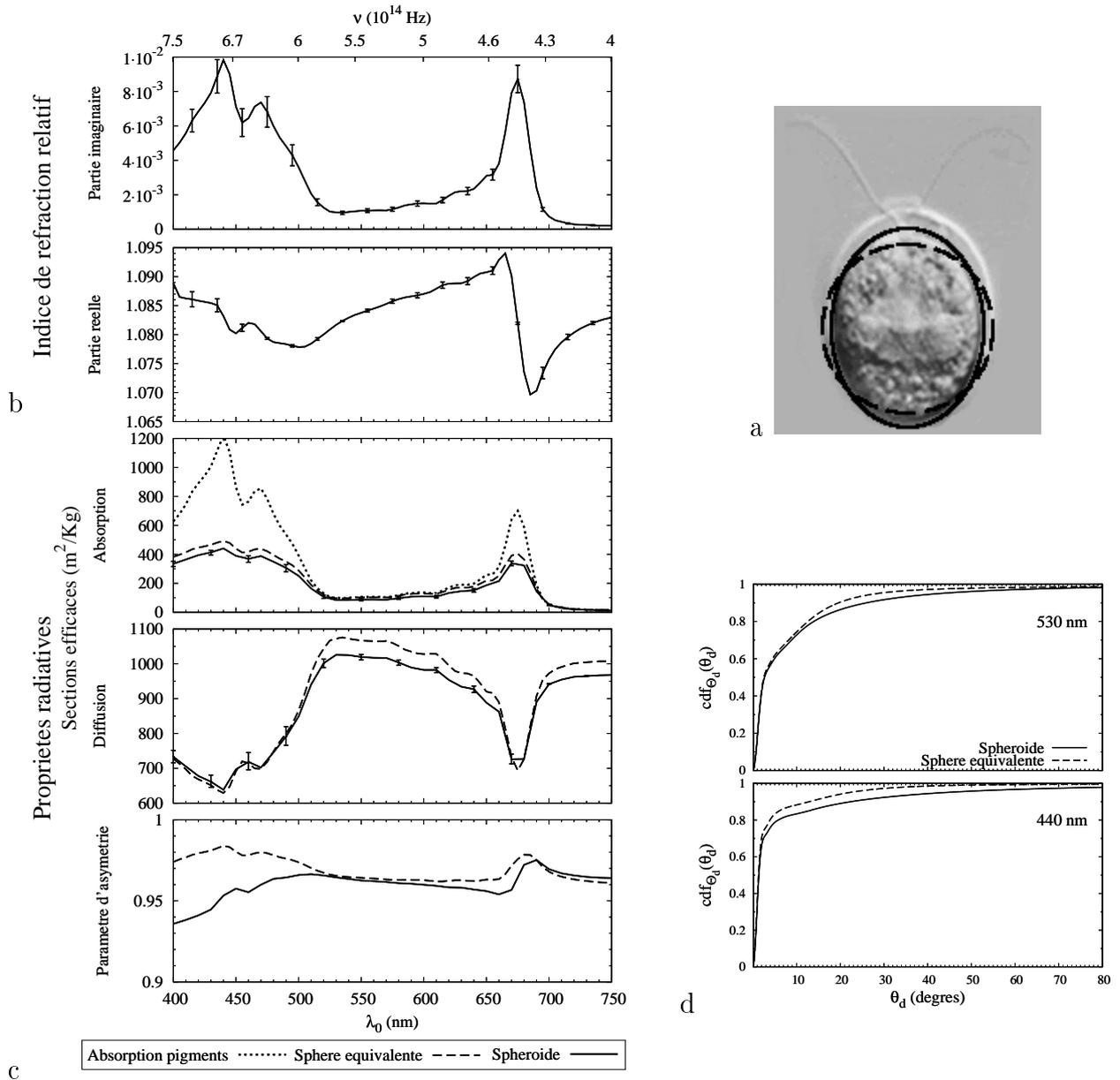


FIGURE 2.9: a : Micro-algue verte *Chlamydomonas reinhardtii*; forme sphéroïdale d'élongation $R = 0.837$ (trait continu); distribution de taille $\bar{r}_{eq} = 3.963 \mu m$ et $s = 1.18$ (voir Eq. 2.31) de la sphère équivalente en volume (pointillés). b : Indice de réfraction obtenu pour la composition pigmentaire suivante (fractions massiques sèches $w_{pig,i}$ en %) : Chlorophylle a 2.2 ± 0.2 , Chlorophylle b 0.9 ± 0.1 , Caroténoïdes photosynthétiques 0.1 ± 0.01 , Caroténoïdes de protection 0.6 ± 0.09 ; et le point d'ancrage $n_{820nm} = 1.44$ dérivé à partir des fractions volumiques (d'après [101]) : $f_{paroi} = 10\%$, $f_{nucleole} = 1\%$, $f_{noyau} = 7.5\%$, $f_{chloroplaste} = 40\%$, $f_{mitochondrie} = 3\%$, $f_{cytoplasme} = 38.5\%$ (voir Tab. 2.2); $x_w = 0.78$. c : Propriétés radiatives; $M_{eff} = 9.8615 \cdot 10^{-14} kg.particule^{-1}$. d : Cumulée de la fonction de phase en fonction de l'angle de diffusion pour $\lambda_w = 440$ et 530 nm.

2.4 Validation sur des mesures de transmittivités hémisphériques en diffusion multiple

Les transmittivités hémisphériques discutées dans cette section ont été mesurées avec un spectrofluorimètre (SAFAS FLX, Monaco) équipé d'une lampe à impulsion au xénon de haute énergie dont l'émission est guidée depuis un monochromateur jusqu'à l'échantillon grâce à une fibre optique reliée à un dispositif de collimation du faisceau incident. Ce banc optique est complété d'une sphère d'intégration haute précision de 15 cm de diamètre munie d'un revêtement en spectralon (Labsphere, USA). Le tout permet de mesurer des transmittivités dans la gamme $[2 \cdot 10^{-3}, 1]$ avec une précision de 0.05%. Les concentrations en biomasse (et leur incertitude) ont été mesurées en moyennant 10 mesures de masses sèches (étuve, 110°C, 24 heures).

2.4.1 Analyse des transmittivités hémisphériques mesurées en sphère d'intégration

La transmittivité théorique d'une lame contenant une suspension de micro-organismes photosynthétiques éclairée sur une face par un rayonnement incident collimaté normal est calculée pour les propriétés radiatives déterminées à la section précédente et une densité C_x homogène en micro-organismes (coefficients linéiques d'absorption et de diffusion $k_{a,\nu} = C_x \sigma_{a,\nu}$ et $k_{d,\nu} = C_x \sigma_{d,\nu}$). Dans le cas du modèle d'absorption par une solution de pigments, la transmittivité T_ν est simplement la loi d'extinction :

$$T_\nu = \exp(-E k_{a,\nu}) \quad (2.47)$$

où E est l'épaisseur de la lame. Pour les autres modèles prenant en compte la diffusion, T_ν est estimée par un algorithme de Monte Carlo (voir chapitre 5) : 10^7 réalisations, écart-type toujours inférieur à 0.1%.

2.4.2 Comparaison entre modèle et expérience

Les transmittivités expérimentales et théoriques obtenues pour les trois micro-organismes étudiés sont présentées aux figures 2.10, 2.11 et 2.12. L'erreur associée à l'incertitude sur les mesures de la composition pigmentaire $w_{pig,i}$ et de la densité en micro-organismes C_x est

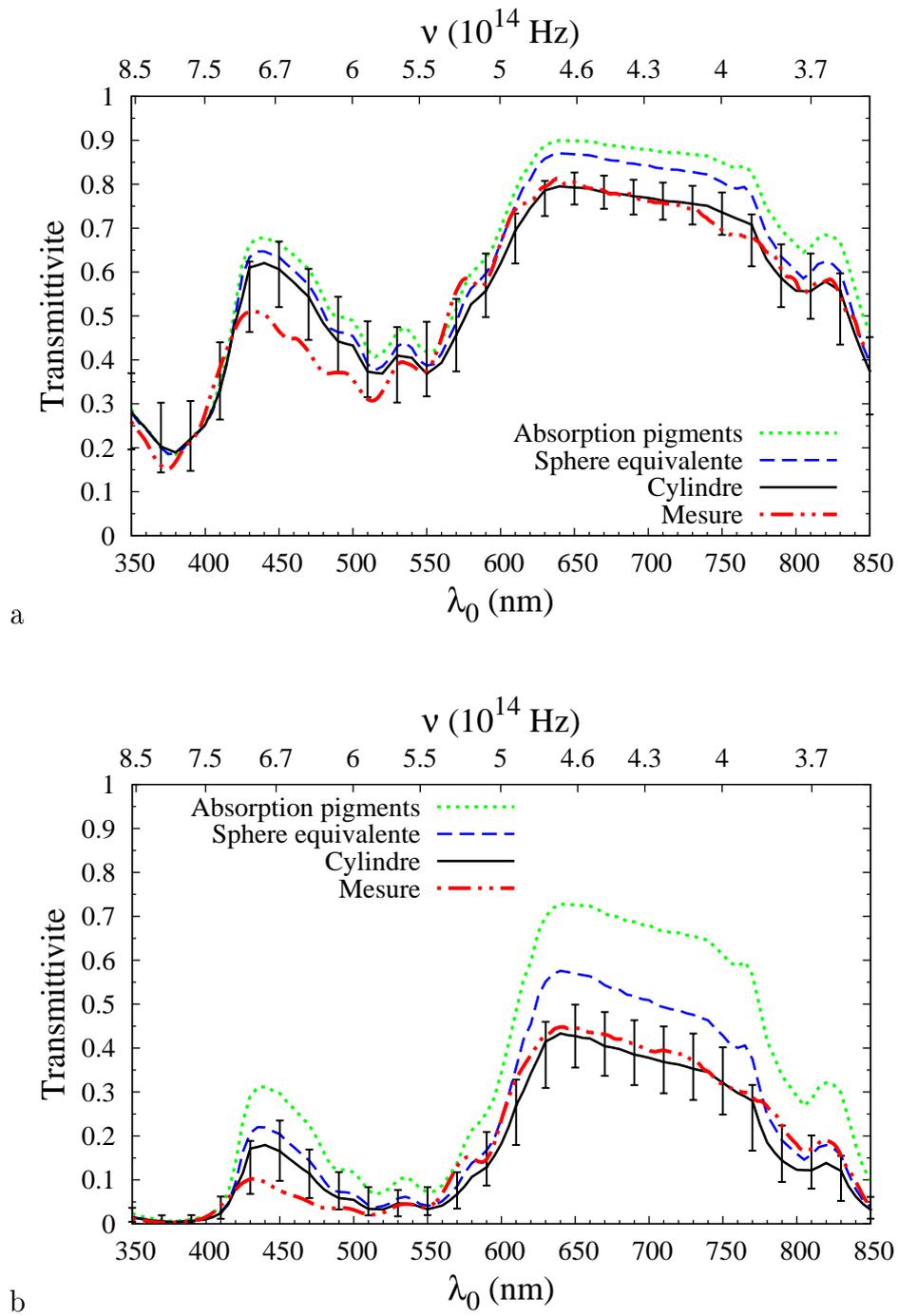


FIGURE 2.10: Spectre de la transmittivité hémisphérique de *Rhodospirillum rubrum* pour une cuve d'épaisseur 1cm. a : $C_x = 0.41 \text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$. b : $C_x = 1.23 \text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$.

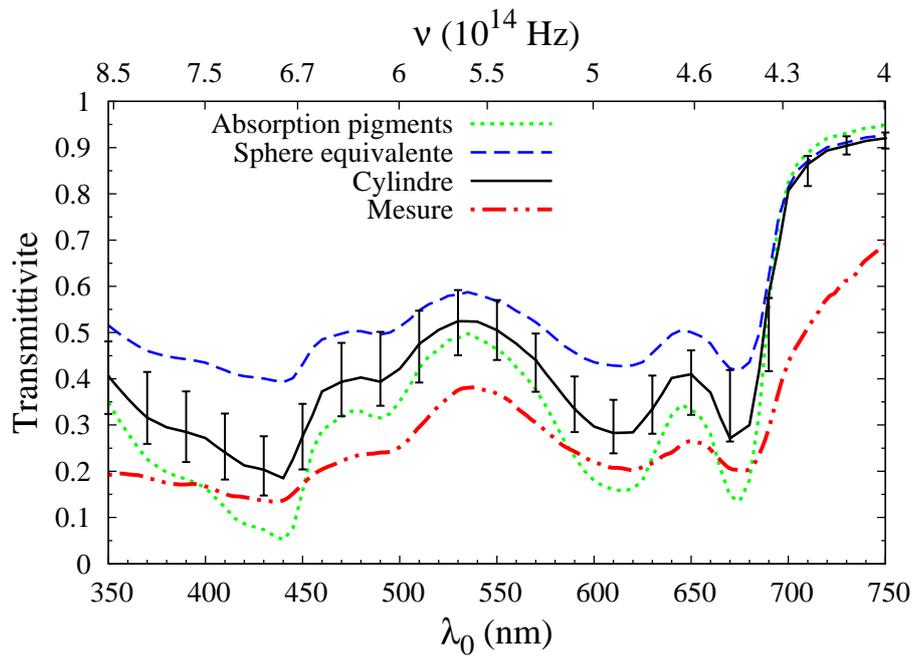


FIGURE 2.11: Spectre de la transmittivité hémisphérique de *Arthrospira platensis* pour une cuve d'épaisseur 1cm et $C_x = 0.6\text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$

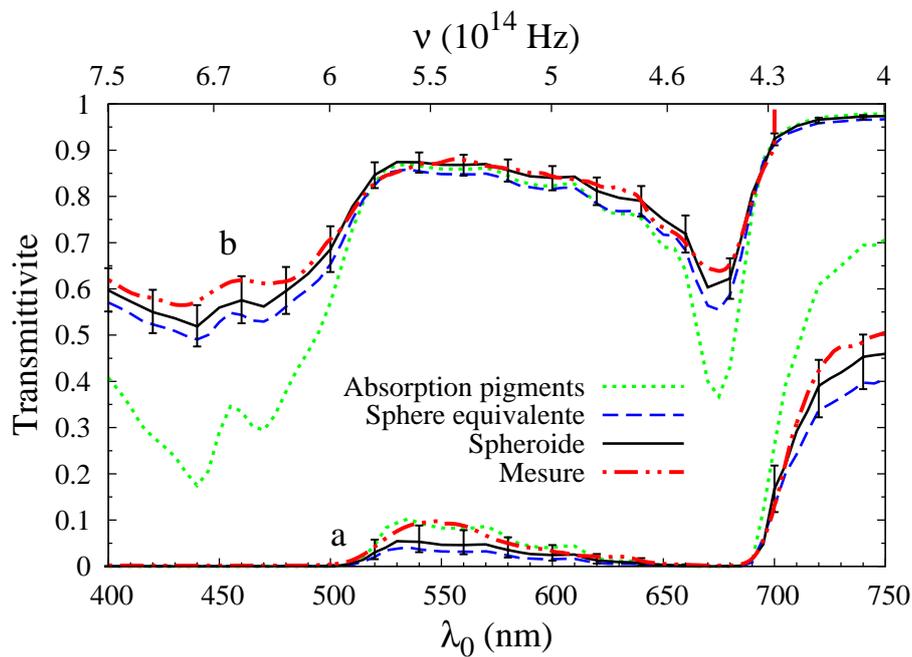


FIGURE 2.12: Spectre de la transmittivité hémisphérique de *Chlamydomonas reinhardtii* pour une cuve d'épaisseur 1cm . a : $C_x = 2.35\text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$. b : $C_x = 0.14\text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$

étudiée en reportant en tant que barre d'erreur les résultats obtenus pour les valeurs minimales de C_x et $w_{pig,i}$ (transmittivité maximum) et leurs valeurs maximales (transmittivité minimum). On remarque que l'erreur due à la mesure de C_x représente à elle seule à peu près 2/3 de l'erreur totale, indiquant que lors d'une analyse radiative d'un photobioréacteur l'incertitude sur la composition pigmentaire n'est plus prédominante et que les efforts expérimentaux doivent être orientés vers une amélioration de la mesure des densités en micro-organismes.

La comparaison des résultats expérimentaux et prédictifs souligne très clairement l'importance de la prise en compte des formes des micro-organismes. Pour *Chlamydomonas reinhardtii*, la sphère équivalente est proche de la forme du micro-organisme et il n'y a aucun doute quant à la pertinence de l'approximation géométrique à une sphère. Pour *Rhodospirillum rubrum*, les résultats obtenus avec l'approximation de la sphère équivalente sont étonnamment cohérents si on considère l'écart à la forme cylindrique d'élongation 1/5. La validation sur la configuration en diffusion multiple qui est ici étudiée ne permet pas d'affirmer ou d'infirmer l'existence de compensations au niveau du transfert radiatif entre différentes erreurs antagonistes sur l'évaluation des propriétés radiatives. Quoi qu'il en soit, les trois degrés de description proposés dans notre étude correspondent à trois niveaux de précision successifs pour l'étude de *Chlamydomonas reinhardtii* et *Rhodospirillum rubrum*. Dans le cas des micro-organismes très allongés (et donc très éloignés de la sphère) comme *Arthrospira platensis*, nous sommes dans une des deux situations mentionnées à la section 2.2.1 pour lesquelles l'approximation de la sphère équivalente (ou le critère d'équivalence) n'est pas valide. Dans le cas présent, nous obtenons de meilleurs résultats avec un modèle grossier ne prenant en compte aucune forme (la solution de pigments) plutôt qu'en introduisant une sphère qui ne représente absolument pas la forme de *Arthrospira platensis*. Mais même si la description de *Arthrospira platensis* en tant que cylindre droit constitue une amélioration en comparaison avec la sphère, notre modèle donne des résultats beaucoup moins bons que dans le cas de *Chlamydomonas reinhardtii* ou *Rhodospirillum rubrum*, dont la forme est plus fidèlement représentée. Ce résultat constitue une motivation pour une investigation ultérieure des effets de la forme hélicoïdale de *Arthrospira platensis*. *Arthrospira platensis* mise à part, ces validations montrent dans l'ensemble une très bonne précision des résultats obtenus grâce à la chaîne méthodologique présentée dans ce chapitre. On remarquera juste un léger décalage pour tous les modèles dans le comportement de *Rhodospirillum rubrum* aux alentours de 450 nm, ce qui est probablement dû, compte tenu du domaine de longueurs d'ondes, à une lacune de la base de données des pigments *in vivo*.

2.4.3 Analyse du point d'ancrage par inversion

Dans cette section, nous nous concentrons sur l'influence du point d'ancrage sur la modélisation des propriétés radiatives. Toute la complexité liée à l'hétérogénéité des micro-organismes photosynthétiques est contenue dans la valeur n_{ν_p} du point d'ancrage. Or cet ancrage a été déterminé de manière prédictive à partir de données pour lesquelles nous avons une confiance limitée. Ainsi, on peut se poser la question de savoir si les écarts du modèle constatés dans le cas de *Arthrospira platensis* sont bien dus à une mauvaise description de la forme du micro-organisme ou à une mauvaise estimation de n_{ν_p} . Pour cela nous proposons dans la suite une inversion simple consistant en la détermination du point d'ancrage expérimental $n_{\nu_p}^{exp}$ assurant que la transmittivité $T_{\nu_p}^{exp}$ mesurée à la fréquence ν_p soit égale à la transmittivité théorique $T_{\nu_p}(n_{\nu_p})$. Cette inversion est relativement aisée car, premièrement, un seul paramètre est inversé, et deuxièmement, elle est mise en œuvre pour une seule concentration C_x et une seule fréquence ν_p , ce qui implique que le critère d'équivalence est tout simplement l'égalité $T_{\nu_p}(n_{\nu_p}^{exp}) = T_{\nu_p}^{exp}$. De plus, les micro-organismes étant non-absorbants à la fréquence ν_p , l'inversion est indépendante de la modélisation de l'absorption par les pigments. En outre, nous considérons que l'indice de réfraction des micro-organismes est nécessairement contenu entre 1.33 et 1.7 (valeur déjà extrêmement élevée) et seule cette

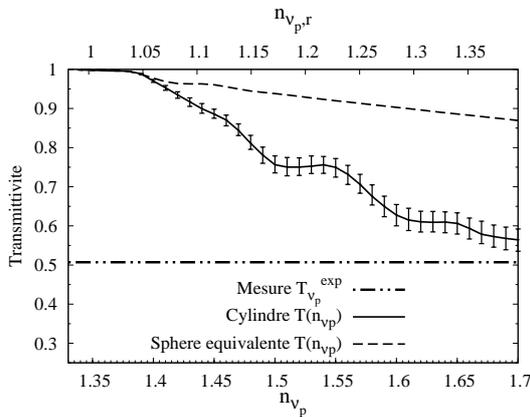


FIGURE 2.13: transmittivité hémisphérique de *Arthrospira platensis* à $\lambda = 825 \text{ nm}$, pour une cuve d'épaisseur 1 cm et $C_x = 1.1 \text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$. Il n'y a pas d'inversion dans la gamme $n_{\nu_p}^{exp} \in [1.33, 1.7]$.

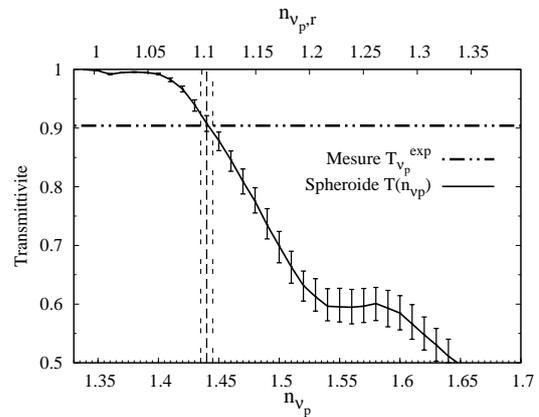


FIGURE 2.14: transmittivité hémisphérique de *Chlamydomonas reinhardtii* à $\lambda = 820 \text{ nm}$, pour une cuve d'épaisseur 1 cm et $C_x = 1 \text{ g.L}^{-1} \pm 10\%$. Le point d'ancrage $n_{\nu_p}^{exp}$ obtenu par inversion est $1.44 \pm 1\%$.

gamme est explorée. On remarque que pour les valeurs de n_{ν_p} proches de 1.7 l'approximation de la diffraction anormale est à sa limite de validité (voire en dehors). Cette inversion est réalisée pour *Arthrospira platensis* (Fig. 2.13) et *Chlamydomonas reinhardtii* (Fig. 2.14). Les mêmes incertitudes expérimentales que dans la section 2.4.2 sont ici reportées. Pour *Chlamydomonas reinhardtii*, l'inversion donne un point d'ancrage à 1.44 ± 0.01 qui est en parfait accord avec la valeur obtenue de manière prédictive. Pour *Arthrospira platensis*, il n'existe pas d'indice de réfraction n_{ν_p} permettant d'accorder les résultats expérimentaux et ceux du modèle, pour la gamme $n_{\nu_p} \in [1.33, 1.7]$: l'inversion n'est pas possible. La valeur du point d'ancrage utilisée à la section 2.4.2 n'est donc pas à incriminer en ce qui concerne les résultats peu satisfaisants que nous avons obtenus puisque, quelle que soit la valeur de n_{ν_p} (en restant dans une gamme "raisonnable"), le modèle ne permet pas de décrire les résultats expérimentaux. Le fait que l'inversion donne des résultats cohérents dans le cas de *Chlamydomonas reinhardtii*, dont la forme est bien décrite par notre modèle, et que cela ne soit pas le cas pour *Arthrospira platensis*, semble confirmer l'importance de l'utilisation d'un modèle de forme précis. De plus, nous observons que pour le modèle d'*Arthrospira platensis* en sphère équivalente, l'inversion est très lointaine, alors que pour le modèle de cylindre droit, bien qu'il n'y ait pas d'inversion possible, $T_{\nu_p}(n_{\nu_p}^{exp})$ s'approche significativement de la valeur expérimentale $T_{\nu_p}^{exp}$. Ceci constitue encore une motivation pour l'investigation de l'effet de la forme hélicoïdale de *Arthrospira platensis*, qui fera sans doute partie des travaux postérieurs à cette thèse.

2.5 Contributions et perspectives

Historique. La démarche présentée dans ce chapitre est le résultat d'un travail de modélisation et de caractérisation expérimentale mené depuis une dizaine d'années à l'Institut Pascal. A la lecture de la description des micro-organismes photosynthétiques donnée au paragraphe 2.1.3, il apparaît clairement que la détermination des propriétés radiatives, telle que définie dans ce chapitre, correspondait à l'origine (et correspond toujours) à un objectif scientifique très ambitieux, qui n'avait par ailleurs jamais été abordé en ces termes dans la littérature. Il a tout d'abord été nécessaire d'identifier au sein d'une littérature large, rassemblant de nombreux domaines d'application, un ensemble de techniques (plus ou moins validées) permettant, une fois mise en cohérence, de modéliser la complexité de l'interaction entre le rayonnement et les micro-organismes, avec comme contraintes les attentes de la communauté du génie des procédés photobioréactifs. A ce titre, la démarche proposée a l'intérêt de prendre comme paramètres d'entrée des grandeurs qui dépendent explicitement du type

d'étude réalisée à l'échelle du procédé, au travers des conditions de cultures (fréquence du rayonnement, champ de rayonnement, limitation ou carences en CO_2 ou en minéraux...). Ainsi, on peut concentrer pleinement l'analyse sur la dépendance des propriétés radiatives, et donc du transfert radiatif, aux différents modes de fonctionnement des photobioréacteurs. La détermination expérimentale de ces paramètres d'entrée a constitué à elle seule un effort de recherche significatif, et la base de données de pigments *in vivo* que nous mettons à disposition de l'ensemble de la communauté, et qui contient 14 pigments (pour la plupart validés dans cette étude) représentatifs des trois règnes (bactéries, cyanobactéries et eucaryotes), tente de refléter au mieux cet effort. Lorsque la présente thèse a commencé, la majeure partie de ces briques étaient posées et les mesures spectroscopiques en sphère d'intégration étaient disponibles pour une validation de la démarche (la mise au point du banc optique correspondant représente aussi une part importante du travail amont).

Notre contribution. En premier lieu, notre contribution a été d'inclure l'utilisation de l'approximation de Kramers-Krönig soustractive à la modélisation des propriétés optiques, sans quoi les variations spectrales de la partie réelle de l'indice de réfraction n'auraient pu être atteintes avec un niveau de précision satisfaisant. Cependant, la détermination de la valeur autour de laquelle ces variations ont lieu restait laborieuse : seules quelques références bibliographiques étaient identifiées, et nous envisagions d'utiliser les inversions présentées à la section 2.4.3 pour une détermination expérimentale du point d'ancrage. Suite à une recherche bibliographique approfondie, nous avons réussi à identifier un certain nombre de résultats, entre autres issus de la communauté de la tomographie, sur la valeur de l'indice de réfraction des cellules biologiques et nous avons été en mesure de mettre au point une petite base de données permettant la détermination prédictive du point d'ancrage à partir de la loi de mélange de Bruggeman. Ainsi, les paramètres d'entrée de notre modèle ont pu être réduits à un ensemble restreint et cohérent. En second lieu, nous avons proposé de combiner cette description des diffuseurs avec l'approximation de Schiff (plutôt que l'approximation de la diffraction anormale) afin d'obtenir les propriétés radiatives des micro-organismes. La plupart des approximations pertinentes pour l'étude des cellules vivantes avaient déjà été identifiées et validées, mais la question de la diffusion aux grands angles nous a amenés à clarifier les hypothèses physiques et mathématiques sous-jacentes, à explorer les pistes que Schiff avait dessinées dans le domaine de la mécanique quantique, et à reconstruire entièrement les codes associés, en adoptant une stratégie numérique rendant les temps de calculs compatibles avec notre étude. Cette investigation fait l'objet du chapitre suivant. Au terme de la mise en œuvre de la démarche dans sa globalité, en association avec la procédure de validation proposée, nous disposons désormais d'un outil plus adapté à notre étude que celui dont nous disposions

en début de thèse. Malgré les lacunes résiduelles, il reproduit plus fidèlement les résultats expérimentaux dans toutes les configurations où les paramètres d'entrée sont accessibles avec précision.

Compositions pigmentaires et propriétés spectrales des pigments. La précision des résultats obtenus est fortement dépendante de la pertinence des spectres utilisés pour l'absorption des pigments *in vivo*, ainsi que de la précision de la mesure des concentrations pigmentaires dans le micro-organisme photosynthétique étudié. La détermination expérimentale de la composition pigmentaire des micro-organismes contribue à environ 50% de l'incertitude finale. L'amélioration des protocoles correspondants apparaît donc comme une perspective intéressante pour notre étude. Pour ce qui est des spectres d'absorption *in vivo*, de nombreuses communautés ont étudié leur détermination et ont apporté une contribution significative dans le domaine. Nous mettons ici à disposition une base de données qui a été considérablement élargie en comparaison des bases préexistantes. Elle rassemble 14 pigments couvrant l'ensemble des espèces de micro-organismes photosynthétiques, incluant une révision du travail pionnier de Bidigare et al. [45] (notamment, les bactéries photosynthétiques et les cyanobactéries n'avaient jamais fait l'objet d'investigations de ce type auparavant). Cependant, cette base est loin d'être exhaustive et l'étude d'autres micro-organismes photosynthétiques nécessitera de l'élargir et éventuellement de l'améliorer. Cette tâche n'est pas triviale car, comme nous l'avons présentée, la caractérisation de chaque pigment nécessite une analyse théorique, un protocole expérimental complet et une démarche de validation.

Partie réelle de l'indice de réfraction. Notre confiance en la méthode employée pour la détermination de la partie réelle de l'indice de réfraction a été renforcée par la validation appuyée sur les spectres de transmittivité ainsi que par les résultats de mesure du point d'ancrage par inversion (notamment pour *Chlamydomonas reinhardtii*). Même dans le cas où les fractions volumiques des structures internes sont grossièrement évaluées à partir de clichés de microscopie électronique (par exemple pour *Rhodospirillum rubrum*), les résultats obtenus sont très satisfaisants au niveau de précision auquel nous nous plaçons pour l'analyse du procédé. Cependant, il faut être prudent et bien souligner que les valeurs utilisées à l'heure actuelle pour l'indice de réfraction des structures internes et leurs fractions volumiques reposent sur une littérature restreinte dont les données très disparates sont à ce jour mal réconciliées. L'élaboration de démarches expérimentales solides pour la détermination de ces paramètres semble donc aujourd'hui nécessaire.

Forme des micro-organismes. Bien que les trois grandes classes de micro-organismes photosynthétiques aient été abordées (bactéries, cyanobactéries, micro-algues), le travail de mise en œuvre présenté dans ce chapitre s’est concentré intentionnellement sur des micro-organismes correspondant à des formes très proches du sphéroïde et du cylindre, formes pour lesquelles les solutions théoriques sont disponibles dans la littérature. De manière générale, les résultats obtenus montrent un meilleur accord avec l’expérience lorsque la forme des micro-organismes est modélisée avec précision, ce qui justifie l’effort d’une description plus fine que l’approximation de la sphère équivalente. Mais les résultats obtenus pour *Arthrospira platensis* semblent indiquer que le degré de description des formes adopté dans ce chapitre (cylindres et sphéroïdes) n’est pas suffisant. Un enjeu important des développements futurs de ce travail est donc d’élargir la gamme des formes traitées à un ensemble plus représentatif de la diversité des morphologies microbiennes : particules de Tchebytchev [103, 84], super-sphéroïdes [104], cylindres longs enroulés en hélice [105] (forme de *Arthrospira platensis*), etc. Les discussions du chapitre suivant sont largement motivées par la nécessité de disposer à terme de la solution du problème de la diffusion par une particule de faible contraste d’indice pour des formes quelconques, et d’être en mesure de résoudre numériquement cette solution pour des temps de calcul acceptables. Nous remarquons à ce titre que les algorithmes de Monte Carlo pour la résolution de l’approximation de Schiff qui sont présentés à la section 3.4 sont tout à fait compatibles avec le traitement de formes quelconques. De plus, la mise en œuvre de ces algorithmes au sein de l’environnement de développement EDStar [21] (voir Chap. 5) permettra à terme une gestion aisée des aspects géométriques liés au traitement de formes complexes⁹.

Méthode pour la validation des résultats. Enfin, il convient de remarquer que les validations en configuration de diffusion multiple qui sont utilisées dans ce chapitre sont pertinentes, notamment de part leur accessibilité, mais sont limitées. Différentes erreurs antagonistes au niveau de la détermination des propriétés radiatives peuvent se compenser et aboutir à un spectre de transmittivité compatible avec l’observation expérimentale, en dépit des erreurs commises. Cette question de la validation des approximations utilisées est problématique car aucune solution de référence n’est disponible, ne serait-ce que pour la

9. Les solutions de l’approximation de Schiff présentées à la section 2.2.1 dépendent principalement de la géométrie au travers des longueurs de traversée de la particule. Dans le cas du cylindre, du sphéroïde et des formes quadratiques en général, ces longueurs sont analytiques. Dès que l’on considère des formes plus complexes qui font intervenir des puissances non-entières ou supérieures à 2 dans leur équation paramétrique (super-quadriques), ou encore si l’on considère une forme quelconque définie par un maillage (triangulation), les longueurs de traversée doivent être évaluées numériquement. La librairie Mcm3D de l’environnement de développement EDStar a justement pour vocation (entre autres) de faciliter l’évaluation de ces calculs géométriques.

validation directe de l'approximation de Schiff pour les formes étudiées dans notre gamme de paramètres de taille. A ce titre, l'étude qui vient d'être présentée bénéficierait d'une comparaison avec des résultats obtenus par d'autres méthodes expérimentales basées sur la mesure directe des propriétés radiatives, par exemple dans le cadre d'expériences en diffusion simple sur des micro-organismes [26, 27, 12], ou par des expériences d'analogie avec le domaine des micro-ondes [106].

Chapitre 3

Diffusion de la lumière par des particules de faible contraste d'indice

Résumé :

Ce chapitre reprend les dérivations classiques du problème d'électromagnétisme de la diffusion par une particule, dans un formalisme intégral. Nous nous attachons aux simplifications de ce problème dans le cas des particules de faible contraste d'indice, ce qui correspond à une caractéristique importante des micro-organismes photosynthétiques. L'objectif de ce chapitre est d'obtenir une expression des propriétés radiatives des micro-organismes qui inclut une description angulaire complète de la fonction de phase et de comprendre les images physiques sous-jacentes à cette solution (et aux approximations auxquelles elle correspond). L'expression mathématique recherchée doit être compatible avec les spécificités de notre étude. A ce titre, nous dérivons une expression générale qui est valable pour n'importe quelle forme de micro-organisme et dont la résolution numérique correspond à des temps de calculs compatibles avec la nécessité de construire une base de données spectrale impliquant un grand nombre de calculs. Nous proposons de résoudre cette expression par la méthode de Monte Carlo, en utilisant la démarche du chapitre 6 afin d'être en mesure d'intégrer, sur les distributions de tailles et d'orientations, les résultats de l'approximation de Schiff qui s'expriment comme le module au carré d'intégrales complexes. Le temps de calcul est alors quasiment le même pour la détermination des propriétés radiatives du milieu (qui inclut la double intégration taille/orientation), que pour celles d'une seule particule (d'orientation et de taille fixées). La lecture de ce chapitre n'est pas nécessaire à la suite de ce mémoire : il suffit de retenir que nous démontrons ici les résultats d'électromagnétisme du chapitre 2 (en ce qui concerne l'approximation de Schiff), et que nous présentons la méthode de mise en œuvre numérique utilisée pour la production de la banque de données des propriétés

radiatives des micro-organismes.

3.1 Formulation intégrale du problème de la diffusion

La solution de l'équation 2.17 ($(\nabla^2 + k_e^2)E(\mathbf{r}) = -k_e^2 (m_r(\mathbf{r})^2 - 1) E(\mathbf{r})$) peut être explicitée de différentes manières. Dans ce qui suit, nous allons nous appuyer sur un formalisme intégral très courant (notamment dans le cadre de la méthode T-Matrice) qui est en cohérence avec la méthode de résolution numérique de Monte Carlo. Ce formalisme est décrit en détail dans divers ouvrages, par exemple [36, 107] et nous en rappelons ici certains éléments en se basant sur l'utilisation de la fonction de Green de l'espace libre. La fonction de Green scalaire $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0)$

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) = \frac{\exp(-ik_e \|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\|)}{4\pi \|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\|} \quad (3.1)$$

représente le champ rayonné en \mathbf{r} par une source ponctuelle située en \mathbf{r}_0 , et est solution de l'équation

$$(\nabla^2 + k_e^2)G(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \quad (3.2)$$

où ∇^2 est le Laplacien portant sur la variable \mathbf{r} , et $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$ est la distribution de Dirac centrée en \mathbf{r}_0 . Nous utilisons dans la suite les définitions données à la section 2.1.2 du chapitre précédent. Le champ diffusé est solution de l'équation

$$(\nabla^2 + k_e^2)E_d(\mathbf{r}) = -k_e^2 (m_r(\mathbf{r})^2 - 1) E(\mathbf{r}) \quad (3.3)$$

avec $m_r(\mathbf{r})$ défini à l'équation 2.16. Il peut s'écrire comme

$$E_d(\mathbf{r}) = -k_e^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) G(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) E(\mathbf{r}_0) \quad (3.4)$$

où \mathcal{V}_{part} est le domaine de la particule. Une telle écriture met en exergue la linéarité des équations de Maxwell, qui implique un principe de superposition des champs rayonnés par différentes sources ponctuelles (ce qui peut être rapproché du *principe de Huygens*). Chaque élément de volume du diffuseur se comporte comme un dipôle rayonnant, et la superposition en \mathbf{r} des champs rayonnés par ces sources constitue le champ $E_d(\mathbf{r})$. Cette expression est similaire à l'expression classique du champ rayonné par la polarisation induite $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ dans le volume d'un matériau :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_i(\mathbf{r}) + \mu_0 \omega^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) \mathbf{P}(\mathbf{r}_0) \quad (3.5)$$

où $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0)$ est le tenseur de green (le formalisme est vectoriel) et où la polarisation induite

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 (m_r(\mathbf{r})^2 - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (3.6)$$

dépend du champ total dans la particule, avec ϵ_0 la permittivité du vide et μ_0 la perméabilité du vide. Dans le cadre de ces images, les puissances dissipées P_{ext} et absorbées P_a par le matériau résultent de l'interaction entre la polarisation induite et les champs, ce qui se traduit par les écritures intégrales suivantes :

$$P_{ext} = -\frac{\omega}{2} \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \operatorname{Im} \{ \mathbf{P}(\mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{E}_i^*(\mathbf{r}_0) \} \quad (3.7)$$

$$P_a = -\frac{\omega}{2} \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \operatorname{Im} \{ \mathbf{P}(\mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{r}_0) \} \quad (3.8)$$

où * est le complexe conjugué. Si on repasse dans notre formalisme scalaire, ces expressions deviennent ¹

$$P_{ext} = -k_e \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \operatorname{Im} \{ (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) E(\mathbf{r}_0) E_i^*(\mathbf{r}_0) \} \quad (3.9)$$

$$P_a = -k_e \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \operatorname{Im} \{ (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) E(\mathbf{r}_0) E^*(\mathbf{r}_0) \} \quad (3.10)$$

et les sections efficaces d'extinction et d'absorption s'écrivent :

$$\sigma_{ext} = -k_e \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \operatorname{Im} \left\{ (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) \frac{E(\mathbf{r}_0) E_i^*(\mathbf{r}_0)}{E_0^2} \right\} \quad (3.11)$$

$$\sigma_a = -k_e \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \operatorname{Im} \left\{ (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) \frac{E(\mathbf{r}_0) E^*(\mathbf{r}_0)}{E_0^2} \right\} \quad (3.12)$$

L'amplitude de diffusion s'obtient en prenant l'expression intégrale Eq. 3.4 de $E_d(\mathbf{r})$ en champ lointain. Dans ces conditions, on a

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0| \approx r - \mathbf{e}_d \cdot \mathbf{r}_0 \quad (3.13)$$

avec $\mathbf{e}_d = \frac{\mathbf{r}}{r}$, et

$$\frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \approx \frac{1}{r} \quad (3.14)$$

1. Dans le formalisme des équations 3.7 et 3.8, la puissance par unité de surface véhiculée par l'onde plane incidente est $I_i = \frac{\epsilon_0 c}{2} |E_0|^2$, alors que dans notre formalisme $I_i = E_0^2$.

Ce qui simplifie l'expression de la fonction de Green et donne :

$$E_d(\mathbf{r}) = \frac{\exp(-ik_e r)}{r} \frac{-k_e^2}{4\pi} \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) E(\mathbf{r}_0) \quad (3.15)$$

où $\mathbf{k}_d = k_e \mathbf{e}_d$ est le vecteur d'onde associé à la direction de diffusion \mathbf{e}_d . D'après la définition de l'amplitude de diffusion S donnée à l'équation 2.4 :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{4\pi} \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 (m_r^2(\mathbf{r}_0) - 1) \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) \frac{E(\mathbf{r}_0)}{E_0} \quad (3.16)$$

La formulation intégrale Eq. 3.4 et les relations que nous venons d'en déduire, décrivent de manière exacte le processus de diffusion. Cependant, ces relations sont en général très complexes à résoudre car elles font intervenir une intégration, sur le volume de la particule, du champ total E qui lui-même résulte des interactions entre le champ incident et le champ rayonné par le diffuseur. A part dans certains cas particuliers, où il existe une solution explicite exacte (par exemple pour les particules sphériques homogènes), il est nécessaire d'avoir recours à des résolutions approchées.

Dans la suite de ce chapitre, nous considérons, en accord avec l'hypothèse d'un milieu homogène équivalent utilisée au chapitre précédent, que l'indice de réfraction des particules est uniforme : $m_r(\mathbf{r}) \equiv m_r, \mathbf{r} \in \mathcal{V}_{part}$.

Développement en série de Born. Le développement en série de Born est très utilisé tant en électromagnétique qu'en mécanique quantique [107]. Il permet de formaliser les interactions successives entre le champ incident qui induit une polarisation, qui rayonne et modifie les champs, qui à leur tour induisent une polarisation, et ainsi de suite. Cette mise en abyme est obtenue en exprimant le champ total $E(\mathbf{r}_0)$ dans la particule comme sa formulation intégrale, faisant intervenir le champ E intégré sur une nouvelle position \mathbf{r}_1 , puis $E(\mathbf{r}_1)$ est à son tour exprimée comme une intégrale de $E(\mathbf{r}_2)$, et ainsi de suite, donnant une série infinie. Partons de l'expression de S Eq. 3.16, où l'amplitude E_0 de l'onde incidente est prise égale à 1 par simplicité :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) E(\mathbf{r}_0) \quad (3.17)$$

$E(\mathbf{r}_0)$ est remplacé par sa formulation intégrale :

$$E(\mathbf{r}_0) = \mathbf{E}_i(\mathbf{r}_0) - k_e^2 (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E(\mathbf{r}_1) \quad (3.18)$$

$E(\mathbf{r}_1)$ est remplacé par sa formulation intégrale :

$$E(\mathbf{r}_1) = \mathbf{E}_i(\mathbf{r}_1) - k_e^2 (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) E(\mathbf{r}_2) \quad (3.19)$$

et ainsi de suite. En substituant ces expressions successives les unes dans les autres, on obtient l'expression de $E(\mathbf{r}_0)$ en série de Born :

$$\begin{aligned} E(\mathbf{r}_0) = & E_i(\mathbf{r}_0) - k_e^2 (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \\ & + [k_e^2 (m_r^2 - 1)]^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) E_i(\mathbf{r}_2) \\ & - [k_e^2 (m_r^2 - 1)]^3 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_3 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) G(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3) E_i(\mathbf{r}_3) \\ & + \dots \end{aligned} \quad (3.20)$$

qui, une fois injectée dans l'équation 3.17, donne l'expression de S en série de Born :

$$\begin{aligned} S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = & \frac{i}{4\pi} k_e^2 (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) E_i(\mathbf{r}_0) \\ & - \frac{i}{4\pi} [k_e^2 (m_r^2 - 1)]^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \\ & + \frac{i}{4\pi} [k_e^2 (m_r^2 - 1)]^3 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) E_i(\mathbf{r}_2) \\ & - \dots \end{aligned} \quad (3.21)$$

L'intérêt principal de cette formulation est que tout s'écrit maintenant en fonction du champ incident E_i . On peut donner une interprétation physique de cette équation qui souligne très clairement le développement en ordres successifs de perturbations induites par le diffuseur. Le premier terme de l'expression 3.21 donne le champ diffusé comme résultant de la super-

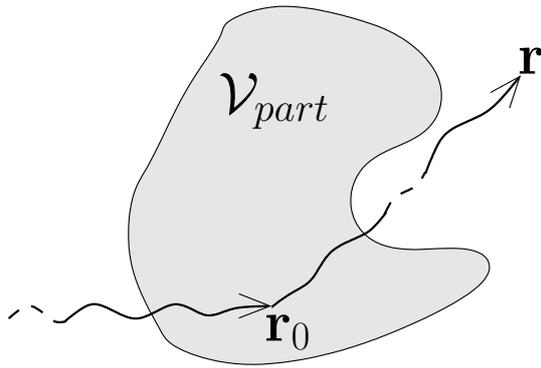


FIGURE 3.1: Schématisation de l'approximation de Born : on ne tient compte que des ondes diffusées par une seule interaction avec le diffuseur.

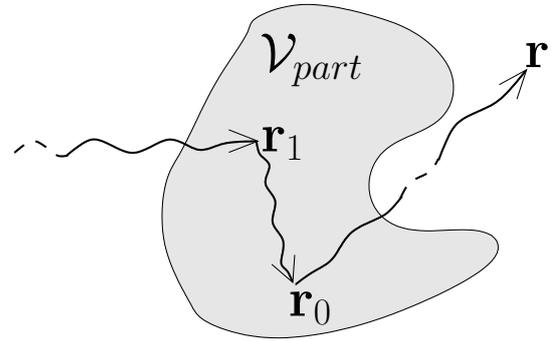


FIGURE 3.2: Schématisation du deuxième ordre du développement de Born : on ne tient compte que des ondes interagissant deux fois avec le diffuseur.

position des ondes provenant des *sources secondaires* induites dans le diffuseur par l'onde incidente seule. Cette interprétation est schématisée sur la figure 3.1. Les termes suivants traduisent le fait que les sources secondaires sont excitées non seulement par l'onde incidente mais également par les ondes diffusées provenant d'autres sources secondaires. Ainsi, le second terme tient compte des ondes deux fois diffusées, le troisième tient compte des ondes trois fois diffusées, etc. Le second terme est représenté de manière schématique à la figure 3.2.

Encart 1 INDÉPENDANCE DES INTERACTIONS ET FORMALISME COMPLEXE

L'interprétation physique qui vient d'être donnée pour les termes d'ordres supérieurs du développement de Born est sensiblement différente des processus de diffusion multiple qui seront abordés au chapitre 4. Il s'agit ici de décrire la diffusion par une particule unique, alors que la diffusion multiple fait intervenir les interactions successives avec plusieurs particules différentes. Pour cette raison, nous sommes ici dans un formalisme complexe. Les chemins de diffusion qui viennent d'être décrits sont tous dépendants les uns des autres et il convient donc de superposer en \mathbf{r} leurs contributions à l'amplitude et à la phase. De manière similaire, il est important de souligner que dans un processus de diffusion indépendante, les prises de moyenne sur les orientations et les distributions de tailles des particules correspondent à des moyennes sur les probabilités d'interaction avec différentes particules isolées : ces interactions avec des particules de tailles et d'orientations diverses sont indépendantes.

Ces prises de moyennes concernent donc l'intensité de l'onde diffusée, c'est-à-dire le module au carré de l'onde. Par contre, dans un processus de diffusion dépendante, les prises de moyennes sur les agencements possibles d'un amas de particules concernent l'onde complexe.

Dans les sections suivantes, nous nous intéressons aux simplifications du problème de la diffusion dans la limite asymptotique $m_r \rightarrow 1$, qui est une limite pertinente pour l'étude des cellules vivantes. Dans ce cadre, nous développerons deux limites supplémentaires : la limite des petites particules devant la longueur d'onde, et celle des grandes particules devant la longueur d'onde. Les approximations asymptotiques correspondantes sont largement décrites dans la littérature [33, 34, 35].

3.2 Particules petites devant la longueur d'onde

Dans notre contexte, la limite des petites particules de faible contraste d'indice correspond à l'*approximation de Rayleigh-Gans* (parfois aussi appelée approximation de Rayleigh-Gans-Debye) [33, 34]. Cette approximation donne une expression explicite simple du champ diffusé, ce qui explique son utilisation fréquente, notamment en biologie [51, 50, 49, 39], même en dehors de sa gamme de validité. Seul un nombre extrêmement restreint de micro-organismes photosynthétiques entre dans le cadre de validité de cette approximation ; mais au-delà d'une utilisation potentielle pour l'étude des photobioréacteurs (bien que très intéressante pour les bactéries), nous allons nous servir de l'approximation de Rayleigh-Gans afin d'introduire un certain nombre d'images physiques et d'établir les liens entre les descriptions de la mécanique quantique et de l'électromagnétisme. Ces liens seront nécessaires à l'utilisation de l'approximation de Schiff dans l'étude des micro-organismes photosynthétiques. Pour cela, nous allons suivre une démarche particulière qui passe par l'*approximation de Born* en mécanique quantique.

3.2.1 Approximation de Born en mécanique quantique

Cette approximation est utilisée dans le cas des diffuseurs "faiblement diffusants", c'est-à-dire dans la limite où la perturbation de l'onde incidente due à la traversée de la particule est négligeable :

$$(k_e a)^2 |m_r^2 - 1| \ll 1$$

où a est la dimension caractéristique de la particule (si la particule est sphérique, a est son rayon), et $k_e a = \frac{2\pi a}{\lambda_e} = x$ est son paramètre de taille. Ainsi, les termes successifs du développement de Born Eq. 3.21 deviennent rapidement négligeables et l'approximation de Born consiste à ne considérer que le premier ordre du développement (voir Fig. 3.1) :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \approx \frac{i}{4\pi} k_e^2 (m_r^2 - 1) \int_{V_{part}} d\mathbf{r}' \exp(i \mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}') E_i(\mathbf{r}') \quad (3.22)$$

où on prend toujours $E_0 = 1$ pour simplifier les expressions. Physiquement, cela revient à supposer que l'onde incidente traverse la particule quasiment sans être perturbée. Le champ à l'intérieur de la particule est très proche du champ incident.

En fixant le champ total dans le volume de la particule à la valeur du champ incident, les équations 3.11 et 3.12 pour l'expression des sections efficaces deviennent explicites et donnent² :

$$\sigma_{ext} = \sigma_a = 2 k_e n_r \kappa_r V_{part} \quad (3.23)$$

où n_r est la partie réelle de l'indice de réfraction relatif, κ_r sa partie imaginaire, et V_{part} est le volume de la particule. Ces résultats correspondent aux propriétés d'une particule purement absorbante ($\sigma_d = 0$), ce qui est cohérent avec l'hypothèse d'un champ interne égal au champ incident. En effet, cette hypothèse implique que la particule ne perturbe pas du tout l'onde incidente, et donc ne la diffuse pas. Pourtant, l'approximation de Born ne fait pas à proprement parler l'hypothèse d'un champ interne égal au champ incident. Il s'agit uniquement de négliger les termes d'ordre supérieur à 1 dans le développement en série de Born. On obtient ainsi une amplitude de diffusion S non nulle qui traduit l'existence du phénomène de diffusion. Cette incohérence souligne clairement que l'énergie n'est plus conservée dès lors que l'on utilise une hypothèse sur la forme du champ interne (puisque le champ n'est plus exact). Nous retrouverons cette situation dans le cadre de l'approximation de Schiff, qui consiste aussi à faire une hypothèse sur la forme du champ interne. Dans le cas présent, le champ interne n'est exact que dans la limite où $\sigma_{ext} = \sigma_a = \sigma_d = 0$. Le fait même de fixer a priori le champ interne viole la conservation de l'énergie mais compte tenu de la difficulté de la résolution exacte du problème de la diffusion, ce genre d'approximation est très utile. Dans une telle situation, on calcule en général deux des sections efficaces (ici σ_a suivant Eq. 3.23 et σ_d à partir de S , voir Eq. 2.7) et la conservation est assurée en fixant la troisième section efficace (ici $\sigma_{ext} = \sigma_a + \sigma_d$). Les résultats ainsi obtenus sont présentés à la figure 3.4.

2. On remarque que le théorème optique appliqué à l'équation 3.22 donne le même résultat pour la section efficace d'extinction.

Nous nous intéressons maintenant à la limite de validité de cette approximation lorsque la taille des particules augmente (ce qui nous intéresse tout particulièrement dans le cadre de notre étude). Cette question va nous amener à établir le lien entre l'approximation de Born et l'approximation de Rayleigh-Gans. Nous avons interprété le développement de Born comme une somme de perturbations successives de l'onde incidente par la particule. Lorsque l'on considère un indice de réfraction complexe, les perturbations sont de deux natures : l'absorption et le déphasage de l'onde par le milieu constituant la particule. Ces deux effets sont respectivement liés à la partie imaginaire κ_r et la partie réelle n_r de l'indice de réfraction. Le développement en ordre de $(m_r^2 - 1)$ que nous avons utilisé ne permet pas au premier ordre de séparer la contribution de l'absorption et du déphasage. Une illustration en est l'expression de la section efficace d'absorption Eq. 3.23 qui est proportionnelle à n_r . Ce couplage des effets ne pose aucun problème dans le cadre strict de validité de l'approximation de Born. Cependant, il faut noter que

$$\begin{aligned} (m_r^2 - 1) &= 2(m_r - 1) + (m_r - 1)^2 \\ (m_r^2 - 1)^2 &= 4(m_r - 1)^2 + 4(m_r - 1)^3 + (m_r - 1)^4 \end{aligned} \quad (3.24)$$

où $(m_r - 1) = n_r - 1 - i\kappa_r$ fait intervenir la somme des effets de déphasage et d'absorption de manière indépendante, alors que $(m_r - 1)^2$ fait intervenir des termes croisés liés au couplage des effets. On constate alors que la troncature du développement de Born à l'ordre $(m_r^2 - 1)$ consiste à prendre en compte certains effets de couplage d'ordre $(m_r - 1)^2$, mais à négliger d'autres effets de même nature qui apparaissent dans le terme suivant du développement (le terme en $(m_r^2 - 1)^2$). Pour être plus précis, écrivons le terme $E(\mathbf{r}_0)(m_r^2 - 1)$ qui intervient dans l'expression générale Eq. 3.17 de l'amplitude de diffusion comme son développement en puissances de $(m_r - 1)$. Pour cela, on remplace dans le développement de Born Eq. 3.20 les puissances de $(m_r^2 - 1)$ par leur expression en puissances de $(m_r - 1)$ Eq. 3.24. On obtient :

$$E(\mathbf{r}_0)(m_r^2 - 1) = 2(m_r - 1)E_i(\mathbf{r}_0) + (m_r - 1)^2 [E_i(\mathbf{r}_0) - 4k_e^2 I_1] + (m_r - 1)^3 \dots \quad (3.25)$$

où

$$I_1 = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1)$$

L'approximation de Born prend en compte le terme $(m_r - 1)^2 E_i(\mathbf{r}_0)$ mais néglige le terme $-(m_r - 1)^2 4k_e^2 I_1$. Or, $|I_j| \lesssim a^2$ et lorsque la taille des particules augmente (indépendamment de leur indice de réfraction), rien n'assure que $4k_e^2 I_1$ soit négligeable devant $E_i(\mathbf{r}_0)$. Si ces deux termes se compensent, le fait de n'en considérer qu'un peut aboutir à une dégradation rapide et significative de l'approximation, comme cela est observé à la figure 3.4. Dans

l'étude de la diffusion de la lumière il est courant de ne considérer que les termes linéaires en absorption et en déphasage (c'est-à-dire les termes d'ordre $(m_r - 1)$), ce qui correspond à l'approximation de Rayleigh-Gans.

3.2.2 Approximation de Rayleigh-Gans

L'approximation de Rayleigh-Gans consiste à prendre $E(\mathbf{r}_0) (m_r^2 - 1) \approx 2 (m_r - 1) E_i(\mathbf{r}_0)$ dans le développement Eq. 3.25, ce qui est valide dans le cas où les termes d'ordres supérieurs sont négligeables, c'est-à-dire lorsque

- (a) l'indice de réfraction relatif est proche de 1 (de sorte que $(m_r - 1)^2 E_i(\mathbf{r}_0)$ soit négligeable)

$$|m_r - 1| \ll 1$$

- (b) le "déphasage" de l'onde incidente dû à la traversée de la particule est petit (de sorte que $(m_r - 1)^2 4k_e^2 I_1$ soit négligeable)

$$k_e a |m_r - 1| \ll 1$$

Ceci est moins restrictif que l'approximation de Born dans le sens où $k_e a |m_r - 1|$ est plus petit que $(k_e a)^2 |m_r^2 - 1|$ pour les paramètres de taille supérieurs à un. En contre-partie, il faut rajouter la condition de validité supplémentaire (a) afin de pouvoir négliger le terme $(m_r - 1)^2 E(\mathbf{r}_0)$ dans le développement Eq. 3.25. Les images physiques associées à cette approximation restent identiques à celles de l'approximation de Born : on suppose que l'onde incidente traverse la particule quasiment sans être perturbée, de sorte que le champ à l'intérieur de la particule est très proche du champ incident. L'hypothèse (b) ne correspond pas directement à la limite des petits paramètres de taille $k_e a \ll 1$ comme suggéré par le titre de cette section. Cependant, pour un indice réel $n_r = 1.2$ (ordre de grandeur pour les micro-organismes photosynthétiques), cette hypothèse implique que le paramètre de taille soit beaucoup plus petit que 5, ce que nous pouvons considérer comme une petite particule en comparaison avec la gamme de paramètres de taille rencontrée dans notre étude.

Dans le cadre de l'approximation de Rayleigh-Gans, l'amplitude de diffusion est :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \approx \frac{i}{2\pi} k_e^2 (m_r - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) E_i(\mathbf{r}_0) \quad (3.26)$$

où $\mathbf{k}_d = k_e \mathbf{e}_d$ est le vecteur d'onde associé à la direction de diffusion \mathbf{e}_d et l'amplitude E_0 a été prise égale à 1. Comme dans le cas de l'approximation de Born, la section efficace

d'extinction donnée par le théorème optique est en fait la section efficace d'absorption :

$$\sigma_a = 2 k_e \kappa_r V_{part} \quad (3.27)$$

où nous avons bien (en comparaison avec l'approximation de Born Eq. 3.23) un découplage entre les effets dus à κ_r et n_r . En injectant $E_i(\mathbf{r}_0) = \exp(-i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_0)$ dans l'équation 3.26 il vient :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i}{2\pi} k_e^2 (m_r - 1) \int_{V_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \quad (3.28)$$

où $\mathbf{q} = \mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i$. Nous avons considéré jusqu'à présent des ondes scalaires, ce qui est une bonne approximation dans les situations que nous étudions. Cependant, lorsque l'angle de diffusion θ_d entre \mathbf{e}_d et \mathbf{e}_i augmente, certains effets liés à la nature vectorielle des champs électromagnétiques ne peuvent plus être négligés. En suivant les notations de [33], l'amplitude de diffusion est une matrice qui dans le cadre de notre étude est diagonale :

$$\bar{S} = \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \quad (3.29)$$

La norme de cette matrice de diffusion est définie comme :

$$|\bar{S}|^2 = \frac{1}{2} (S_1^2 + S_2^2) \quad (3.30)$$

L'expression de S_1 est identique à l'expression scalaire Eq. 3.28 de S et S_2 est égal à cette expression scalaire multiplié par $\mathbf{e}_d \cdot \mathbf{e}_i = \cos(\theta_d)$:

$$\left. \begin{array}{l} S_1(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \\ S_2(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \end{array} \right\} = \frac{i}{2\pi} k_e^2 (m_r - 1) \int_{V_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \left\{ \begin{array}{l} 1 \\ \mathbf{e}_d \cdot \mathbf{e}_i \end{array} \right. \quad (3.31)$$

La démonstration de ce résultat est donnée dans [33] et peut être ici obtenue en remplaçant la fonction de Green par le tenseur de Green dans les dérivations de ce chapitre.

En notant

$$\frac{1}{V_{part}} \int_{V_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) = R(\theta_d, \varphi_d) \quad (3.32)$$

où V_{part} est le volume de la particule, on obtient l'expression suivante de la section efficace différentielle de diffusion (voir Eq. 2.12) :

$$W_d(\theta_d, \varphi_d) = \left(\frac{k_e^2}{2\pi} \right)^2 V_{part}^2 |m_r - 1|^2 \frac{(1 + \cos^2(\theta_d))}{2} |R(\theta_d, \varphi_d)|^2 \quad (3.33)$$

où toutes les définitions géométriques et angulaires sont rappelées à la figure 3.3. Cette expression est intégrée sur toutes les directions afin d'obtenir l'expression de la section efficace de diffusion (Eq. 2.7) :

$$\sigma_d = \left(\frac{k_e^2}{2\pi}\right)^2 V_{part}^2 |m_r - 1|^2 \int_{2\pi} d\varphi_d \int_0^\pi d\theta_d \sin(\theta_d) \frac{(1 + \cos^2(\theta_d))}{2} |R(\theta_d, \varphi_d)|^2 \quad (3.34)$$

La fonction $R(\theta_d, \varphi_d)$ contient toute l'information sur la géométrie de la particule. Le terme $\exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0)$ représente le déphasage dû à la différence de marche entre une onde interagissant avec la matière en \mathbf{r}_0 et l'onde passant par l'origine, tel que schématisé à la figure 3.3 (voir aussi Fig. 3.1).

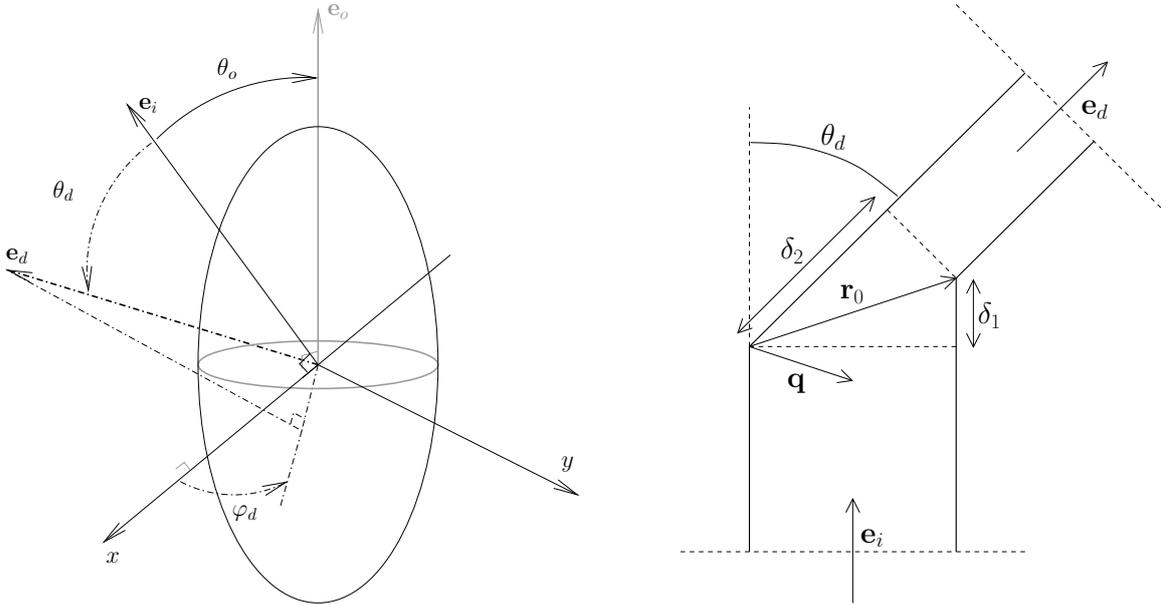


FIGURE 3.3: Géométrie de la diffusion Rayleigh-Gans. a : définitions géométriques et angulaires. Schéma d'un sphéroïde dont l'axe de révolution \mathbf{e}_o fait un angle θ_o avec la direction d'incidence \mathbf{e}_i . La direction de diffusion \mathbf{e}_d fait un angle θ_d avec \mathbf{e}_i et φ_d avec l'axe x du plan perpendiculaire à \mathbf{e}_i passant par l'origine. b : le déphasage de l'onde passant par \mathbf{r}_0 par rapport à l'onde passant par l'origine est égal à $-ik_e \delta$, où $\delta = \delta_1 - \delta_2 = \mathbf{r}_0 \cdot \mathbf{e}_i - \mathbf{r}_0 \cdot \mathbf{e}_d = -\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0$ est la différence de marche entre les deux rayons.

Encart 2 RÉSULTATS DE L'APPROXIMATION DE RAYLEIGH-GANS POUR LES SPHÉROÏDES ET LES CYLINDRES

Nous donnons ici des résultats analytiques de $R(\theta_s, \varphi_s)$ largement décrits et utilisés dans la littérature [49, 33], en accord avec les notations définies à la figure 3.3 et avec les équations paramétriques Eqs. 2.34 et 2.33 du chapitre précédent. Dans ce qui suit, $J_n(x)$ dénote la fonction de Bessel cylindrique régulière d'ordre n et on introduit un angle β tel que :

$$\cos(\beta) = -\cos(\theta_o) \sin(\theta_s/2) + \sin(\theta_o) \cos(\theta_s/2) \cos(\varphi_s) \quad (3.35)$$

Sphéroïdes :

$$R(\theta_s, \varphi_s) = \sqrt{\frac{9\pi}{2u^3}} J_{3/2}(u) \quad (3.36)$$

avec

$$u = k_e a 2 \sin(\theta_s/2) \sqrt{1 + (R^2 - 1) \cos^2(\beta)} \quad (3.37)$$

Cylindres :

$$R(\theta_s, \varphi_s) = F(k_e a 2 \sin(\theta_s/2) \sin(\beta)) E(k_e b 2 \sin(\theta_s/2) \cos(\beta)) \quad (3.38)$$

avec

$$F(u) = \frac{2}{u} J_1(u) \quad (3.39)$$

$$E(u) = \sqrt{\frac{\pi}{2u}} J_{1/2}(u)$$

Les efficacités obtenues par les approximations de Born et de Rayleigh-Gans pour un diffuseur sphérique sont données à la figure 3.4. Ces résultats illustrent la discussion sur la différence entre un développement en ordre de $(m_r - 1)$ ou en ordre de $(m_r^2 - 1)$. Dans la gamme de paramètres de taille étudiée, l'approximation de Rayleigh-Gans est toujours plus pertinente que l'approximation de Born sur la section efficace de diffusion. Pour la section efficace d'absorption, nous observons deux zones :

- Pour les petits paramètres de taille l'approximation de Rayleigh-Gans est plus pertinente que l'approximation de Born, ce qui semble indiquer que les deux termes d'ordres $(m_r - 1)^2$ se compensent dans le développement en série de Born.
- Pour les paramètres de taille plus élevés le terme supplémentaire pris en compte dans l'approximation de Born semble améliorer les résultats.

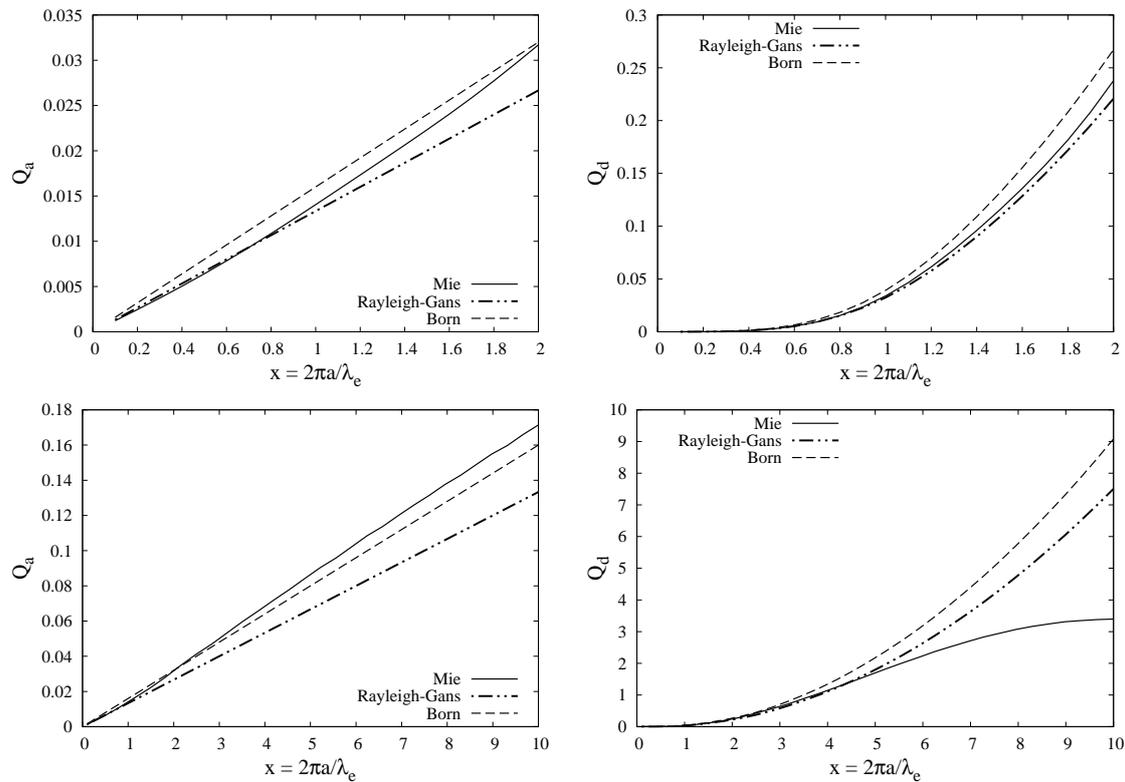


FIGURE 3.4: Efficacité d'absorption (à gauche) et de diffusion (à droite) d'une sphère d'indice $m_r = 1.2 - i 5.10^{-3}$ en fonction de son paramètre de taille. *Mie* est la référence et a été obtenu avec le code *bhmie* [34]; *Rayleigh-Gans* correspond aux équations 3.27 et 3.34; *Born* fait référence à l'équation 3.23 pour l'absorption et à l'équation 3.34 dans laquelle $|m_r - 1|$ a été remplacé par $|m_r^2 - 1|/2$ pour la diffusion.

3.3 Particules grandes devant la longueur d'onde

Dans notre contexte, la limite des grandes particules de faible contraste d'indice est classiquement associée à l'*approximation de la diffraction anormale* [33]. L'*approximation de Schiff* [92] est le pendant en mécanique quantique de l'approximation de la diffraction anormale. Cependant, l'approximation de Schiff permet une meilleure description angulaire des puissances diffusées que l'approximation de la diffraction anormale. L'approximation de Schiff est à l'heure actuelle la méthode la plus pertinente pour l'étude des micro-organismes photosynthétiques. Notre démarche dans cette section va consister à présenter les développements mathématiques sous-jacents à l'approximation de Schiff en mécanique quantique, puis à faire le lien avec les images physiques de l'approximation de la diffraction anormale avant

de transposer l'approximation de Schiff à l'étude des ondes électromagnétiques, de la même manière que cela a été fait pour le passage de l'approximation de Born à l'approximation de Rayleigh-Gans à la section précédente.

3.3.1 Approximation de Schiff en mécanique quantique

Bien que développée dans le contexte de l'étude de la diffusion d'électrons de haute énergie par des noyaux lourds, l'approximation de Schiff est très intéressante pour l'étude du problème de la diffusion dans la limite des grandes particules de faibles contrastes d'indice. Cette section s'appuie entièrement sur l'article fondateur de L.I. Schiff [92] (qui se base sur un formalisme intégral identique à celui développé à la section 3.1) dont les résultats sont ici discutés sans forcément reprendre toutes les dérivations mathématiques dans leurs détails, mais en tentant d'aller suffisamment loin pour en illustrer les fondements. Dans son article, L.I. Schiff cherche la fonction d'onde ψ solution de l'équation de Schrödinger

$$(\nabla^2 + k^2 - U)\psi = 0 \quad (3.40)$$

où $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ est l'énergie cinétique de la particule incidente et $\frac{\hbar^2 U}{2m} = V$ est l'énergie du potentiel de diffusion. Plus précisément, il cherche la solution qui possède la forme asymptotique :

$$\psi \rightarrow \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) + \frac{\exp(ikr)}{r} f(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) \quad (3.41)$$

L'étude se place dans le cadre des hypothèses suivantes :

- (1) $|V| \ll (E - mc^2)$, où $(E - mc^2)$ est l'énergie cinétique de la particule incidente,
- (2) $ka \gg 1$, où a est la distance correspondant à une variation significative du potentiel U .

Le parallèle avec notre étude est direct, tant dans les images physiques que dans le formalisme. Les travaux de Schiff peuvent être repris en considérant $U(\mathbf{r}) = -k_e^2 (m_r(\mathbf{r})^2 - 1)$ (voir Eqs. 2.17 à 2.16), $S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{1}{-i} f(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i)$, et en remplaçant i par $-i$ dans les expressions (afin de respecter la convention de signe choisie ici pour la définition de l'amplitude complexe). L'approximation de Schiff correspond, dans cette transposition, aux hypothèses suivantes :

- (a) l'hypothèse (1) correspond à des faibles contrastes d'indice

$$|m_r^2 - 1| \ll 1$$

- (b) et dans le cas d'une particule homogène, l'hypothèse (2) correspond à des particules

grandes devant la longueur d'onde (grands paramètres de tailles)

$$k a \gg 1$$

où a est la dimension caractéristique de la particule (le rayon pour une particule sphérique),

L'approximation consiste à sommer les termes du développement en série de Born après en avoir approximé chacune des intégrales en utilisant la méthode des phases stationnaires [108]. Nous notons ici ces intégrales

$$\begin{aligned} I_1 &= \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \\ I_2 &= \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) E_i(\mathbf{r}_2) \\ I_3 &= \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_3 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) G(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) G(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3) E_i(\mathbf{r}_3) \\ I_4 &= \dots \end{aligned} \tag{3.42}$$

de sorte que le développement de Born du champ interne Eq. 3.20 s'écrive :

$$E(\mathbf{r}_0) = E_i(\mathbf{r}_0) - k_e^2 (m_r^2 - 1) I_1 + k_e^4 (m_r^2 - 1)^2 I_2 - k_e^6 (m_r^2 - 1)^3 I_3 \dots \tag{3.43}$$

Prenons pour commencer l'intégrale I_1 dans laquelle on remplace $G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1)$ et $E_i(\mathbf{r}_1)$ par leurs expressions (voir Eq. 3.1 et Eq. 2.3), et où l'on fait le changement de variable $\boldsymbol{\rho}_1 = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0$:

$$I_1 = \frac{1}{4\pi} E_i(\mathbf{r}_0) \int d\boldsymbol{\rho}_1 H(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_1 \in \mathcal{V}_{part}) \frac{\exp[-i(k_e \rho_1 + \mathbf{k}_i \cdot \boldsymbol{\rho}_1)]}{\rho_1} \tag{3.44}$$

où $\rho_1 = \|\boldsymbol{\rho}_1\|$, et où $H()$ est la fonction échelon qui prend la valeur 1 si la condition entre parenthèses est satisfaite, c'est-à-dire si $\mathbf{r}_1 = \mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_1$ est dans le volume de la particule, et 0 sinon. La particule étant grande devant la longueur d'onde (condition (b)), la majeure partie de l'intégrale correspond à des valeurs de ρ_1 qui sont bien supérieures à k_e^{-1} . Pour $\rho_1 \gg k_e^{-1}$, le terme exponentiel dans l'intégrande oscille très rapidement lorsque la direction de $\boldsymbol{\rho}_1$ est changée, sauf lorsque $\boldsymbol{\rho}_1$ est proche de $-\mathbf{k}_i$ et que la phase de l'exponentielle s'annule. On dit alors que la phase de l'exponentielle est stationnaire. L'approximation des phases stationnaires consiste à remarquer que les oscillations rapides de l'intégrande loin de la zone de phase stationnaire mènent à une contribution à l'intégrale qui est petite devant la contribution de la zone de phase stationnaire. Il en découle que la principale contribution

à l'intégrale I_1 vient d'une région en forme de parabolôide de révolution autour de $-\mathbf{k}_i$, de sommet en \mathbf{r}_0 , correspondant à des angles θ entre $-\mathbf{k}_i$ et $\boldsymbol{\rho}_1$ tels que $\theta \lesssim \sqrt{\frac{2}{k_e \rho_1}}$. Cette région est schématisée à la figure 3.5, et sera notée $\mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)$ dans la suite. Ainsi, on démontre que pour les particules grandes devant la longueur d'onde (voir [92])

$$I_1 = \frac{1}{4\pi} E_i(\mathbf{r}_0) \frac{i2\pi}{k_e} \int_0^\infty d\rho_1 H(\mathbf{r}_0 - \rho_1 \mathbf{e}_i \in \mathcal{V}_{part}) + O(k_e^{-2}) \quad (3.45)$$

où on a remplacé l'intégrale sur le volume de la particule par une intégrale sur la région de phase stationnaire $\boldsymbol{\rho}_1 = -\rho_1 \mathbf{e}_i$, avec \mathbf{e}_i le vecteur unitaire correspondant à la direction incidente ($\mathbf{k}_i = k_e \mathbf{e}_i$). Dans cette expression, l'intégrale sur ρ_1 est égale à la distance parcourue par un "rayon" parallèle à \mathbf{e}_i , entre son entrée dans la particule et le point \mathbf{r}_0 . En se plaçant dans le repère des figures 3.5 et 3.7, dans lequel l'axe z coïncide avec la direction d'incidence \mathbf{e}_i , cette distance est égale à $z_0 - z_0^{in}$, où z_0^{in} est l'abscisse du point d'entrée du rayon passant pas \mathbf{r}_0 (\mathbf{r}_0 correspondant à l'abscisse z_0). Il vient :

$$I_1(\mathbf{r}_0) = \frac{i}{2k_e} (z_0 - z_0^{in}) E_i(\mathbf{r}_0) + O(k_e^{-2}) \quad (3.46)$$

En introduisant $\boldsymbol{\rho}_2 = \mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$, on peut suivre la même méthodologie pour I_2 qui s'écrit alors

$$I_2 = \int_{\mathcal{V}_{part}} G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \frac{1}{4\pi} \int d\boldsymbol{\rho}_2 H(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_1 + \boldsymbol{\rho}_2 \in \mathcal{V}_{part}) \frac{\exp[-i(k_e \rho_2 + \mathbf{k}_i \cdot \boldsymbol{\rho}_2)]}{\rho_2} \quad (3.47)$$

L'approximation des phases stationnaires donne :

$$\begin{aligned} I_2 &\approx \int_{\mathcal{V}_{part}} G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \frac{1}{4\pi} \frac{i2\pi}{k_e} \int_0^\infty d\rho_2 H(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_1 - \rho_2 \mathbf{e}_i \in \mathcal{V}_{part}) \\ &= \int_{\mathcal{V}_{part}} G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \frac{i}{2k_e} (z_1 - z_1^{in}) \end{aligned} \quad (3.48)$$

où on a utilisé que

$$\int_0^\infty d\rho_2 H(\mathbf{r}_0 - \boldsymbol{\rho}_1 - \rho_2 \mathbf{e}_i \in \mathcal{V}_{part}) = (z_1 - z_1^{in})$$

est la longueur du rayon parallèle à \mathbf{e}_i entre son entrée dans la particule et le point \mathbf{r}_1 . En faisant le changement de variable $\boldsymbol{\rho}_1 = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0$, cette intégrale devient

$$I_2 = \frac{1}{4\pi} E_i(\mathbf{r}_0) \int d\boldsymbol{\rho}_1 H(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_1 \in \mathcal{V}_{part}) \frac{\exp[-i(k_e \rho_1 + \mathbf{k}_i \cdot \boldsymbol{\rho}_1)]}{\rho_1} \times \frac{i}{2k_e} (z_1 - z_1^{in}) \quad (3.49)$$

La zone de phase stationnaire associée à cette intégrale correspond à $\boldsymbol{\rho}_1$ aligné avec \mathbf{e}_i . Dans ce cas, la longueur $z_1 - z_1^{in}$ devient $(z_0 - z_0^{in}) - \rho_1$ et l'approximation des phases stationnaires donne :

$$\begin{aligned} I_2 &\approx \left(\frac{i}{2k_e}\right)^2 E_i(\mathbf{r}_0) \int_0^\infty d\rho_1 H(\mathbf{r}_0 - \rho_1 \mathbf{e}_i \in \mathcal{V}_{part}) [(z_0 - z_0^{in}) - \rho_1] \\ &= \left(\frac{i}{2k_e}\right)^2 E_i(\mathbf{r}_0) \frac{(z_0 - z_0^{in})^2}{2} \end{aligned} \quad (3.50)$$

En procédant de même, on obtient l'expression générale des I_j

$$I_j = \left(\frac{i}{2k_e}\right)^j \frac{(z_0 - z_0^{in})^j}{j!} E_i(\mathbf{r}_0) + O(k_e^{-2j}) \quad (3.51)$$

En injectant cette expression des I_j dans le développement de Born du champ interne Eq. 3.43 on obtient

$$E(\mathbf{r}_0) = E_i(\mathbf{r}_0) \exp\left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} (z_0 - z_0^{in})\right] + O\left(\sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n (m_r^2 - 1)^n\right) \quad (3.52)$$

Pour l'instant, nous n'avons utilisé que l'hypothèse des grands paramètres de tailles. Si l'on considère maintenant l'hypothèse (a), les termes d'ordres $(m_r^2 - 1)^n$ peuvent être négligés. Le champ dans la particule est alors l'onde plane incidente déphasée et atténuée sur la distance $z_0 - z_0^{in}$, de par la présence du matériau entre le point d'entrée \mathbf{r}_0^{in} et la position \mathbf{r}_0 considérée.

L.I. Schiff montre qu'il existe une zone de phase stationnaire que nous n'avons pas considérée dans l'expression précédente des $I_{j>1}$, et qui donne une contribution de même ordre à l'amplitude de diffusion aux grands angles. Cette zone de phase stationnaire est représentée à la figure 3.5 et correspond à l'alignement de tous les vecteurs $\boldsymbol{\rho}$ avec la direction $\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_0$. Dans le cas de I_2 , cela correspond à $\boldsymbol{\rho}_1$ et $\boldsymbol{\rho}_2$ alignés suivant $\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0$. En effet, I_2 peut s'écrire comme

$$I_2 = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \frac{1}{4\pi\rho_1} \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 \frac{1}{4\pi\rho_2} E_i(\mathbf{r}_2) \exp\{-ik_e(\rho_1 + \rho_2)\}$$

On introduit la fonction de Green $G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_2)$ en multipliant et divisant l'expression par $\exp(-ik_e\|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|) / \|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|$:

$$\begin{aligned} I_2 &= \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_2) E_i(\mathbf{r}_2) \\ &\quad \times \int d\boldsymbol{\rho}_1 H(\mathbf{r}_0 + \boldsymbol{\rho}_1 \in \mathcal{V}_{part}) \frac{\|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|}{4\pi\rho_1\rho_2} \exp\{-ik_e[(\rho_1 + \rho_2) - \|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|]\} \end{aligned}$$

L'intégrale sur $\boldsymbol{\rho}_1$ possède une zone de phase stationnaire correspondant aux positions \mathbf{r}_1 telles que $\boldsymbol{\rho}_1$ et $\boldsymbol{\rho}_2$ sont alignés suivant $\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0$ et $\rho_1 < \|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|$. Cette zone correspond bien

à $\|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\| = \rho_1 + \rho_2$. Schiff montre que la contribution de cette zone de phase stationnaire donne

$$I_2 = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_2) E_i(\mathbf{r}_2) \frac{i2\pi}{k_e} \frac{1}{4\pi} \int_0^{\|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|} d\rho_1 H\left(\mathbf{r}_0 + \frac{\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0}{\|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|} \rho_1 \in \mathcal{V}_{part}\right) \quad (3.53)$$

où la condition dans la fonction échelon est toujours satisfaite puisque $\mathbf{r}_2 \in \mathcal{V}_{part}$, et donc :

$$I_2 = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_2) E_i(\mathbf{r}_2) \frac{i}{2k_e} \|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0\|$$

Tout se passe comme si la position \mathbf{r}_1 n'existait pas (puisque $\boldsymbol{\rho}_1$ et $\boldsymbol{\rho}_2$ sont alignés), et en changeant la variable muette \mathbf{r}_2 pour \mathbf{r}_1 on obtient

$$I_2 = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \frac{i}{2k_e} \rho_1 \quad (3.54)$$

En sommant cette nouvelle contribution à la première contribution correspondant à la zone de phase stationnaire $\boldsymbol{\rho}_2$ colinéaire à $-\mathbf{k}_i$ (voir la dérivation Eq. 3.48), il vient

$$I_2 = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \frac{i}{2k_e} [\rho_1 + (z_1 - z_1^{in})] \quad (3.55)$$

Cette nouvelle contribution à I_2 (en plus de la contribution Eq. 3.50) correspond aux deux zones de phase stationnaire qui sont liées à la position \mathbf{r}_1 et qui sont représentées à la figure 3.5. A l'ordre j , on procède de manière similaire. Une première zone de phase stationnaire correspond à $\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2, \dots$ alignés avec $\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_0$ et on écrit l'intégrale sous la forme :

$$I_j = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_j G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_j) E_i(\mathbf{r}_j) \int d\boldsymbol{\rho}_1 \dots \int d\boldsymbol{\rho}_2 \dots \int d\boldsymbol{\rho}_{j-1} \dots \quad (3.56)$$

En faisant l'approximation des phases stationnaires sur les $j - 1$ intégrations sur les $\boldsymbol{\rho}$, puis en changeant la variable muette \mathbf{r}_j pour \mathbf{r}_1 , on obtient

$$I_j = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \left(\frac{i}{2k_e}\right)^{j-1} \frac{\rho_1^{j-1}}{(j-1)!} \quad (3.57)$$

Pour la seconde zone de phase stationnaire où les $\boldsymbol{\rho}_j, \boldsymbol{\rho}_{j-1}, \dots$ sont alignés avec $-\mathbf{k}_i$, on obtient selon la démarche présentée plus haut :

$$I_j = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \left(\frac{i}{2k_e} \right)^{j-1} \frac{(z_1 - z_1^{in})^{j-1}}{(j-1)!} \quad (3.58)$$

L'expression approchée de I se généralise donc à l'ordre j en sommant les contributions des deux zones de phase stationnaire :

$$I_j = \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \left(\frac{i}{2k_e} \right)^{j-1} \frac{[\rho_1 + (z_1 - z_1^{in})]^{j-1}}{(j-1)!} \quad (3.59)$$

où l'on retrouve bien la définition de I_1 pour $j = 1$.

La figure 3.5 montre que les deux nouvelles zones de phase stationnaire que nous venons de considérer sont identiques à la première zone \mathcal{V}^{ps} (qui nous avait menés à l'équation 3.51) lorsque $\mathbf{r}_1 \in \mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)$. Il convient donc d'exclure $\mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)$ de l'intégration Eq. 3.59 avant de la sommer à l'équation 3.51 (afin de ne pas compter deux fois les mêmes contributions), pour

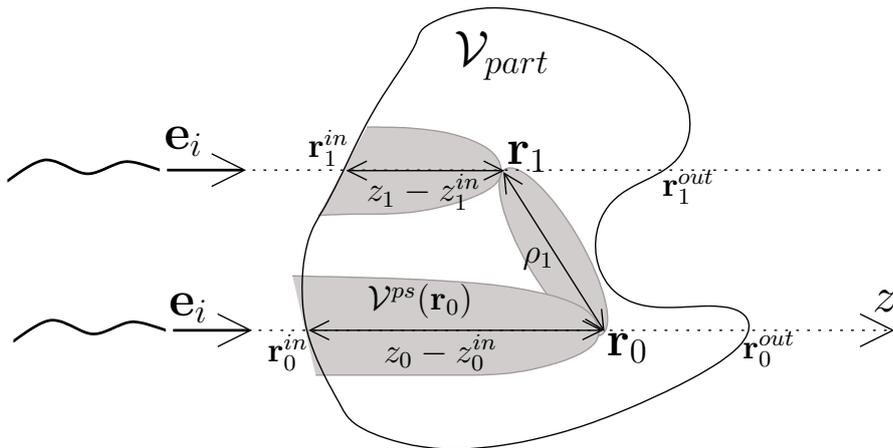


FIGURE 3.5: Zones de phase stationnaire dans le cadre de l'approximation de Schiff du champ interne.

obtenir :

$$\begin{aligned}
I_j \approx & \left(\frac{i}{2k_e} \right)^j \frac{(z_0 - z_0^{in})^j}{j!} E_i(\mathbf{r}_0) \\
& + \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 H[\mathbf{r}_1 \notin \mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)] G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \left(\frac{i}{2k_e} \right)^{j-1} \frac{[\rho_1 + (z_1 - z_1^{in})]^{j-1}}{(j-1)!}
\end{aligned} \tag{3.60}$$

On remarque que pour $j = 1$ l'intégrale sur les \mathbf{r}_1 , $\mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)$ exclu, correspond à la partie de I_1 qui avait été négligée dans Eq. 3.51. En injectant cette expression dans le développement de Born Eq. 3.43, on obtient :

$$\begin{aligned}
E(\mathbf{r}_0) = & E_i(\mathbf{r}_0) \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} (z_0 - z_0^{in}) \right] \\
& - k_e^2 (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 H[\mathbf{r}_1 \notin \mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)] G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \\
& \times \exp \left\{ -ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} [\|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0\| + (z_1 - z_1^{in})] \right\}
\end{aligned} \tag{3.61}$$

On peut donner une interprétation physique de cette expression qui souligne clairement l'analogie avec la *diffusion simple*. Le champ en \mathbf{r}_0 correspond à la somme de deux contributions :

- les ondes "balistiques", qui arrivent directement à la position \mathbf{r}_0 avec la direction \mathbf{e}_i , après avoir traversé la particule sur une distance $(z_0 - z_0^{in})$. Ces ondes correspondent au champ incident déphasé et atténué suivant la longueur de traversée de la particule.
- les ondes ayant vécu une diffusion en \mathbf{r}_1 avant d'arriver en \mathbf{r}_0 . Leur contribution correspond à un terme de diffusion proportionnel à $k_e^2 (m_r^2 - 1)$ et un déphasage (ainsi qu'une atténuation) suivant leur longueur de traversée de la particule $(z_1 - z_1^{in}) + \|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0\|$.

Il reste toutefois difficile de mettre une image physique simple sur la nécessité d'exclure la région $\mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)$, ce qui dans le cadre de ces images physiques revient à exclure la *diffusion avant*³. De plus, bien que les longueurs de traversée de la particule aient un sens physique, l'expression du déphasage comme étant proportionnel à $\frac{(m_r^2 - 1)}{2}$ est difficilement interprétable.

Nous allons maintenant injecter cette expression approchée du champ interne dans la relation Eq. 3.17 (que nous rappelons ci-dessous) afin d'obtenir l'expression de l'amplitude

3. Cette question pourrait notamment être approfondie en s'intéressant plus en détail aux travaux issus de la communauté spécialisée dans les méthodes asymptotiques en électromagnétisme.

de diffusion.

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0) E(\mathbf{r}_0)$$

Amplitude de diffusion aux grands angles. Lors de cette opération nous constatons que le deuxième terme de l'équation 3.61 donne une contribution non-négligeable à S pour les grands angles. Ce terme semble pourtant correspondre à un ordre supérieur par rapport au premier terme et devrait donc être négligeable. Cependant, il apporte une contribution non-négligeable de par l'existence d'une zone de phase stationnaire liée au facteur $\exp(i\mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0)$ qui intervient dans l'expression de S . Le premier terme de l'équation 3.61 donne :

$$\frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \exp\left[-i k_e \frac{m_r^2 - 1}{2} (z_0 - z_0^{in})\right] \quad (3.62)$$

Le deuxième terme donne :

$$\begin{aligned} -\frac{i k_e^4}{4\pi} (m_r^2 - 1)^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 H[\mathbf{r}_1 \notin \mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)] \frac{\exp[-i(k_e \rho_1 + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_1 - \mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0)]}{4\pi \rho_1} \\ \times \exp\left\{-i k_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} [\rho_1 + (z_1 - z_1^{in})]\right\} \end{aligned} \quad (3.63)$$

où $\boldsymbol{\rho}_1 = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0$. Il existe deux zones de phase stationnaire associées à cette intégrale :

- (1) la première est obtenue en écrivant $k_e \rho_1 + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_1 - \mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0 = -\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0 + k_e \rho_1 + \mathbf{k}_i \cdot \boldsymbol{\rho}_1$ et correspond à $\boldsymbol{\rho}_1$ colinéaire à $-\mathbf{k}_i$. Cependant cette zone ne participe pas à l'intégrale puisque \mathcal{V}^{ps} est justement exclu du domaine d'intégration. Cette contribution est déjà prise en compte dans le premier terme.
- (2) la deuxième zone de phase stationnaire est obtenue en écrivant $k_e \rho_1 + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_1 - \mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_0 = -\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1 + k_e \rho_1 + \mathbf{k}_d \cdot \boldsymbol{\rho}_1$ et correspond à $\boldsymbol{\rho}_1$ colinéaire à $-\mathbf{k}_d$. Cette zone de phase stationnaire est distincte de la zone (1) (qui correspond à \mathcal{V}^{ps}) lorsque \mathbf{k}_d et \mathbf{k}_i sont suffisamment différents, c'est-à-dire pour les grands angles, et plus précisément lorsque $\theta_d \gtrsim \sqrt{\frac{2}{k_e \tilde{a}}}$, où Schiff décrit \tilde{a} comme étant la dimension caractéristique de la zone participant significativement au processus de diffusion. Dans le cas de particules très allongées, la dimension caractéristique définissant l'ouverture angulaire des puissances diffusées est la plus petite dimension caractéristique du diffuseur. Nous proposons dans la suite de considérer \tilde{a} comme étant cette dimension.

Afin d'obtenir l'amplitude de diffusion aux grands angles, nous allons donc exprimer la contribution de la zone (2). On écrit l'expression Eq. 3.63 de manière à faire apparaître la

zone de phase stationnaire (2) :

$$\begin{aligned}
& -\frac{i k_e^4}{4\pi} (m_r^2 - 1)^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1) \exp \left\{ -ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} (z_1 - z_1^{in}) \right\} \\
& \quad \times \int_{\mathcal{V}_{part}} d\rho_1 H[\mathbf{r}_1 - \rho_1 \in \mathcal{V}_{part}] H[\mathbf{r}_1 - \rho_1 \notin \mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)] \\
& \quad \times \frac{\exp[-i(k_e \rho_1 + \mathbf{k}_d \cdot \rho_1)]}{4\pi \rho_1} \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} \rho_1 \right]
\end{aligned} \tag{3.64}$$

Puis, d'après l'approximation des phases stationnaires, l'intégration sur les ρ_1 devient :

$$\begin{aligned}
& \frac{i2\pi}{k_e} \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty d\rho_1 H[\mathbf{r}_1 - \rho_1 \mathbf{e}_d \in \mathcal{V}_{part}] \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} \rho_1 \right] \\
& = \frac{i}{2k_e} \int_0^{l^{out}(\mathbf{r}_1, \mathbf{e}_d)} d\rho_1 \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} \rho_1 \right] \\
& = -\frac{1}{k_e^2 (m_r^2 - 1)} \left\{ \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} l^{out}(\mathbf{r}_1, \mathbf{e}_d) \right] - 1 \right\}
\end{aligned} \tag{3.65}$$

où $l^{out}(\mathbf{r}_1, \mathbf{e}_d)$ est la longueur du rayon partant de \mathbf{r}_1 suivant \mathbf{e}_d jusqu'à sa sortie de la particule, tel que représenté sur la figure 3.6. Le deuxième terme du champ intérieur apporte donc bien une contribution à S qui est du même ordre que Eq. 3.62 pour les grands angles, et qui s'écrit, après avoir changé la variable muette \mathbf{r}_1 pour \mathbf{r}_0 :

$$\begin{aligned}
& \frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1)^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} (z_0 - z_0^{in}) \right] \\
& \quad \times \left\{ \exp \left[-ik_e \frac{(m_r^2 - 1)}{2} l^{out}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_d) \right] - 1 \right\}
\end{aligned} \tag{3.66}$$

Pour les angles $\theta_d \gtrsim \sqrt{\frac{2}{k_e \bar{a}}}$, on obtient l'approximation de Schiff pour l'amplitude de diffusion aux grands angles en sommant les contributions des deux termes Eqs. 3.62 et 3.66 :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \exp \left[-i k_e \frac{m_r^2 - 1}{2} [l^{in}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_i) + l^{out}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_d)] \right] \tag{3.67}$$

où, comme décrit à la figure 3.6, $l^{in}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_i) = (z_0 - z_0^{in})$.

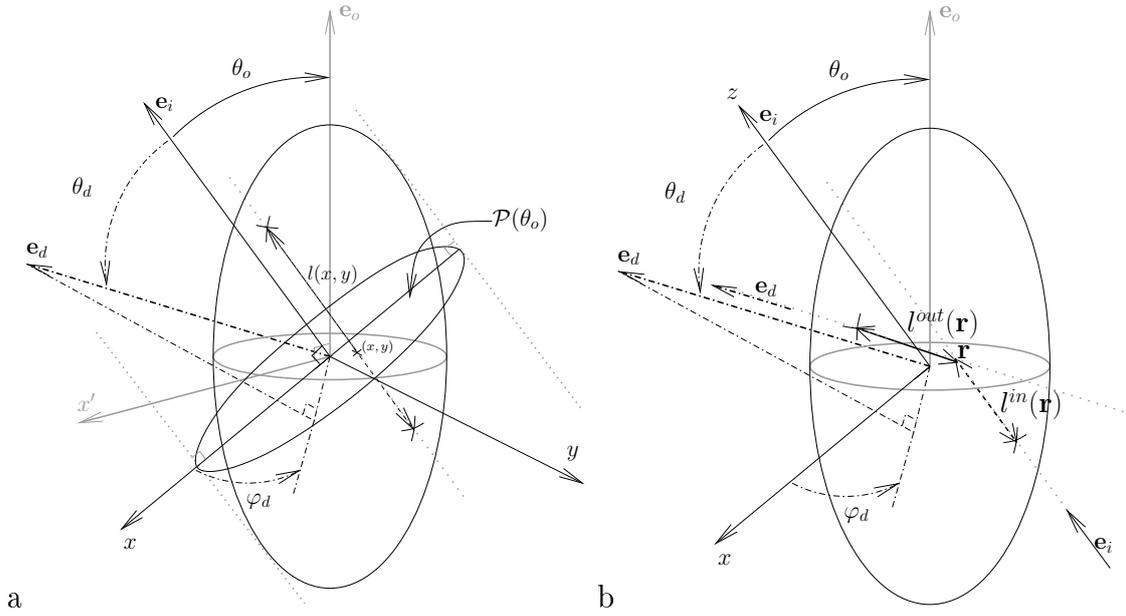


FIGURE 3.6: Définitions des notations utilisées pour l'approximation de Schiff : schéma d'un sphéroïde dont l'axe de révolution \mathbf{e}_o fait un angle θ_o avec la direction d'incidence \mathbf{e}_i . \mathcal{P} est la surface projetée de la particule sur un plan perpendiculaire à \mathbf{e}_i . a : \mathcal{P} est associée à un repère (x, y) (pour $\theta_o = 0$: $x' \equiv x$ and $\mathbf{e}_i \equiv \mathbf{e}_o$). La direction de diffusion \mathbf{e}_d fait un angle θ_d avec \mathbf{e}_i et φ_d avec l'axe x du plan contenant \mathcal{P} . $l(x, y)$ est la longueur de traversée d'un rayon colinéaire à \mathbf{e}_i passant à travers la particule en ligne droite en intersectant \mathcal{P} à la position (x, y) . b : $l^{in}(\mathbf{r})$ est la longueur d'un rayon incident (de direction \mathbf{e}_i) entre son entrée dans la particule et la position \mathbf{r} , $l^{out}(\mathbf{r})$ est la longueur d'un rayon partant de la position \mathbf{r} avec la direction de diffusion \mathbf{e}_d jusqu'à sa sortie de la particule.

Amplitude de diffusion aux petits angles. Pour les angles $\theta_d \lesssim \sqrt{\frac{2}{k_e \tilde{a}}}$, la contribution du second terme est nulle et on obtient :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \exp \left[-i k_e \frac{m_r^2 - 1}{2} l^{in}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_i) \right] \quad (3.68)$$

Cette approximation n'est valable que pour les très petits angles car, par définition du cadre de validité de l'approximation de Schiff, $k_e a \gg 1$ et $k_e \tilde{a} \gg 1$. L'expression précédente se simplifie en considérant que \mathbf{q} est proche du plan perpendiculaire à la direction d'incidence \mathbf{e}_i lorsque l'angle de diffusion est très petit. Dans le repère de la figure 3.6, où l'axe z est

suisant \mathbf{e}_i , on a $\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0 = q_x x + q_y y + q_z z$ et

$$\mathbf{k}_i = k_e \begin{vmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{vmatrix} \quad \mathbf{k}_d = k_e \begin{vmatrix} \sin(\theta_d) \cos(\varphi_d) \\ \sin(\theta_d) \sin(\varphi_d) \\ \cos(\theta_d) \end{vmatrix} \quad (3.69)$$

Le vecteur \mathbf{q} peut s'écrire

$$\mathbf{q} = k_e 2 \sin(\theta_d/2) \hat{\mathbf{q}} \quad (3.70)$$

où $\hat{\mathbf{q}}$ est un vecteur unitaire

$$\hat{\mathbf{q}} = \begin{vmatrix} \cos(\theta_d/2) \cos(\varphi_d) \\ \cos(\theta_d/2) \sin(\varphi_d) \\ -\sin(\theta_d/2) \end{vmatrix} \quad (3.71)$$

Dans la limite des petits angles, $q_z \approx k_e \theta_d^2/2$ et dans la mesure où $\theta_d \ll (k_e a)^{-1/2}$, on a $q_z a \ll 1$. Les composantes transverses q_x et q_y sont elles de l'ordre de $k_e \theta_s$, impliquant $q_{x,y} a \approx (k_e a)^{1/2}$ qui peut être beaucoup plus grand que 1. On néglige donc la composante suivant z de \mathbf{q} en remplaçant $\hat{\mathbf{q}}$ par :

$$\hat{\mathbf{q}} = \begin{vmatrix} \cos(\varphi_d) \\ \sin(\varphi_d) \\ 0 \end{vmatrix} \quad (3.72)$$

L'intégration sur le volume de la particule se réduit à une intégration sur la surface projetée \mathcal{P} perpendiculaire à la direction incidente (voir la figure 3.6), donnant un schéma de diffraction similaire à celui de la diffraction Fraunhofer :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{4\pi} (m_r^2 - 1) \int_{\mathcal{P}} dx dy \exp [i (q_x x + q_y y)] \int_{z^{in}}^{z^{out}} dz \exp \left[-i k_e \frac{m_r^2 - 1}{2} l^{in}(x, y, z, \mathbf{e}_i) \right]$$

\Rightarrow

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{k_e}{2\pi} \int_{\mathcal{P}} dx dy \exp [i k_e 2 \sin(\theta_d/2) (x \cos \varphi_d + y \sin \varphi_d)] \times \left\{ 1 - \exp \left[-i k_e \frac{m_r^2 - 1}{2} l(x, y) \right] \right\} \quad (3.73)$$

où $l(x, y)$ est la longueur d'un rayon traversant la particule de part en part (de z^{in} à z^{out} sur la figure 3.5) en ligne droite et intersectant \mathcal{P} en (x, y) , tel que représenté sur la figure 3.6.a. En

pratique, les angles de diffusion considérés ici sont suffisamment petits pour que $\sin(\theta_d/2)$ puisse être remplacé par son développement limité au premier ordre $\sin(\theta_d/2) \approx \theta_d/2$. Il vient l'approximation de Schiff pour l'amplitude de diffusion aux petits angles :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{k_e}{2\pi} \int_{\mathcal{P}} dx dy \exp [i k_e \theta_d (x \cos \varphi_d + y \sin \varphi_d)] \times \left\{ 1 - \exp \left[-i k_e \frac{m_r^2 - 1}{2} l(x, y) \right] \right\} \quad (3.74)$$

3.3.2 Approximation de la diffraction anormale

L'approximation de la diffraction anormale a été introduite par van de Hulst en 1957 [33]. Dans un premier temps, nous suivons la démarche de l'ouvrage de van de Hulst en construisant l'approximation à partir d'images physiques simples. Cette approche très intuitive est utile à la compréhension de l'approximation mais possède certaines lacunes, notamment en ce qui concerne la description des puissances diffusées aux grands angles. Pour cette raison, la section suivante établit les liens avec l'approximation de Schiff. Les hypothèses de l'approximation de la diffraction anormale sont les suivantes :

(a) l'indice de réfraction relatif est proche de 1

$$|m_r - 1| \ll 1$$

(b) le paramètre de taille des particules est grand

$$k_e a \gg 1$$

où a est la dimension caractéristique de la particule (son rayon si la particule est sphérique).

L'approximation de la diffraction anormale consiste en une transmission de la lumière incidente en ligne droite à travers la particule, puis une diffraction de cette lumière transmise d'après le principe de Huygens. Dans ce cadre, l'intensité diffusée est nécessairement concentrée autour de la direction d'incidence. Plus précisément, l'hypothèse (b) assure que les images de l'optique géométrique (en terme de rayons) sont valides, et l'addition de l'hypothèse (a) implique que ces rayons ne sont ni déviés ni réfléchis à la traversée des frontières de la particule. Ainsi, le champ dans le plan \mathcal{Q} perpendiculaire à \mathbf{e}_i situé juste derrière la particule (voir Fig. 3.7) n'est modifié que par un terme de phase : un rayon ayant traversé la particule en ligne droite sur une longueur l voit sa phase décalée de $(m_r - 1) l$ par rapport

à l'onde incidente. En prenant l'amplitude E_0 de l'onde incidente égale à 1, le champ total dans le plan \mathcal{Q} correspondant à $z = 0$ est :

$$E(x, y) = \begin{cases} \exp[-i k_e (m_r - 1) l(x, y)] & , (x, y) \in \mathcal{P} \\ 1 & , (x, y) \notin \mathcal{P} \end{cases} \quad (3.75)$$

où $l(x, y)$ est la longueur de traversée d'un rayon intersectant la surface projetée \mathcal{P} de la particule en (x, y) , et où $E_i = 1$ dans le plan \mathcal{Q} .

Le champ diffusé $E_d = E - E_i$ dans le plan \mathcal{Q} est donc

$$E_d(x, y) = \begin{cases} \exp[-i k_e (m_r - 1) l(x, y)] - 1 & , (x, y) \in \mathcal{P} \\ 0 & , (x, y) \notin \mathcal{P} \end{cases} \quad (3.76)$$

Puis, on applique le principe de Huygens pour obtenir le schéma de diffraction en champ lointain $E_{\text{diffract}}(\mathbf{r})$ par une ouverture \mathcal{P} où le champ est connu en chaque point (x, y)

$$E_{\text{diffract}}(\mathbf{r}) = i \frac{k}{2\pi} \frac{\exp(-i kr)}{r} \int \int_{\mathcal{P}} dx dy \exp[i k \sin \theta_d (x \cos \varphi_d + y \sin \varphi_d)] E_d(x, y) \quad (3.77)$$

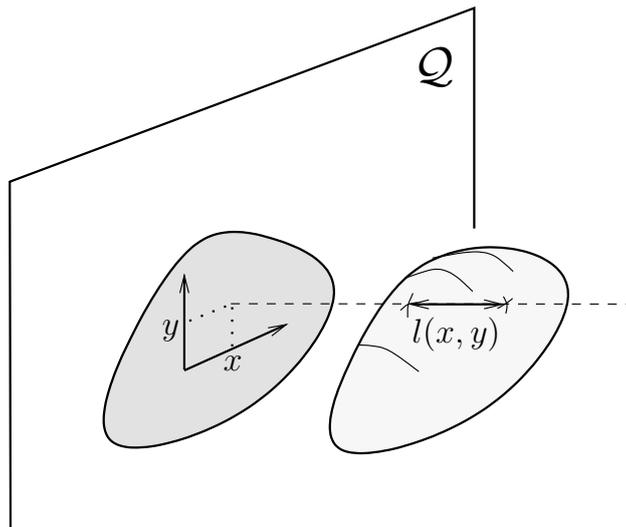


FIGURE 3.7: Longueur de traversée d'un rayon intersectant le plan \mathcal{Q} en (x, y) .

D'après le principe de Babinet (voir [33] Chap. 8), le champ diffusé est l'opposé de ce schéma de diffraction. On obtient ainsi le résultat principal de l'approximation de la diffraction anormale, après avoir remplacé $\sin \theta_d$ par son développement limité au premier ordre $\sin \theta_d \approx \theta_d$ (hypothèse des petits angles) :

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{k_e}{2\pi} \int \int_{\mathcal{P}} dx dy \exp [i k_e \theta_s (x \cos \varphi_s + y \sin \varphi_s)] \times \{1 - \exp [-i k_e (m_r - 1) l(x, y)]\} \quad (3.78)$$

Nous venons d'obtenir en quelques phrases ce qui nous a pris plusieurs pages de dérivations mathématiques dans le cadre de l'approximation de Schiff.

D'après le théorème optique (Sec. 2.1.2), la section efficace d'extinction s'écrit :

$$\sigma_{ext} = 2 \operatorname{Re} \left[\int \int_{\mathcal{P}} dx dy \{1 - \exp [-i k_e (m_r - 1) l(x, y)]\} \right] \quad (3.79)$$

D'autre part, la section efficace d'absorption peut être obtenue en reprenant les images physiques en terme de rayons : chaque rayon traversant la particule sur une longueur l voit la proportion $1 - [\exp (-k_e \kappa_r l)]^2$ de la puissance qu'il transporte être absorbée, de sorte que

$$\sigma_a = \int \int_{\mathcal{P}} dx dy \{1 - \exp [-2 k_e \kappa_r l(x, y)]\} \quad (3.80)$$

On remarque que pour une particule opaque (c'est-à-dire que m_r a une partie imaginaire, de sorte que $\exp [-i k_e (m_r - 1) l(x, y)] \rightarrow 0$ lorsque l devient grand), ces expressions vérifient les limites théoriques (voir le paradoxe de l'extinction [33] Chap. 8)

$$\begin{aligned} \lim_{a \rightarrow \infty} \sigma_{ext} &= 2P \\ \lim_{a \rightarrow \infty} \sigma_a &= P \end{aligned} \quad (3.81)$$

où P est la section géométrique de la particule (l'aire de \mathcal{P}).

La construction de l'approximation de la diffraction anormale sur les images physiques (telle que nous venons de le voir) a l'avantage de la simplicité, en comparaison avec les dérivations mathématiques nécessaires à sa démonstration formelle. Cependant, ces images physiques ne sont valides que dans la limite des petits angles, dès lors que nous avons utilisé le schéma de diffraction par une ouverture plane. En effet, comment imaginer dans ce cadre qu'une puissance rétro-diffusée puisse exister ? Or, notre étude nécessite une description angulaire complète. De plus, bien que H. C. van de Hulst précise que la puissance est diffusée

autour de la direction incidente, nous ne disposons pas d'un critère angulaire définissant une limite de validité. Il est intéressant de remarquer que l'expression 3.78 utilisée sur $\theta_d \in [0, \pi]$ donne des résultats étonnamment bons, mais que si l'on ne remplace pas $\sin \theta_d$ par son développement limité (ce qui est légitime dans une extension à $[0, \pi]$), l'approximation donne alors des résultats très mauvais. Afin d'améliorer cette description angulaire il est nécessaire de passer par une dérivation formelle de l'approximation. H. C. van de Hulst propose une démonstration basée sur l'expression asymptotique de la solution rigoureuse de Mie. Nous allons dans la section suivante transposer l'approximation de Schiff à l'étude des ondes électromagnétiques, ce qui permet de retrouver les résultats de l'approximation de la diffraction anormale pour les sections efficaces et l'amplitude de diffusion aux petits angles, tout en disposant d'un angle limite de validité et d'une expression de S au même ordre d'approximation pour les grands angles.

3.3.3 Approximation de Schiff pour l'étude des ondes électromagnétiques

Nous nous plaçons dans les mêmes hypothèses que l'approximation de la diffraction anormale :

(a) l'indice de réfraction relatif est proche de 1

$$|m_r - 1| \ll 1$$

(b) le paramètre de taille des particules est grand

$$k_e a \gg 1$$

Partons du développement de Born du champ interne

$$E(\mathbf{r}_0) = E_i(\mathbf{r}_0) - k_e^2 (m_r^2 - 1) I_1 + k_e^4 (m_r^2 - 1)^2 I_2 - k_e^6 (m_r^2 - 1)^3 I_3 \dots$$

où les I_j sont définies à l'équation 3.43 et prennent leur valeur approchée Eq. 3.60 lorsque $k_e a \gg 1$ (hypothèse b). Exactement comme cela a été fait pour le passage de l'approximation de Born à l'approximation de Rayleigh-Gans, nous réécrivons le développement du champ interne comme une série en puissance de $(m_r - 1)$ plutôt que $(m_r^2 - 1)$:

$$\begin{aligned}
(m_r^2 - 1)E(\mathbf{r}_0) = & 2(m_r - 1)E_i(\mathbf{r}_0) + (m_r - 1)^2 [E_i(\mathbf{r}_0) - 4k_e^2 I_1] \\
& + (m_r - 1)^3 [8k_e^4 I_2 - 4k_e^2 I_1] \\
& + (m_r - 1)^4 [-16k_e^6 I_3 + 12k_e^4 I_2 - k_e^2 I_1] + \dots
\end{aligned} \tag{3.82}$$

L'expression approchée des I_j par l'approximation des phases stationnaires (Eq. 3.60) correspond à un ordre de grandeur $I_j \sim \left(\frac{a}{k_e}\right)^j$. Dans le cadre de l'hypothèse (b), on peut négliger les termes d'ordre inférieur en $k_e a$ dans les coefficients de développement pour obtenir :

$$\begin{aligned}
(m_r^2 - 1)E(\mathbf{r}_0) \simeq & 2(m_r - 1)E_i(\mathbf{r}_0) - 4k_e^2(m_r - 1)^2 I_1 + 8k_e^4(m_r - 1)^3 I_2 \\
& - 16k_e^6(m_r - 1)^4 I_3 + \dots
\end{aligned} \tag{3.83}$$

En remplaçant les I_j par leur expression approchée Eq. 3.60, on obtient :

$$\begin{aligned}
(m_r^2 - 1)E(\mathbf{r}_0) = & 2(m_r - 1)E_i(\mathbf{r}_0) \exp[-ik_e(m_r - 1)(z_0 - z_0^{in})] \\
& - 4k_e^2(m_r - 1)^2 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 H[\mathbf{r}_1 \notin \mathcal{V}^{ps}(\mathbf{r}_0)] G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1) E_i(\mathbf{r}_1) \\
& \quad \times \exp\{-ik_e(m_r - 1)[\|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0\| + (z_1 - z_1^{in})]\}
\end{aligned} \tag{3.84}$$

où les notations sont données aux figures 3.5 et 3.6. Comme cela avait été argumenté dans le cas de l'approximation de Rayleigh-Gans, le fait de développer le champ interne en puissances de $(m_r - 1)$ correspond à une certaine cohérence physique. Ainsi, le premier terme du champ (le facteur $2(m_r - 1)$ mis à part) prend tout son sens : le champ incident traverse la particule sans être dévié et n'est modifié que par le terme de phase Eq. 3.75. Le champ à l'intérieur de la particule est donc l'onde plane incidente atténuée et déphasée selon l'écart entre l'indice de réfraction dans la particule et dans le milieu environnant, pour la longueur $z_0 - z_0^{in}$ de son trajet dans la particule :

$$E(\mathbf{r}_0) = E_i(\mathbf{r}_0) \exp[-ik_e(m_r - 1)(z_0 - z_0^{in})] \tag{3.85}$$

Le second terme ne peut pas être obtenu sur la base des images physiques de l'approximation de la diffraction anormale. Son interprétation physique est discutée à la section 3.3.1. Ce terme correspond à un ordre inférieur par rapport au premier terme. Il n'apporte une contribution significative à l'amplitude de diffusion qu'aux grands angles, suite à l'apparition d'une zone de phase stationnaire (voir Sec. 3.3.1). En injectant Eq. 3.84 dans les expressions 3.11 et 3.12 définissant les sections efficaces, seul le premier terme du champ interne apporte une contribution non-négligeable (aucune zone de phase stationnaire ne correspond au second

terme) et on obtient une expression des sections efficaces d'extinction et d'absorption qui est identique à celle obtenue dans le cadre de l'approximation de la diffraction anormale Eqs. 3.79 et 3.80. Il en est de même dans la limite des petits angles lorsque l'on injecte Eq. 3.84 dans l'expression Eq. 3.17 définissant l'amplitude de diffusion et que l'on applique l'approximation des phases stationnaires (voir la démarche décrite à la section 3.3.1). Pour les grands angles, la zone de phase stationnaire associée au second terme du champ interne apparaît et on obtient (en reprenant les résultats de la section 3.3.1) :

Pour $\theta_d \gtrsim \sqrt{\frac{2}{k_e \bar{a}}}$,

$$S(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \frac{i k_e^2}{2\pi} (m_r - 1) \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \exp \left\{ -i k_e (m_r - 1) [l^{in}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_i) + l^{out}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_d)] \right\} \quad (3.86)$$

avec les notations de la figure 3.6. Comme nous l'avons vu dans le cadre de l'approximation de Rayleigh-Gans, les effets associés au caractère vectoriel des champs électromagnétiques se limitent dans notre étude à la multiplication de $|S|^2$ par un facteur $\frac{1+\cos^2\theta_d}{2}$. Pour les petits angles, ces effets sont négligeables mais ce n'est pas le cas aux grands angles. On obtient donc les expressions suivantes des propriétés radiatives dans le cadre de l'approximation de Schiff :

$$\begin{aligned} \sigma_{ext} &= 2 \operatorname{Re} \left[\int \int_{\mathcal{P}} dx dy \{1 - \exp[-i k_e (m_r - 1) l(x, y)]\} \right] \\ \sigma_a &= \int \int_{\mathcal{P}} dx dy \{1 - \exp[-2 k_e \kappa_r l(x, y)]\} \\ \sigma_d &= \sigma_{ext} - \sigma_a \end{aligned} \quad (3.87)$$

et

$$W_d(\mathbf{e}_d, \mathbf{e}_i) = \begin{cases} \left(\frac{k_e}{2\pi} \right)^2 \left| \int \int_{\mathcal{P}} dx dy \exp [i k_e \theta_s (x \cos \varphi_s + y \sin \varphi_s)] \times \{1 - \exp[-i k_e (m_r - 1) l(x, y)]\} \right|^2 & , \theta_d \lesssim \theta_l \\ \left(\frac{k_e^2}{2\pi} \right)^2 |m_r - 1|^2 \frac{1 + \cos^2 \theta_d}{2} \times \left| \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_0 \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0) \times \exp \left\{ -i k_e (m_r - 1) [l^{in}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_i) + l^{out}(\mathbf{r}_0, \mathbf{e}_d)] \right\} \right|^2 & , \theta_d \gtrsim \theta_l \end{cases} \quad (3.88)$$

avec les notations de la figure 3.6 et $\theta_l = \sqrt{\frac{2}{k_e \bar{a}}}$.

Encart 3 SURFACES PROJETÉES ET LONGUEURS DE TRAVERSÉE POUR LES SPHÉROÏDES ET LES CYLINDRES

Nous donnons ici les expressions analytiques des surfaces projetées \mathcal{P} et des longueurs de traversée l dans le cas particulier des sphéroïdes et des cylindres (équations paramétriques données à la section 2.2.1) dans le cadre des notations de la figure 3.6. L'obtention de ces résultats est détaillée dans [86].

Sphéroïdes :

\mathcal{P} est une ellipse : petit axe de longueur a suivant les y , grand axe de longueur $a\alpha(\theta_o)$ suivant les x , avec :

$$\alpha(\theta_o) = \sqrt{\cos^2 \theta_o + 1/R^2 \sin^2 \theta_o} \quad (3.89)$$

L'aire de l'ellipse est :

$$P(\theta_o) = \pi a^2 \alpha(\theta_o) \quad (3.90)$$

La longueur de traversée est :

$$l(x, y) = \frac{2a}{R\alpha(\theta_o)} \sqrt{1 - \frac{x^2}{a^2\alpha(\theta_o)^2} - \frac{y^2}{a^2}} \quad (3.91)$$

Cylindres :

On considère $\theta_o \in [0, \pi/2]$, l'autre partie ($\theta_o \in [\pi/2, \pi]$) étant équivalente. \mathcal{P} est un rectangle $-b \sin \theta_o < x < b \sin \theta_o$, $-a < y < a$ plus deux demi-ellipses juxtaposées en $x = -b \sin \theta_o$ et $x = b \sin \theta_o$: grand axe de longueur a suivant les y , petit axe de longueur $a \cos \theta_o$ suivant les x . L'aire de cette surface projetée est

$$P(\theta_o) = 4a^2 \cos \theta_o (\beta(\theta_o) + \pi/4) \quad (3.92)$$

où

$$\beta(\theta_o) = \frac{\tan \theta_o}{R} \quad (3.93)$$

En notant $\xi = ax \cos \theta_o$ et $\eta = ay$, on obtient la longueur de traversée suivante :

Pour $\beta \geq \sqrt{1 - \eta^2}$,

$$l/a = \begin{cases} \frac{\xi + \beta + \sqrt{1 - \eta^2}}{\sin \theta_o} & \text{si } |\xi + \beta| \leq \sqrt{1 - \eta^2} \\ \frac{-\xi + \beta + \sqrt{1 - \eta^2}}{\sin \theta_o} & \text{si } |\xi - \beta| \leq \sqrt{1 - \eta^2} \\ \frac{2\sqrt{1 - \eta^2}}{\sin \theta_o} & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.94)$$

Pour $\beta < \sqrt{1 - \eta^2}$,

$$l/a = \begin{cases} \frac{\xi + \beta + \sqrt{1 - \eta^2}}{\sin \theta_o} & \text{si } -\sqrt{1 - \eta^2} - \beta \leq \xi \leq -\sqrt{1 - \eta^2} + \beta \\ \frac{2}{R \cos \theta_o} & \text{si } -\sqrt{1 - \eta^2} + \beta \leq \xi \leq \sqrt{1 - \eta^2} - \beta \\ \frac{-\xi + \beta + \sqrt{1 - \eta^2}}{\sin \theta_o} & \text{si } \sqrt{1 - \eta^2} - \beta \leq \xi \leq \sqrt{1 - \eta^2} + \beta \\ \frac{2\sqrt{1 - \eta^2}}{\sin \theta_o} & \text{sinon} \end{cases} \quad (3.95)$$

3.4 Mise en œuvre pratique de l'approximation de Schiff

3.4.1 Résolution numérique par méthode de Monte Carlo

Les aspects théoriques utilisés dans cette section en lien avec la méthode de Monte Carlo seront développés aux chapitres 5 et 6. Nous verrons dans ces chapitres que tout algorithme de Monte Carlo correspond à une formulation intégrale qui en est la traduction mathématique rigoureuse. Dans ce qui suit, nous allons reformuler les expressions intégrales des propriétés radiatives obtenues par l'approximation de Schiff et en donner l'algorithme de Monte Carlo correspondant. Nous considérons les prises de moyenne sur les distributions de tailles et d'orientations discutées au chapitre 2. La méthode de Monte Carlo est particulièrement intéressante dans ce cadre puisque l'ajout de ces intégrales (en comparaison avec un calcul pour une orientation et une taille fixe) n'entraîne pas d'augmentation significative du temps de calcul, ce qui n'est pas le cas avec des méthodes par quadrature. En toute généralité, l'orientation d'une particule est définie par trois angles. Le fait que les particules étudiées soient à symétrie de révolution réduit ce nombre à deux angles. Le premier angle d'orientation est θ_o (voir Fig. 3.6). Son domaine d'intégration est restreint à $\theta_o \in [0, \pi/2]$, l'autre partie ($\theta_o \in [\pi/2, \pi]$) étant symétrique. Le deuxième angle d'orientation est défini par rapport à la direction de diffusion. Ainsi l'intégration sur cet angle est équivalente à une intégration sur les angles de diffusion φ_d (voir Fig. 3.6). On retrouve bien que la section efficace différentielle de diffusion d'une particule à symétrie de révolution orientée aléatoirement ne dépend que de l'angle θ_d . Dans le cas des sections efficaces, l'angle φ_d n'intervient pas et la prise de moyenne sur les orientations se limite à une intégration sur $\theta_o \in [0, \pi/2]$.

Sections efficaces. La formulation intégrale des sections efficaces σ_i , où i peut être l'extinction, l'absorption ou la diffusion, se réécrit :

$$\sigma_i = \int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \int_{\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r} p_{\mathbf{R}}(\mathbf{r}) \hat{w}_i \quad (3.96)$$

avec la densité de probabilité isotrope des orientations $p_{\Theta_o}(\theta_o) = \sin(\theta_o)$, la densité de probabilité log-normale des rayons de la sphère équivalente en volume $p_{R_{eq}}(r_{eq})$ décrite à la section 2.2.1 (connaissant l'élongation R , r_{eq} détermine les paramètres a et b de l'équation paramétrique de la forme considérée), la densité de probabilité uniforme $p_{\mathbf{R}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{P(\theta_o, r_{eq})}$ des positions \mathbf{r} de la surface projetée $\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})$ (où P est l'aire de \mathcal{P}), et où les fonctions de poids sont :

$$\hat{w}_{ext} = 2P(\theta_o, r_{eq}) \{1 - \exp[-k_e \kappa_r l(\mathbf{r}; \theta_o, r_{eq})] \cos[k_e (n_r - 1) l(\mathbf{r}; \theta_o, r_{eq})]\} \quad (3.97)$$

pour l'extinction,

$$\hat{w}_a = P(\theta_o, r_{eq}) \{1 - \exp[-2k_e \kappa_r l(\mathbf{r}; \theta_o, r_{eq})]\} \quad (3.98)$$

pour l'absorption et

$$\hat{w}_d = \hat{w}_{ext} - \hat{w}_a \quad (3.99)$$

pour la diffusion. L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) un angle d'orientation θ_o est généré aléatoirement sur $[0, \pi/2]$ suivant la densité de probabilité $p_{\Theta_o}(\theta_o)$,
- (2) un rayon r_{eq} est généré aléatoirement sur $[0, \infty]$ suivant la densité de probabilité $p_{R_{eq}}(r_{eq})$,
- (3) un point de la surface projetée $\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})$ est généré aléatoirement suivant la densité de probabilité uniforme $p_{\mathbf{R}}(\mathbf{r})$,
- (4) les poids sont calculés suivant les fonctions de poids \hat{w}_i , et l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à ce que le nombre de réalisations souhaité soit atteint.

Section efficace différentielle de diffusion aux petits angles. L'intégration sur les orientations porte ici sur les deux angles θ_o et φ_d . D'après la définition de W_d :

$$W_d(\theta_d) = \int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) |S|^2 \quad (3.100)$$

avec la densité de probabilité uniforme $p_{\Phi_d}(\varphi_d) = \frac{1}{2\pi}$ pour les angles $\varphi_d \in [0, 2\pi]$, et où les autres densités de probabilité sont identiques à celles définies ci-dessus pour les sections efficaces. Par ailleurs, S est définie à la section 3.3.3. En notant

$$g(\mathbf{r}) = \exp [i k_e \theta_d (x \cos \varphi_d + y \sin \varphi_d)] \{1 - \exp [-i k_e (m_r - 1) l(\mathbf{r}; \theta_o, r_{eq})]\} \quad (3.101)$$

où x et y sont les coordonnées du point \mathbf{r} de la surface projetée (tel que décrit à la figure 3.6), l'amplitude de diffusion s'écrit :

$$S = \frac{k_e}{2\pi} \int_{\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r} g(\mathbf{r}) \quad (3.102)$$

Le module carré de S peut s'écrire de la manière suivante en introduisant une nouvelle intégration sur la surface \mathcal{P} :

$$\begin{aligned} |S|^2 &= \text{Re}^2 \{S\} + \text{Im}^2 \{S\} \\ &= \left(\frac{k_e}{2\pi}\right)^2 \int_{\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_2 [\text{Re} \{g(\mathbf{r}_1)\} \text{Re} \{g(\mathbf{r}_2)\} + \text{Im} \{g(\mathbf{r}_1)\} \text{Im} \{g(\mathbf{r}_2)\}] \end{aligned} \quad (3.103)$$

Ce point sera développé au chapitre 6. En introduisant

$$\begin{aligned} \Gamma(\mathbf{r}) &= k_e \theta_d (x \cos \varphi_d + y \sin \varphi_d) \\ \beta_r(\mathbf{r}) &= k_e (n_r - 1) l(\mathbf{r}; \theta_o, r_{eq}) \\ \beta_i(\mathbf{r}) &= k_e \kappa_r l(\mathbf{r}; \theta_o, r_{eq}) \end{aligned} \quad (3.104)$$

on a :

$$\begin{aligned} \text{Re} \{g(\mathbf{r}_1)\} \text{Re} \{g(\mathbf{r}_2)\} + \text{Im} \{g(\mathbf{r}_1)\} \text{Im} \{g(\mathbf{r}_2)\} = \\ \cos [\Gamma(\mathbf{r}_1) - \Gamma(\mathbf{r}_2)] \{1 + \exp [-(\beta_i(\mathbf{r}_1) + \beta_i(\mathbf{r}_2))]\} \cos [\beta_r(\mathbf{r}_1) - \beta_r(\mathbf{r}_2)] \\ - \exp [-\beta_i(\mathbf{r}_1)] \cos [\beta_r(\mathbf{r}_1)] - \exp [-\beta_i(\mathbf{r}_2)] \cos [\beta_r(\mathbf{r}_2)] \} \\ + \sin [\Gamma(\mathbf{r}_1) - \Gamma(\mathbf{r}_2)] \{ \exp [-(\beta_i(\mathbf{r}_1) + \beta_i(\mathbf{r}_2))] \sin [\beta_r(\mathbf{r}_1) - \beta_r(\mathbf{r}_2)] \\ + \exp [-\beta_i(\mathbf{r}_1)] \sin [\beta_r(\mathbf{r}_1)] + \exp [-\beta_i(\mathbf{r}_2)] \sin [\beta_r(\mathbf{r}_2)] \} \end{aligned} \quad (3.105)$$

Lors de la prise de moyenne sur les orientations, toute la dépendance de $|S|^2$ à φ_d est contenue dans $\Gamma(\mathbf{r}_1) - \Gamma(\mathbf{r}_2)$:

$$\Gamma(\mathbf{r}_1) - \Gamma(\mathbf{r}_2) = k_e \theta_d (\Delta x \cos \varphi_d + \Delta y \sin \varphi_d) \quad (3.106)$$

où $\Delta x = x_1 - x_2$ et $\Delta y = y_1 - y_2$. On pose :

$$\Delta x \cos \varphi_d + \Delta y \sin \varphi_d = \|\Delta \mathbf{r}\| \sin(\varphi_d - \varphi_0) \quad (3.107)$$

où $\|\Delta \mathbf{r}\| = \sqrt{\Delta x^2 + \Delta y^2}$ et $\varphi_0 = \text{atan}\left(-\frac{\Delta x}{\Delta y}\right)$ $[\pi]$. En faisant le changement de variable $\varphi'_d = \varphi_d - \varphi_0$, on obtient

$$\begin{aligned} \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \sin[\Gamma(\mathbf{r}_1) - \Gamma(\mathbf{r}_2)] &= \int_{2\pi} d\varphi'_d \frac{1}{2\pi} \sin[k_e \theta_d \|\Delta \mathbf{r}\| \sin(\varphi'_d)] \\ &= 0 \end{aligned} \quad (3.108)$$

et

$$\begin{aligned} \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \cos[\Gamma(\mathbf{r}_1) - \Gamma(\mathbf{r}_2)] &= \int_{2\pi} d\varphi'_d \frac{1}{2\pi} \cos[k_e \theta_d \|\Delta \mathbf{r}\| \sin(\varphi'_d)] \\ &= J_0(k_e \theta_d \|\Delta \mathbf{r}\|) \end{aligned} \quad (3.109)$$

où $J_0()$ est la fonction de Bessel cylindrique régulière d'ordre 0. La section efficace différentielle de diffusion aux petits angles correspond donc à la formulation intégrale suivante :

$$W_d(\theta_d) = \int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \int_{\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_1 p_{\mathbf{R}_1}(\mathbf{r}_1) \int_{\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_2 p_{\mathbf{R}_2}(\mathbf{r}_2) \hat{w} \quad (3.110)$$

avec les densités de probabilité uniforme des positions \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 de la surface projetée $p_{\mathbf{R}_{1,2}}(\mathbf{r}_{1,2}) = \frac{1}{P(\theta_o, r_{eq})}$ et où la fonction de poids est :

$$\begin{aligned} \hat{w} = \left(\frac{k_e P(\theta_o, r_{eq})}{2\pi} \right)^2 J_0(k_e \theta_d \|\Delta \mathbf{r}\|) \{ &1 + \exp[-(\beta_i(\mathbf{r}_1) + \beta_i(\mathbf{r}_2))] \cos[\beta_r(\mathbf{r}_1) - \beta_r(\mathbf{r}_2)] \\ &- \exp[-\beta_i(\mathbf{r}_1)] \cos[\beta_r(\mathbf{r}_1)] - \exp[-\beta_i(\mathbf{r}_2)] \cos[\beta_r(\mathbf{r}_2)] \} \end{aligned} \quad (3.111)$$

L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) un angle d'orientation θ_o est généré aléatoirement sur $[0, \pi/2]$ suivant la densité de probabilité $p_{\Theta_o}(\theta_o)$,
- (2) un rayon r_{eq} est généré aléatoirement sur $[0, \infty]$ suivant la densité de probabilité $p_{R_{eq}}(r_{eq})$,
- (3) une première position \mathbf{r}_1 de la surface projetée $\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})$ est générée aléatoirement suivant la densité de probabilité uniforme $p_{\mathbf{R}_1}(\mathbf{r}_1)$,
- (4) une deuxième position \mathbf{r}_2 de la surface projetée $\mathcal{P}(\theta_o, r_{eq})$ est générée aléatoirement suivant la densité de probabilité uniforme $p_{\mathbf{R}_2}(\mathbf{r}_2)$,
- (5) le poids est calculé suivant la fonction de poids \hat{w} et l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à ce que le nombre de réalisations souhaité soit atteint.

Pour des raisons de convergence identiques à celles qui seront discutées dans le paragraphe suivant, il est intéressant de travailler avec la cumulée $CW_d(\theta_d)$ de la section efficace différentielle de diffusion :

$$CW_d(\theta_d) = 2\pi \int_0^{\theta_d} d\theta' \sin(\theta') W_d(\theta') \quad (3.112)$$

En ce qui concerne le transfert radiatif, travailler avec W_d ou CW_d est équivalent. Toute la dépendance de la fonction de poids \hat{w} à l'angle de diffusion vient de l'argument de la fonction de Bessel $J_0(k_e \theta_d \|\Delta\mathbf{r}\|)$. Afin de rendre l'intégration sur les θ' analytiques (et ainsi de réduire les difficultés de convergence), il faut revenir aux dérivations mathématiques de l'approximation de Schiff (Sec. 3.3.1). Dans ces dérivations, la dépendance en θ_d avait été obtenue en remplaçant $2 \sin(\theta_d/2)$ par son développement limité au premier ordre $2 \sin(\theta_d/2) \approx \theta_d$. Compte tenu des angles auxquels nous sommes ici, l'utilisation de $2 \sin(\theta_d/2)$ où de son développement limité n'a aucun impact sur les résultats. Si l'on supprime cette approximation et que l'on fait le changement de variable $X = 2 \sin(\theta'/2)$, on obtient alors l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \int_0^{\theta_d} d\theta' \sin(\theta') J_0(k_e \theta' \|\Delta\mathbf{r}\|) &\approx \int_0^{\theta_d} d\theta' \sin(\theta') J_0(k_e 2 \sin(\theta'/2) \|\Delta\mathbf{r}\|) \\ &= \int_0^{2 \sin(\theta_d/2)} dX X J_0(k_e X \|\Delta\mathbf{r}\|) \\ &= 2 \sin(\theta_d/2) \frac{J_1(k_e 2 \sin(\theta_d/2) \|\Delta\mathbf{r}\|)}{k_e \|\Delta\mathbf{r}\|} \\ &\approx \theta_d \frac{J_1(k_e \theta_d \|\Delta\mathbf{r}\|)}{k_e \|\Delta\mathbf{r}\|} \end{aligned} \quad (3.113)$$

L'algorithme de Monte Carlo estimant la cumulée $CW_d(\theta_d)$ est donc identique à l'algorithme estimant $W_d(\theta_d)$; seule la fonction de poids \hat{w} est remplacée par \hat{w}_C :

$$\hat{w}_C = 2\pi \left(\frac{k_e P(\theta_o, r_{eq})}{2\pi} \right)^2 \theta_d \frac{J_1(k_e \theta_d \|\Delta \mathbf{r}\|)}{k_e \|\Delta \mathbf{r}\|} \{1 + \exp[-(\beta_i(\mathbf{r}_1) + \beta_i(\mathbf{r}_2))] \cos[\beta_r(\mathbf{r}_1) - \beta_r(\mathbf{r}_2)] - \exp[-\beta_i(\mathbf{r}_1)] \cos[\beta_r(\mathbf{r}_1)] - \exp[-\beta_i(\mathbf{r}_2)] \cos[\beta_r(\mathbf{r}_2)]\} \quad (3.114)$$

Section efficace différentielle de diffusion aux grands angles. D'après la relation Eq. 3.88 :

$$W_d(\theta_d) \propto \int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \left| \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r} t(\mathbf{r}) h(\mathbf{r}) \right|^2 \quad (3.115)$$

avec les mêmes notations que précédemment, et

$$\begin{aligned} t(\mathbf{r}) &= \exp\{-k_e \kappa_r l^{tot}(\mathbf{r})\} \\ h(\mathbf{r}) &= \exp\{i[\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - k_e(n_r - 1) l^{tot}(\mathbf{r})]\} \end{aligned} \quad (3.116)$$

où $l^{tot}(\mathbf{r}) = l^{in}(\mathbf{r}, \mathbf{e}_i) + l^{out}(\mathbf{r}, \mathbf{e}_d)$ (voir Fig. 3.6.b). De la même manière que pour les petits angles, on exprime le module carré d'une intégrale complexe comme l'intégrale sur deux positions \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 (voir Chap. 6) :

$$\begin{aligned} \left| \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r} t(\mathbf{r}) h(\mathbf{r}) \right|^2 &= \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 t(\mathbf{r}_1) t(\mathbf{r}_2) \\ &\quad \times [\operatorname{Re}\{h(\mathbf{r}_1)\} \operatorname{Re}\{h(\mathbf{r}_2)\} + \operatorname{Im}\{h(\mathbf{r}_1)\} \operatorname{Im}\{h(\mathbf{r}_2)\}] \\ &= \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_1 \int_{\mathcal{V}_{part}} d\mathbf{r}_2 t(\mathbf{r}_1) t(\mathbf{r}_2) \cos[h(\mathbf{r}_1) - h(\mathbf{r}_2)] \end{aligned} \quad (3.117)$$

avec

$$t(\mathbf{r}_1) t(\mathbf{r}_2) = \exp\{-k_e \kappa_r \Sigma l^{tot}\} \quad (3.118)$$

et

$$\cos[h(\mathbf{r}_1) - h(\mathbf{r}_2)] = \cos\left[k_e \left(2 \sin \frac{\theta_d}{2} \hat{\mathbf{q}} \cdot \boldsymbol{\rho} - (n_r - 1) \Delta l^{tot}\right)\right] \quad (3.119)$$

où $\hat{\mathbf{q}}$ est le vecteur unitaire associé à \mathbf{q} (voir Eq. 3.70), $\boldsymbol{\rho} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$, $\Sigma l^{tot} = l^{tot}(\mathbf{r}_1) + l^{tot}(\mathbf{r}_2)$ et $\Delta l^{tot} = l^{tot}(\mathbf{r}_1) - l^{tot}(\mathbf{r}_2)$. La formulation intégrale de l'algorithme de Monte Carlo évaluant

W_d aux grands angles est donc :

$$\begin{aligned}
 W_d(\theta_d) = & \int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \\
 & \times \int_{\mathcal{V}_{part}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_1 p_{\mathbf{R}_1}(\mathbf{r}_1) \int_{\mathcal{V}_{part}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_2 p_{\mathbf{R}_2}(\mathbf{r}_2) \hat{w}
 \end{aligned} \tag{3.120}$$

avec les densités de probabilité uniforme des positions \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 du volume de la particule $p_{\mathbf{R}_{1,2}}(\mathbf{r}_{1,2}) = \frac{1}{V_{part}}$ (V_{part} étant le volume de \mathcal{V}_{part}) et où la fonction de poids est :

$$\begin{aligned}
 \hat{w} = & \left(\frac{k_e^2 V_{part}}{2\pi} \right)^2 |m_r - 1|^2 \frac{1 + \cos^2 \theta_d}{2} \exp \{ -k_e \kappa_r \Sigma l^{tot} \} \\
 & \times \cos \left[k_e \left(2 \sin \frac{\theta_d}{2} \hat{\mathbf{q}} \cdot \boldsymbol{\rho} - (n_r - 1) \Delta l^{out} \right) \right]
 \end{aligned} \tag{3.121}$$

Lorsque $\|\boldsymbol{\rho}\| > \frac{1}{k_e 2 \sin \theta_d/2}$ le terme $k_e 2 \sin \frac{\theta_d}{2} \hat{\mathbf{q}} \cdot \boldsymbol{\rho}$ domine l'argument du cosinus et le poids oscille rapidement entre -1 et 1 lorsque $\hat{\mathbf{q}} \cdot \boldsymbol{\rho}$ varie. Cette situation correspond à une partie importante du domaine d'intégration puisque nous nous plaçons dans les cas où $k_e a \gg 1$ et $\sqrt{\frac{2}{k_e a}} \lesssim 2 \sin \theta_d/2 \leq 2$. Cette oscillation rapide du poids pose des difficultés numériques qui se traduisent par des problèmes de convergence dans le cadre de la méthode de Monte Carlo et par la nécessité d'utiliser des ordres élevés dans le cadre des intégrations par quadrature. Ce problème numérique de l'évaluation des intégrales dont l'intégrande oscille rapidement est très bien identifié. Le développement et l'utilisation de l'approximation des phases stationnaires en mathématiques et en physique (approximation que nous avons utilisée à la section 3.3.1) sont d'ailleurs fortement liés avec cette difficulté. Dans la section suivante, nous utilisons le principe de l'approximation des phases stationnaires pour extraire une tendance de $W_d(\theta_d)$ aux grands angles et ainsi contourner ces problèmes numériques.

3.4.2 Tendance de la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles

Si l'on applique le principe de l'approximation des phases stationnaires de manière qualitative à l'expression de W_d Eqs. 3.120 et 3.121, on constate que la principale contribution à l'intégrale vient d'une région du domaine d'intégration telle que $\|\boldsymbol{\rho}\| < \frac{1}{k_e 2 \sin \theta_d/2}$. En effet, en dehors de cette région l'intégrande oscille rapidement autour de zéro lorsque $\boldsymbol{\rho}$ varie, de par :

- la contribution du terme $k_e 2 \sin \frac{\theta_d}{2} \hat{\mathbf{q}} \cdot \boldsymbol{\rho}$ (voir discussion précédente),
- l'éloignement de \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 : lorsque \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 sont suffisamment distants ($\|\boldsymbol{\rho}\|$ suffisamment grand) alors $k_e \Delta l^{out} \in [0, k_e a]$ et à l'opposé, pour $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_1$, on a $k_e \Delta l^{out} = 0$.

Cette zone de phase stationnaire correspond à $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_1$. Si l'on néglige les effets liés à la frontière du domaine \mathcal{V}_{part} , le volume de la zone est $\frac{4\pi}{3(k_e 2 \sin \theta_d/2)^3}$ quelle que soit la position \mathbf{r}_1 . En outre, $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_1$ (c'est-à-dire $\boldsymbol{\rho} = 0$) entraîne que $\Sigma l^{tot} = 2 l^{tot}(\mathbf{r}_1)$ et $\Delta l^{out} = 0$. On obtient ainsi la tendance :

$$W_d(\theta_d) \propto \frac{1}{(\sin \theta_d/2)^3} \frac{1 + \cos^2 \theta_d}{2} \int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \\ \times \int_{\mathcal{V}_{part}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_1 p_{\mathbf{R}_1}(\mathbf{r}_1) \exp \left\{ -k_e \kappa_r 2 l^{tot}(\mathbf{r}_1, \theta_d, \varphi_d; \theta_o, r_{eq}) \right\} \quad (3.122)$$

Dans les situations étudiées au chapitre 2, nous avons constaté que les variations du terme

$$\int_0^{\pi/2} d\theta_o p_{\Theta_o}(\theta_o) \int_{2\pi} d\varphi_d p_{\Phi_d}(\varphi_d) \int_0^\infty dr_{eq} p_{R_{eq}}(r_{eq}) \\ \times \int_{\mathcal{V}_{part}(\theta_o, r_{eq})} d\mathbf{r}_1 p_{\mathbf{R}_1}(\mathbf{r}_1) \exp \left\{ -k_e \kappa_r 2 l^{tot}(\mathbf{r}_1, \theta_d, \varphi_d; \theta_o, r_{eq}) \right\}$$

en fonction de θ_d sont négligeables devant les variations du premier terme. Nous obtenons donc en première approximation la tendance suivante pour la variation de W_d aux grands angles en fonction de θ_d :

$$W_d(\theta_d) \propto \frac{1}{(\sin \theta_d/2)^3} \frac{1 + \cos^2 \theta_d}{2} \quad (3.123)$$

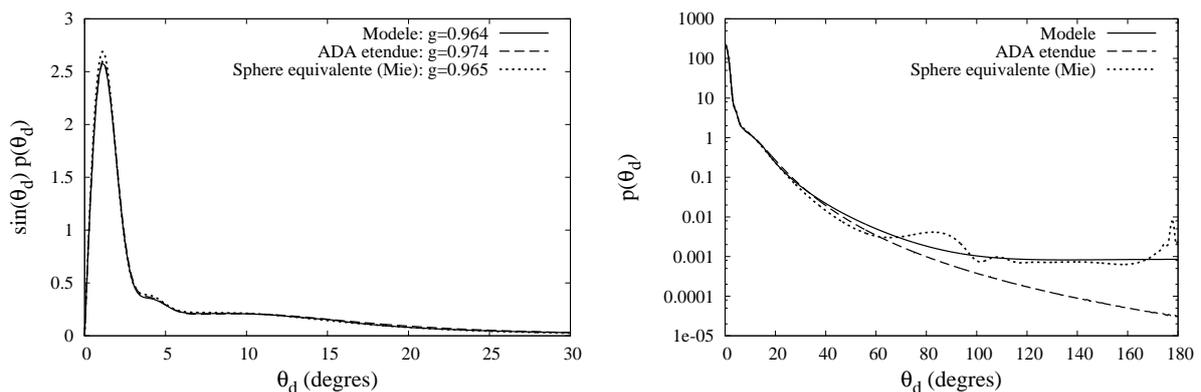
Nous remarquons qu'on retrouve cette expression mathématique en préfacteur de la solution de W_d par l'approximation de Rayleigh-Gans dans le cas des cylindres et des sphéroïdes (voir Eq. 3.33 et Eqs. 3.36 - 3.39)

3.4.3 Validation du modèle de propriétés radiatives présenté au chapitre 2 sur quelques cas tests

Nous considérons dans cette section le modèle de propriétés radiatives présenté au chapitre 2. Ce modèle correspond à l'approximation de Schiff pour les petits angles de diffusion et à la tendance qui a été obtenue à la section précédente pour les grands angles de diffusion. Les calculs de référence donnés dans cette section ont été obtenus avec le code T-Matrice disponible à www.giss.nasa.gov/staff/mmishchenko [84], qui ne permet malheureusement pas d'obtenir

des résultats pour de nombreux cas pratiques de micro-organismes d'intérêt, notamment dans le cas des micro-organismes étudiés au chapitre 2. Les quelques validations présentées dans la suite sont donc obtenues pour des paramètres (taille, longueur d'onde, élongation, indice de réfraction) qui correspondent aux limites d'utilisation du code T-Matrice [84] lorsque l'on souhaite s'approcher des configurations traitées dans notre étude. Le nombre de configurations pertinentes pour l'étude des micro-organismes photosynthétiques que nous pouvons traiter par cette méthode est donc extrêmement limité à l'heure actuelle et il faudra à l'avenir envisager d'autres approches de validation.

Cas 1 : *Chlamydomonas reinhardtii* à $\lambda_0 = 530 \text{ nm}$ (tous les paramètres sont donnés à la figure 2.9). Pour ce cas test, nous ne disposons pas de référence car le code T-Matrice ne permet pas l'obtention de résultats. Nous comparons la fonction de phase obtenue par la mise en œuvre du modèle du chapitre 2 (notée *Modèle* et représentée en trait plein) avec celles données par la sphère équivalente en volume (qui ici donne de bons résultats, voir Chap. 2, Sec. 2.4.2) et l'approximation de la diffraction anormale étendue à $[0, \pi]$ (notée *ADA étendue* sur les figures, voir discussion Chap. 2, Sec. 2.2.1) :



Cas 2 : particule sphéroïdale de type *Chlamydomonas reinhardtii*.

Distribution de taille : $\bar{r}_{eq} = 3.963 \mu m$, $s = 1.18$; $R = 0.837$; $\tilde{a} = 3.7 \mu m$ (calculé à partir de la relation $\tilde{a} = \bar{r}_{eq} R^{1/3}$, voir Eq. 2.34); $\lambda_e = 700 nm$; $n_r = 1.08$, $\kappa_r = 4 \cdot 10^{-3}$.

	T-Matrice	Modèle	Erreur relative (%)
$\sigma_a (\mu m^2)$	19.55	16.97	13.2
$\sigma_d (\mu m^2)$	105.79	101.04	4.5
$\sigma_{ext} (\mu m^2)$	125.34	118.02	5.8
α_s	0.844	0.856	1.4
g	0.976	0.970	0.6
$\sigma_{ext}^* (\mu m^2)$	22.03	19.97	9.4
α_s^*	0.112	0.150	33.29

TABLE 3.1: Comparaison des résultats obtenus avec la méthode exacte T-Matrice et avec le modèle du chapitre 2 (colonne Modèle). α_s est l'albédo de diffusion simple, g est le paramètre d'asymétrie, et les grandeurs notées * sont les propriétés du problème de transport équivalent dans lequel $g^* = 0$ (voir Chap. 4).

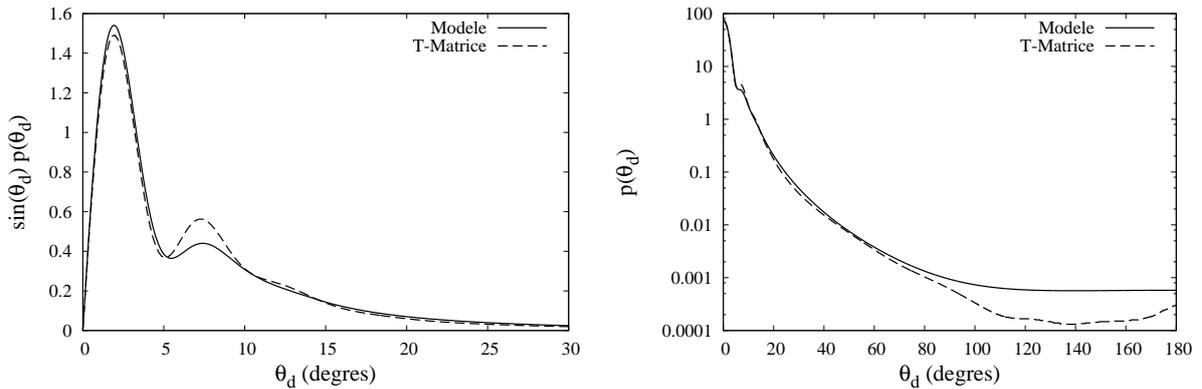


FIGURE 3.8: Fonctions de phase données par la méthode de référence T-Matrice (pointillés) et par la mise en œuvre du modèle du chapitre 2 (trait plein) correspondant aux paramètres suivants : $\theta_l = 14$ degrés; $r = 5.85 \cdot 10^{-14}$; $n = 3.39$.

Cas 3 : particule cylindrique.

Distribution de taille : $\bar{r}_{eq} = 3.963 \mu m$, $s = 1.18$; $R = 0.837$; $\tilde{a} = 3.3 \mu m$ (calculé à partir de la relation $\tilde{a} = \bar{r}_{eq} (2/3 R)^{1/3}$, voir Eq. 2.33); $\lambda_e = 750 nm$; $n_r = 1.08$, $\kappa_r = 4 \cdot 10^{-3}$.

	T-Matrice	Modèle	Erreur relative (%)
$\sigma_a (\mu m^2)$	18.53	15.90	14.2
$\sigma_d (\mu m^2)$	118.88	114.38	3.8
$\sigma_{ext} (\mu m^2)$	137.42	130.28	5.2
α_s	0.865	0.878	1.4
g	0.980	0.977	0.4
$\sigma_{ext}^* (\mu m^2)$	20.84	18.56	10.1
α_s^*	0.110	0.143	29.3

TABLE 3.2: Comparaison des résultats obtenus avec la méthode exacte T-Matrice et avec le modèle du chapitre 2 (colonne Modèle). α_s est l'albédo de diffusion simple, g est le paramètre d'asymétrie, et les grandeurs notées * sont les propriétés du problème de transport équivalent dans lequel $g^* = 0$ (voir Chap. 4).

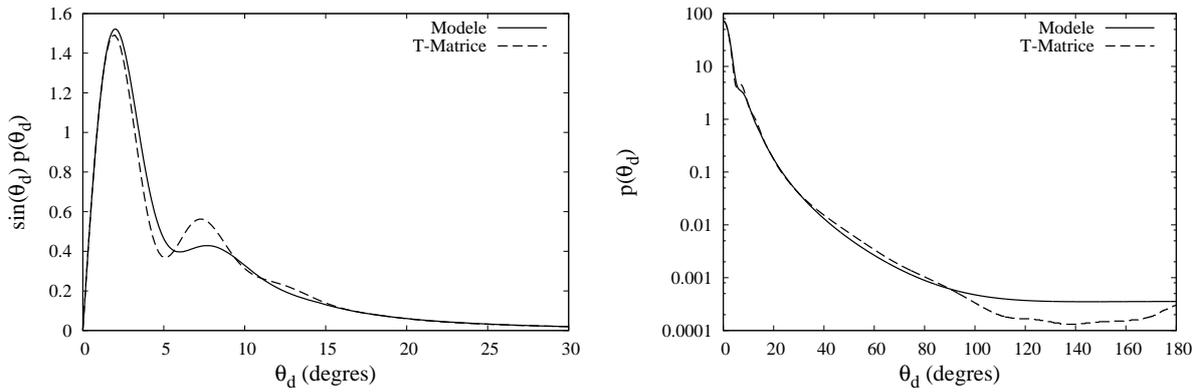


FIGURE 3.9: Fonctions de phase données par la méthode de référence T-Matrice (pointillés) et par la mise en œuvre du modèle du chapitre 2 (trait plein) correspondant aux paramètres suivants : $\theta_l = 15.4$ degrés; $r = 4.06e - 14 \cdot 10^{-14}$; $n = 3.58$.

3.5 Synthèse et perspectives

Au cours du présent chapitre, nous avons présenté l'état des lieux de notre appréhension actuelle du problème d'électromagnétisme de la diffusion pour le calcul et l'analyse des propriétés radiatives de particules présentant un faible contraste d'indice avec leur environnement, en portant bien sûr une attention toute particulière à l'approximation de Schiff qui est un maillon crucial de notre chaîne méthodologique pour l'étude des micro-organismes photosynthétiques (qui fait l'objet du chapitre précédent). Nous ne nous contentons pas ici d'une simple synthèse de résultats préexistants, mais nous nous attachons au contraire à expliciter de manière détaillée les formalismes des approximations de Born, de Rayleigh-Gans et de la diffraction anormale - bien connues dans le domaine de la diffusion des ondes électromagnétiques - ainsi que le formalisme de l'approximation de Schiff qui a été développée dans un contexte différent, à savoir l'analyse de la diffusion d'électrons de haute énergie par des noyaux lourds. Une contribution importante de notre travail est à ce niveau de proposer une transposition astucieuse du formalisme de cette dernière au cas de la diffusion des ondes électromagnétiques. Il apparaît alors que l'approximation de Schiff transcrite à l'électromagnétisme correspond aux mêmes critères de validité que l'approximation de la diffraction anormale (critères particulièrement adaptés à l'étude des micro-organismes). Cependant, si l'approximation de la diffraction anormale aboutit, via une dérivation simple, à une expression de l'amplitude de diffusion, elle est mise à mal en dehors de la région des petits angles de diffusion. C'est ici que l'introduction de l'approximation de Schiff prend tout son sens, puisqu'elle permet d'aboutir à une expression de la section efficace différentielle de diffusion pour tous les angles (en distinguant deux régimes angulaires).

La mise en œuvre numérique de l'approximation de Schiff est aussi une préoccupation centrale du présent chapitre. La méthode de résolution que nous proposons consiste à résoudre par un algorithme de Monte Carlo les intégrales multiples qui apparaissent dans les expressions des sections efficaces à évaluer, celles sur les tailles et les orientations comprises. Cette proposition originale se base sur les développements méthodologiques avancés que nous présentons au chapitre 6 pour le traitement des non-linéarités par la méthode de Monte Carlo (non-linéarités qui correspondent ici au module carré de l'amplitude complexe de diffusion). Il est important de souligner que le développement de cette méthode de résolution efficace est rendu possible grâce au travail de formulation que nous avons mené tout au long de ce chapitre, et qu'il en découle une diminution significative des temps de calcul en comparaison avec les méthodes de quadratures usuelles. De plus, nous avons pris soin de développer des raisonnements qui soient tout à fait compatibles avec le traitement de formes quelconques, et la perspective de la mise en œuvre de nos algorithmes au sein de l'environnement de

développement EDStar [21] (voir Chap. 5) permettra à terme une gestion aisée des aspects géométriques liés à l'étude de micro-organismes de forme complexe⁴. Cependant, un verrou numérique persiste : l'évaluation de la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles pose toujours des problèmes de convergence numérique qui nécessiteraient une étude à part entière portant sur l'optimisation de nos algorithmes de Monte Carlo, notamment grâce à des approches de type zéro-variance (voir Chap. 5). Notre pratique de ces approches se base sur une bonne compréhension de la physique sous-jacente au problème mathématique à résoudre, impliquant entre autres la construction de modèles approchés. C'est dans cette perspective que nous avons ici apporté le plus grand soin à dégager autant que possible un sens physique aux hypothèses formulées et aux expressions mathématiques résultantes. Cela nous permet notamment de proposer un modèle dégradé de la section efficace différentielle de diffusion aux grands angles (qui est pour l'instant directement utilisé au chapitre 2).

Enfin, les quelques cas tests que nous présentons à la section 3.4.3 visent à l'évaluation de la méthodologie proposée vis-à-vis de simulations de référence, dans les limites d'applicabilité actuelles du code T-Matrice employé à cet effet. Les résultats de validation ainsi obtenus témoignent de la pertinence de la méthode développée, ce qui constitue une motivation forte pour l'approfondissement de notre travail. Mais compte tenu du nombre limité de configurations d'intérêt qui peuvent à l'heure actuelle être traitées par simulation T-Matrice (vis-à-vis de l'étude des micro-organismes photosynthétiques), la principale conclusion que nous tirons ici est la nécessité d'envisager à l'avenir d'autres approches de validation, qu'elles soient numériques, comme ici, ou expérimentales, comme dans [106].

Le travail présenté au sein du présent chapitre permet donc d'apporter une solution pratique efficace à la problématique du calcul des propriétés radiatives des micro-organismes photosynthétiques, tout en envisageant des perspectives de recherche à moyen et long terme portant notamment sur la résolution des équations de l'électromagnétisme par la méthode de Monte Carlo.

4. Les solutions de l'approximation de Schiff qui sont ici présentées dépendent principalement de la géométrie au travers des longueurs de traversée de la particule. Dans le cas du cylindre, du sphéroïde et des formes quadratiques en général, ces longueurs sont analytiques. Dès que l'on considère des formes plus complexes qui font intervenir des puissances non-entières ou supérieures à 2 dans leur équation paramétrique (super-quadriques), ou encore si l'on considère une forme quelconque définie par un maillage (triangulation), les longueurs de traversée doivent être évaluées numériquement. La librairie Mcm3D de l'environnement de développement EDStar a justement pour vocation (entre autres) de faciliter l'évaluation de ces calculs géométriques.

Chapitre 4

Analyse du transfert en diffusion multiple dans les photobioréacteurs

Résumé :

Ce chapitre est une transition importante dans le manuscrit ; il introduit la diffusion multiple, son traitement par différentes approches complémentaires et son analyse au sein des photobioréacteurs. Le lecteur novice en rayonnement, mais désireux d'en comprendre la place dans l'étude du procédé trouvera, en début de chapitre, les principales définitions de la physique du transfert radiatif ainsi qu'une présentation des différents points de vue adoptés pour sa description. L'exposé se poursuit par une présentation didactique du formalisme intégral qui sera adopté dans toute la suite du manuscrit. Il se concentre enfin sur l'utilisation d'un ensemble d'images physiques en transport de photons et précise le sens de différentes approximations, notamment l'approximation de la diffusion simple et l'approximation P1 qui apparaissent pertinentes pour l'analyse du transfert radiatif en diffusion multiple dans les photobioréacteurs. L'ensemble des discussions est articulé autour de l'étude d'un photobioréacteur torique qui correspond à une géométrie quasi-monodimensionnelle simple et sert de dispositif de référence pour de nombreuses études expérimentales. Le lecteur familier avec tous les concepts présentés ici pourra se contenter de lire les différentes parties applicatives, se faisant ainsi une idée des questions soulevées spécifiquement par la prise en compte de la diffusion multiple dans l'objet d'étude photobioréacteur.

4.1 Introduction

Les chapitres 2 et 3 mettent en lumière un premier saut de complexité lié à la prise en compte de la diffusion dans la modélisation des photobioréacteurs. Au terme de ces deux chapitres, les propriétés radiatives des micro-organismes sont disponibles et nous pouvons maintenant mener à bien une analyse du procédé, dans le même esprit qu’au chapitre 1, mais en incluant cette fois le phénomène de diffusion multiple de la lumière par les micro-organismes. Le saut de complexité par rapport au chapitre 1 est encore une fois important car le phénomène de diffusion multiple rend plus complexe le suivi des directions de propagations de la lumière lors de la traversée du milieu. Cependant, comme nous avons vu au chapitre 2 lors de la validation des propriétés radiatives sur des expériences de spectroscopie, la prise en compte de la diffusion multiple améliore très significativement la description des spectres de transmission en comparaison avec un modèle d’absorption pure par une solution de pigments. L’analyse quantitative de certains comportements essentiels à une réflexion sur l’optimisation des photobioréacteurs solaires et leur utilisation à grande échelle nécessite donc de prendre en compte le phénomène de diffusion. A titre d’exemple, nous nous intéresserons à la fin du présent chapitre à l’effet de l’incidence du rayonnement solaire sur une technologie à captation directe telle que le concept AlgoFilm Fig. 1.1 (Chap. 1). Outre le fait que la puissance captée par le photobioréacteur diminue avec le cosinus de l’angle d’incidence (comme dans la plupart des technologies solaires), cette incidence a aussi un impact significatif sur la répartition des champs radiatifs dans le volume réactionnel. Nous verrons que même en assurant une situation optimale à $\gamma = 1$ grâce à un ajustement de la concentration en biomasse, et en travaillant à puissance captée constante (quelle que soit l’incidence), la productivité du photobioréacteur chute avec l’augmentation de l’angle d’incidence. Une thèse se déroulant au GEPEA aborde entre autres l’analyse de cet effet [109].

L’objectif de ce chapitre est de mener à bien une analyse du transfert radiatif en diffusion multiple dans la configuration radiative du photobioréacteur torique présenté au chapitre 1. Dans un premier temps, nous nous concentrons sur la description mésoscopique associée à l’équation de transfert radiatif. Puis, nous introduirons l’approximation de la diffusion simple et les approximations macroscopiques (surtout l’approximation P1), qui seront mises à profit pour l’analyse d’un photobioréacteur torique. Enfin, l’impact de la modélisation des phénomènes de diffusion sur l’estimation de la productivité des photobioréacteurs sera abordé. L’ensemble de ces discussions s’articule autour de la configuration du photobioréacteur torique Fig. 4.1, la géométrie complexe du photobioréacteur DiCoFluV Fig. 1.2 sera abordée au chapitre 5. Des incidences collimatée et lambertienne seront tour à tour considérées dans les discussions, ce qui correspond à la composante directe et à la composante

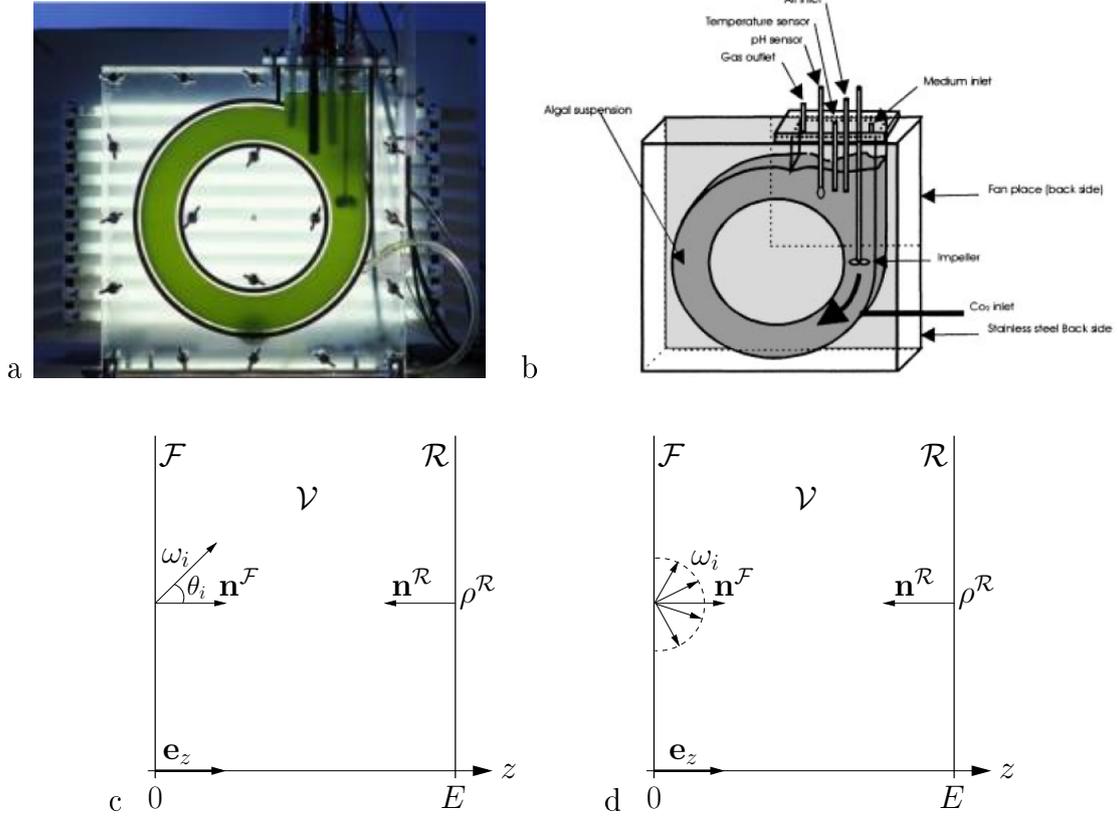


FIGURE 4.1: Configuration du photobioréacteur torique présenté au chapitre 1. a : Photographie d'une version transparente du réacteur. b : Représentation schématique d'après [22]; l'épaisseur E du volume réactionnel est de 4 cm . c & d : Schémas de la configuration radiative modélisée; géométrie monodimensionnelle d'abscisse z ; le volume réactionnel \mathcal{V} est contenu entre $z = 0$ et $z = E$; la surface en $z = 0$ est non-réfléchissante, la surface en $z = E$ est réfléchissante spéculaire de réflectivité ρ^E ; \mathbf{n}^E est la normale de la surface en $z = E$; la concentration C_x est homogène; il n'y a pas d'émission dans \mathcal{V} ; la surface en $z = 0$ émet soit, c : un rayonnement collimaté suivant la direction ω_i faisant un angle θ_i par rapport à sa normale \mathbf{n}^0 soit, d : un rayonnement Lambertien (diffus); la densité surfacique de flux incidente est noté q_Γ . Dans l'ensemble des discussions de ce chapitre nous considérerons la situation suivante (voir l'encart 1 du chapitre 1 pour les unités utilisées) : $E = 4\text{ cm}$, $q_\Gamma = 500\ \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, $C_x = 0.55\ \text{kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$, $\rho^E = 0.54$, section efficace d'absorption $\sigma_a = 145\ \text{m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, section efficace de diffusion $\sigma_d = 922\ \text{m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$ et la fonction de phase de *Chlamydomonas reinhardtii* à $\lambda_0 = 430\ \text{nm}$, paramètre d'asymétrie $g = 0.945$ (résultats obtenus par la démarche du chapitre 2). Cette situation correspond à une fraction volumique éclairée γ égale à 1 pour la loi de couplage cinétique de *Chlamydomonas reinhardtii* (annexe B) dans le cas d'une incidence collimatée normale, $\gamma = 0.8$ pour une incidence diffuse (voir la définition de γ à la section 1.2.5.2). Tout changement de paramètre sera signalé.

diffuse du rayonnement solaire. Tout au long de notre étude, la concentration en biomasse C_x est homogène dans le volume réactionnel \mathcal{V} (sous l'hypothèse du mélange parfait) et les phénomènes d'émission dans \mathcal{V} sont négligeables.

4.2 Equation de transfert radiatif

L'objectif de cette section est d'introduire un certain nombre d'images et de notions associées à la modélisation des problèmes de transport dans les milieux participants, c'est-à-dire dans les milieux absorbant et diffusant. Ces notions sont bien connues dans la communauté du transfert radiatif [110, 111, 112] et les lecteurs familiers avec ces concepts pourront passer cette section.

4.2.1 Description mésoscopique

L'équation de transfert radiatif est l'équation d'évolution de la fonction de distribution $f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$ qui est le descripteur mésoscopique du système. Il s'agit de l'équation de transport des photons. Elle correspond à une simplification de l'équation de Boltzmann (dérivée par Ludwig Boltzmann en 1872 pour décrire un gaz dilué classique de particules identiques) rendue possible par deux spécificités des photons en tant que particules :

1. les photons se propagent tous avec une vitesse localement identique, la vitesse de la lumière c dans le milieu,
2. ils n'interagissent pas les uns avec les autres mais seulement avec le milieu (ici avec les micro-organismes), on parle alors de *transport linéaire*.

La modélisation mésoscopique est une description statistique adaptée aux systèmes complexes comportant un grand nombre de degrés de liberté, comme un ensemble de photons se propageant dans un milieu diffusant, les fluides, les plasmas, etc. Elle est basée sur l'hypothèse de la répétition d'un grand nombre d'événements statistiques au sein du système, ce qui est vérifié, soit par la présence d'un grand nombre de particules, soit par la réplication d'un grand nombre d'"expériences" (par exemple des diffusions) par une seule particule (ces deux conditions étant équivalentes dans le cadre du transport linéaire). En outre, les équations de type Boltzmann, dont l'équation de transfert radiatif, sont particulièrement adaptées à la description des situations de non-équilibre (y compris lointain) car toute l'information sur la distribution des vitesses est modélisée. Nous verrons que cette propriété est partic-

ulièrement intéressante pour notre étude radiative car de telles situations de non-équilibre sont couramment rencontrées dans les photobioréacteurs.

La grandeur descriptive d'un modèle mésoscopique de transfert radiatif est la fonction de distribution $f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$ des photons. A une normalisation près, $f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$ est au temps t la densité de probabilité de photons dans l'espace des phases $\{\mathcal{D}_x, \mathcal{D}_\omega\}$. L'espace des phases est un espace à cinq dimensions : trois pour l'espace géométrique \mathcal{D}_x qui dans notre étude est le volume réactionnel \mathcal{V} , et deux pour l'espace des directions de propagation \mathcal{D}_ω qui est

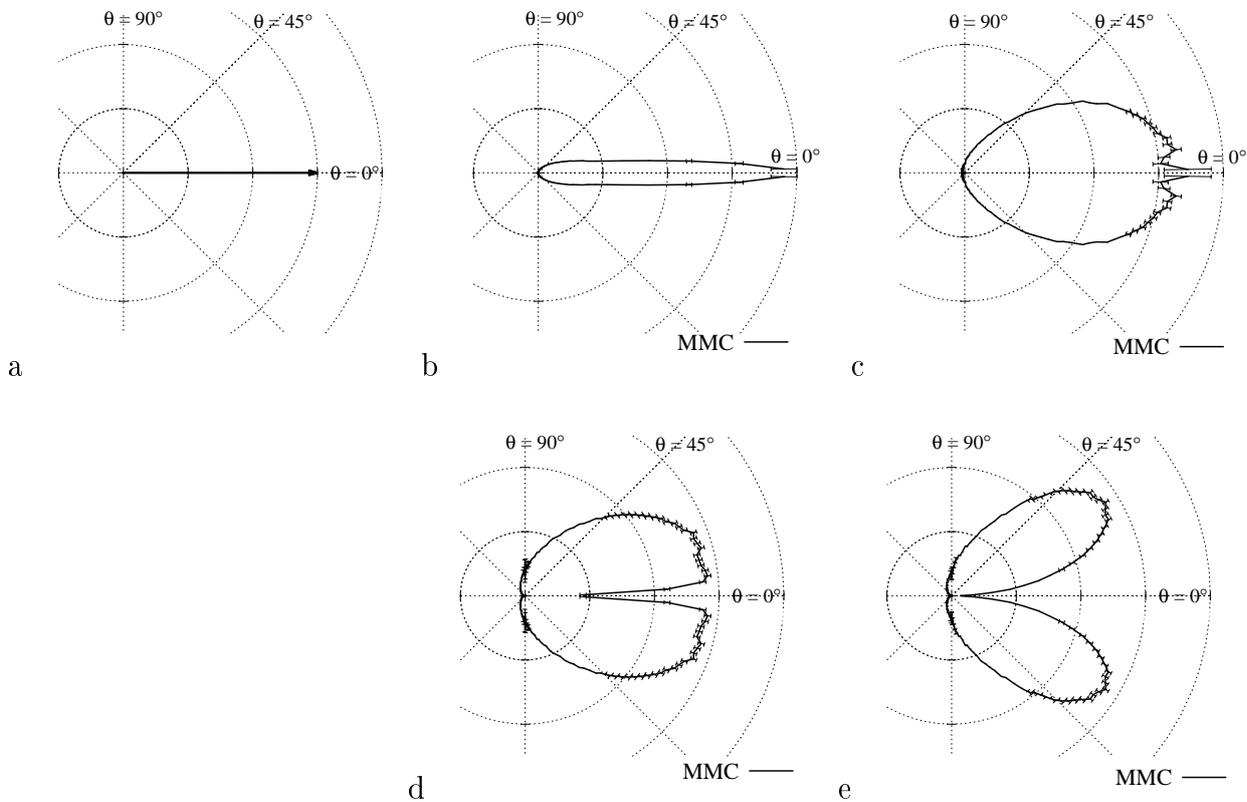


FIGURE 4.2: Fonction de distribution $f(z_0, \theta, t)$ à l'abscisse $z_0 = 3 \text{ cm}$ du photobioréacteur torique de la figure 4.1 où $\rho^R = 0$. a : En l'absence de diffusion ; incidence collimatée normale. b : Avec diffusion ; incidence collimatée normale. c : Avec diffusion ; incidence diffuse. d & e : Nombre de photons $f(z_0, \theta, t) 2\pi \sin\theta d\theta dz$ se propageant à l'instant t avec un angle θ par rapport à \mathbf{e}_z , à $d\theta$ près, dans l'élément dz autour de l'abscisse z_0 . d : Avec diffusion ; incidence collimatée normale. e : Avec diffusion ; incidence diffuse. Résultats obtenus par la méthode de Monte Carlo (MMC, voir Chap. 5) en construisant un histogramme des angles de propagation θ pour des classes de largeur 1.8° . Les écarts-types des estimateurs sont donnés en barres d'erreurs.

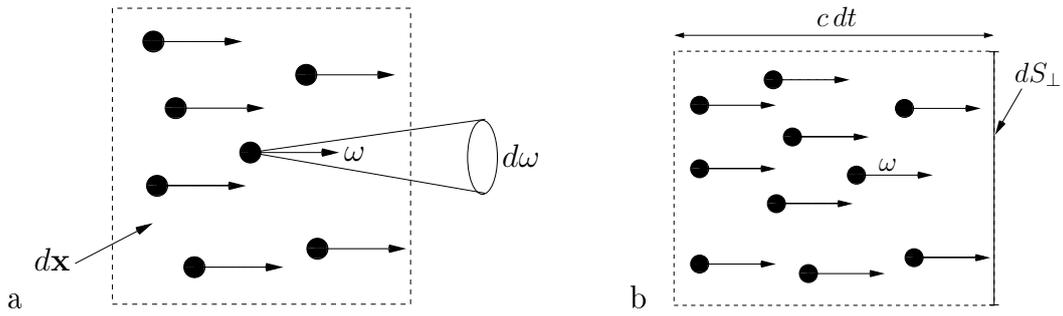


FIGURE 4.3: Volume de l'espace des phases. a : Elément de volume. b : Définition de la luminance à partir de la fonction de distribution. La quantité d'énergie rayonnante δQ qui traverse pendant dt la surface dS_{\perp} est égale au nombre de photons se propageant dans la direction ω dans le volume $c dt dS_{\perp}$ multiplié par l'énergie de chaque photon.

l'angle solide total (noté 4π par la suite). La fonction de distribution f est représentée sur la figure 4.2 pour l'abscisse $z_0 = 3 \text{ cm}$ du photobioréacteur torique Fig. 4.1. De par les symétries du problème, f ne dépend ici que de l'abscisse z (bien que l'espace géométrique \mathcal{V} dans lequel les photons se propagent soit tridimensionnel) et de l'angle θ entre la direction ω et le vecteur \mathbf{e}_z (bien que les photons se propagent dans toutes les directions). Pour une incidence collimatée normale et en l'absence de diffusion (cas de la modélisation en absorption pure du chapitre 1), les photons se propagent tous dans la même direction : la direction d'incidence ω_i . Cela correspond à la situation de la figure 4.2.a où $f(z_0, \theta, t)$ est nulle dans toutes les directions sauf $\omega = \omega_i$. Lorsque l'on considère les phénomènes de diffusion, comme cela est représenté sur les figures 4.2.b et c, les photons sont déviés de leur trajectoire au fur et à mesure qu'ils sont diffusés par les micro-organismes : ils arrivent en z_0 avec différents angles de propagation. Il est souvent plus intuitif de raisonner sur la quantité $f(\mathbf{x}, \omega, t) d\mathbf{x} d\omega$, qui représente à l'instant t , dans l'élément de volume $d\mathbf{x}$ autour de la position \mathbf{x} , le nombre de photons se déplaçant avec une direction contenue dans l'élément d'angle solide $d\omega$ autour de ω (voir Fig. 4.3.a). Compte tenu des symétries du photobioréacteur torique, on représente aux figures 4.2.d et e la quantité $f(z_0, \theta, t) 2\pi \sin \theta d\theta dz$ qui est le nombre de photons se propageant à l'instant t avec un angle θ par rapport à \mathbf{e}_z , à $d\theta$ près¹, dans l'élément dz autour de z_0 . Il convient de remarquer que les distributions angulaires observées sur ces figures sont dues à la conjonction de la variation de $f(z_0, \theta, t)$ et de la dépendance de l'élément $2\pi \sin \theta d\theta$ par rapport à θ . Notamment, en $\theta = 0$, f est maximum mais l'élément d'angle solide est nul.

1. Si la direction de propagation ω est définie par l'angle θ par rapport à \mathbf{e}_z et par l'angle φ du plan perpendiculaire à \mathbf{e}_z , alors $d\omega = d\varphi \sin \theta d\theta$. En intégrant sur tous les φ , on obtient $2\pi \sin \theta d\theta$.

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, les propriétés de diffusion et d'absorption des photons dépendent de leur fréquence ν . Il convient donc de distinguer les photons du système en fonction de leur appartenance à un élément de fréquence $d\nu$ de la gamme spectrale étudiée. La fonction de distribution dépend alors, en plus de \mathbf{x} , $\boldsymbol{\omega}$ et t , de la variable ν . Cette dépendance fonctionnelle est en général notée $f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$ (plutôt que $f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, \nu, t)$) afin de spécifier son caractère particulier : dans le cadre de la diffusion élastique (ce qui est le cas dans notre étude), aucun opérateur de l'équation de transfert radiatif ne fait intervenir la fréquence (seules les propriétés radiatives sont fonction de ν) et les équations d'évolution des f_ν sont donc indépendantes. Cependant, la fréquence du rayonnement est une dimension du problème, au même titre que l'espace des phases, et $f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) d\mathbf{x} d\boldsymbol{\omega} d\nu$ est à l'instant t , dans l'élément de volume de l'espace des phases $d\mathbf{x}d\boldsymbol{\omega}$ autour de $(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$, le nombre de photons ayant une fréquence contenue dans l'élément $d\nu$ autour de ν .

La grandeur mésoscopique décrivant le rayonnement en un point de l'espace des phases est généralement, dans la communauté des sciences pour l'ingénieur, la luminance plutôt que la fonction de distribution. La luminance $L_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$ à la position \mathbf{x} , dans la direction $\boldsymbol{\omega}$, à la fréquence ν et à l'instant t s'exprime en $W \cdot m^{-2} \cdot sr^{-1} \cdot Hz^{-1}$. C'est une puissance par unité de surface normale à la direction $\boldsymbol{\omega}$, par unité d'angle solide et par unité de fréquence. Afin de faire le lien entre cette grandeur et la fonction de distribution, considérons la quantité d'énergie rayonnante δQ qui traverse pendant dt la surface dS_\perp (perpendiculaire à $\boldsymbol{\omega}$) dans la direction $\boldsymbol{\omega}$:

$$\delta Q = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu L_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) dt d\boldsymbol{\omega} dS_\perp \quad (4.1)$$

où $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ est la plage spectrale considérée. Cette quantité est aussi égale au nombre de photons se propageant avec la direction $\boldsymbol{\omega}$ dans le volume $dS_\perp c dt$ (voir Fig. 4.3.b), multiplié par leur énergie :

$$\delta Q = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu h\nu \times f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) dS_\perp c dt d\boldsymbol{\omega} \quad (4.2)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le milieu, $h\nu$ est l'énergie d'un photon de fréquence ν et $f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) dS_\perp c dt d\boldsymbol{\omega} d\nu$ est le nombre de photons de fréquence ν , à $d\nu$ près, et de direction $\boldsymbol{\omega}$, à $d\boldsymbol{\omega}$ près, dans le volume $dS_\perp c dt$. On obtient ainsi la relation suivante entre f et L :

$$L_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) = c h\nu f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \quad (4.3)$$

Notre étude des couplages cinétiques dans les photobioréacteurs se base sur des quantités exprimées en nombre de photons plutôt que sur des grandeurs énergétiques (voir encart 1 Chap. 1). On s'intéressera donc tout particulièrement au flux de photons \hat{L}_ν par unité de

surface normale à $\boldsymbol{\omega}$, par unité d'angle solide et par unité de fréquence :

$$\hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) = \frac{L_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)}{h\nu} = c f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \quad (4.4)$$

Malgré ce changement d'unité, nous continuons à appeler \hat{L} la luminance.

A partir de ces définitions, il est possible de retrouver les grandeurs macroscopiques usuelles. L'irradiance $G_\nu(\mathbf{x}, t)$ est l'intégrale des luminances incidentes en \mathbf{x} dans toutes les directions :

$$G_\nu(\mathbf{x}, t) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} L_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \quad (4.5)$$

De manière identique, l'irradiance \hat{G} exprimée en nombre de photons est :

$$\hat{G}_\nu(\mathbf{x}, t) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \quad (4.6)$$

La vitesse locale $\mathcal{A}(\mathbf{x}, t)$ d'absorption des photons est la grandeur radiative macroscopique sur laquelle est basée la loi de couplage cinétique que nous utilisons dans ce mémoire (voir le chapitre 1 et l'annexe B). Il s'agit du nombre de photons absorbés à la position \mathbf{x} du milieu réactionnel, par unité de temps et par unité de micro-organisme :

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}, t) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \sigma_{a,\nu} \hat{G}_\nu(\mathbf{x}, t) \quad (4.7)$$

Afin d'associer à $\mathcal{A}(\mathbf{x}, t)$ une image physique supplémentaire à celles déjà développées au chapitre 1, il est intéressant de considérer des propriétés d'absorption grises ($\sigma_{a,\nu} \equiv \sigma_a$). La dépendance spectrale ne porte alors que sur l'irradiance et il vient (voir Eqs. 4.6 et 4.4) :

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}, t) = \sigma_a \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \hat{G}_\nu(\mathbf{x}, t) = c \sigma_a \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) = c \sigma_a \eta(\mathbf{x}, t) \quad (4.8)$$

où $\eta(\mathbf{x}, t)$ est la densité de photons, c'est-à-dire le nombre de photons par unité de volume à la position \mathbf{x} (indépendamment de leur direction de propagation et de leur fréquence). Une autre grandeur macroscopique très utilisée en rayonnement est le vecteur densité surfacique de flux énergétique $\mathbf{j}_{R,\nu}(\mathbf{x}, t)$ à la fréquence ν

$$\mathbf{j}_{R,\nu}(\mathbf{x}, t) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} L_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \boldsymbol{\omega} \quad (4.9)$$

qui est défini tel que la densité surfacique de flux énergétique φ_ν traversant une surface de normale \mathbf{n} en \mathbf{x} soit $\varphi_\nu(\mathbf{x}, t) = \mathbf{j}_{R,\nu}(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{n}$. Son équivalent exprimé en nombre de photons

est le vecteur densité surfacique de flux

$$\mathbf{j}_\nu(\mathbf{x}, t) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \boldsymbol{\omega} \quad (4.10)$$

qui est défini tel que la densité surfacique de flux q_ν (nombre de photons par unité de temps, par unité de fréquence et par mètre carré) à travers une surface de normale \mathbf{n} en \mathbf{x} soit $q_\nu(\mathbf{x}, t) = \mathbf{j}_\nu(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{n}$.

On définit la fonction de distribution $f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$ qui décrit les photons du système indépendamment de leur fréquence :

$$f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \quad (4.11)$$

où $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ est la gamme spectrale étudiée. A partir de cette définition, la luminance intégrée sur la gamme spectrale $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ s'écrit

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) \quad (4.12)$$

l'irradiance exprimée en nombre de photons par unité de surface et par unité de temps s'écrit

$$\hat{G}(\mathbf{x}, t) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \hat{G}_\nu(\mathbf{x}, t) \quad (4.13)$$

et la densité surfacique de flux intégrée sur $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ s'écrit

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \mathbf{j}_\nu(\mathbf{x}, t) \quad (4.14)$$

Dans la suite de ce mémoire, ces grandeurs intégrées sur la gamme spectrale et les densités fréquentielles correspondantes sont appelées par le même nom, seules les notations changent de par la présence (ou l'absence) de l'indice ν .

RÉSUMÉ :

L'étude des photobioréacteurs implique généralement de travailler avec les grandeurs suivantes, exprimées en nombre de photons (où la variable temporelle est omise dans les notations) :

La luminance

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = c f(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.15)$$

et la densité fréquentielle correspondante

$$\hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = c f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.16)$$

pour la description mésoscopique. L'irradiance

$$\hat{G}(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.17)$$

et sa densité fréquentielle

$$\hat{G}_\nu(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.18)$$

ainsi que le vecteur densité surfacique de flux

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \boldsymbol{\omega} \quad (4.19)$$

et sa densité fréquentielle

$$\mathbf{j}_\nu(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \boldsymbol{\omega} \quad (4.20)$$

pour la description macroscopique. La vitesse spécifique locale d'absorption des photons est la grandeur utilisée pour la modélisation des couplages cinétiques à l'échelle des micro-organismes. Elle s'écrit :

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \sigma_{a,\nu} \hat{G}_\nu(\mathbf{x}) \quad (4.21)$$

où $\sigma_{a,\nu}$ est la section efficace d'absorption.

Les descripteurs macroscopiques correspondent à une intégration des descripteurs mésoscopiques sur l'espace des directions : l'irradiance est le moment d'ordre 0 de la distribution angulaire des luminances et le vecteur densité surfacique de flux est son moment d'ordre 1. Cette prise de moyenne entraîne la perte d'une partie importante de l'information sur les directions de propagation et ramène le problème à un nombre de dimensions souvent plus simple à penser et à résoudre. De plus, les descripteurs macroscopiques correspondent aux grandeurs utilisées habituellement dans la pratique de modélisation de l'ingénieur (comme ici avec la vitesse spécifique locale d'absorption des photons). La construction d'un modèle macroscopique consiste en l'écriture d'un jeu d'équations fermé portant sur les moments de la distribution des vitesses de propagation des particules. En mécanique des fluides, cela correspond par exemple à l'équation de Navier-Stokes. Les modèles radiatifs macroscopiques les plus courants décrivent le transfert de rayonnement au travers d'équations du type équation de la chaleur ou de la conduction (voir l'approximation de Rosseland et l'approximation P1). Ces descriptions sont construites autour d'images associées à des situations de proche équilibre, mais alors qu'en mécanique des fluides les nombres de Knudsen sont en général suffisamment faibles pour que cette hypothèse soit vérifiée, il est fréquent que cela ne soit pas le cas en transfert radiatif, et notamment dans les photobioréacteurs. Cependant, les approximations macroscopiques permettent une analyse basée sur des images physiques familières (telles que la conduction par exemple) et leur utilisation correspond généralement à des temps de calcul très courts. Ainsi, on cherche souvent à se ramener à ces descriptions, même dans des situations qui peuvent paraître très peu adaptées (situations de non-équilibre lointain). Il convient alors de tirer profit de la connaissance du système afin d'utiliser les approximations macroscopiques de manière pertinente (voir la discussion sur l'approximation P1 à la section 4.5).

A l'opposé, la description microscopique consiste à conserver à chaque instant toute l'information attachée à chaque particule composant le système. La trajectoire $\mathbf{x}_i(t)$ de chacune des particules est suivie. La vitesse de chaque particule est la dérivée temporelle de $\mathbf{x}_i(t)$.

Il est intéressant de comparer les caractéristiques du point de vue mésoscopique à celles des descriptions microscopiques et macroscopiques. Comme en macroscopique, le descripteur mésoscopique est une grandeur continue et n'est pas directement associé à chaque particule du système. Cependant, les informations en terme de position et de vitesse de particules existent en tant que variables indépendantes (\mathbf{x} et $\boldsymbol{\omega}$) au travers de la fonction de distribution qui s'interprète comme une densité de probabilité de présence dans l'espace des phases. Le caractère individuel de la description microscopique est perdu et le point de vue devient statistique.

Bien qu'il soit possible de classer les trois descriptions par la quantité d'informations sur le système, cela ne signifie pas pour autant qu'un point de vue soit plus intéressant qu'un autre. La question d'une description microscopique ne se pose pas en transfert radiatif mais même en imaginant qu'il n'y ait pas de limites techniques sur les possibilités de calcul et qu'il soit possible de disposer de l'ensemble des trajectoires des photons au travers d'une approche microscopique, il serait difficile d'analyser ce nombre important d'informations et donc d'appréhender la physique à l'échelle du système. En ce sens, les approches macroscopiques apportent un point de vue à l'échelle du système qui est approprié à la compréhension et à l'analyse des photobioréacteurs. La description mésoscopique apparaît à ce niveau comme ayant aussi un intérêt propre. D'une part, elle bénéficie de la possibilité, comme en microscopique, de construire des modèles en intégrant la physique à l'échelle de la particule. Ceci permet en particulier d'intégrer les phénomènes d'émission, de diffusion, d'absorption, de réflexion et de réfraction des photons, en se basant sur des images corpusculaires complètement intuitives. D'autre part, la description mésoscopique résultant d'une première prise en compte des effets collectifs (point de vue statistique), elle laisse la possibilité d'un premier niveau d'analyse complémentaire du niveau macroscopique. Mais surtout, l'échelle mésoscopique permet de modéliser les transferts radiatifs avec une très bonne précision, notamment dans les situations où les approximations macroscopiques échouent.

Une grande partie du travail de modélisation et d'analyse présenté dans ce mémoire a été réalisée en mettant à profit conjointement les images des descriptions mésoscopique et macroscopique. Un exemple représentatif en est donné au chapitre 5 où la méthode de Monte Carlo (qui s'appuie sur le point de vue mésoscopique) et l'approximation macroscopique P1 se mêlent autour d'une question d'optimisation numérique. Au cours du présent chapitre ces deux échelles de description sont utilisées afin de construire des images physiques et un intuitif nécessaire à l'optimisation radiative des photobioréacteurs.

4.2.2 Forme locale (ou différentielle) de l'équation de transfert radiatif

Les variations temporelles des conditions de culture qui sont susceptibles d'influencer le transfert radiatif dans un photobioréacteur sont principalement de deux types :

1. la variation de l'incidence et de l'intensité du rayonnement solaire capté,
2. l'évolution de la concentration et de la composition de la biomasse, notamment la composition pigmentaire qui influence fortement les propriétés radiatives (voir Chap 2).

Ces régimes transitoires sont associés à des temps caractéristiques beaucoup plus longs que le temps caractéristique d'établissement d'un régime stationnaire au niveau du transfert radiatif. Dans l'ensemble de ce mémoire, le régime stationnaire pour le transfert radiatif sera donc considéré. Pour autant, cela ne nous prive pas des images temporelles associées à la propagation des photons dans le milieu (voir l'encart 1). Dans ces conditions, l'équation de transfert radiatif, qui est l'équation intégral-différentielle régissant l'évolution de la fonction de distribution f_ν , s'écrit :

$$c \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_x f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -c k_{ext,\nu} f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + c \alpha_{s,\nu} k_{ext,\nu} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega,\nu}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (4.22)$$

avec $k_{ext,\nu}$ le coefficient d'extinction du milieu, $k_{ext,\nu} = k_{a,\nu} + k_{d,\nu}$ où $k_{a,\nu}$ et $k_{d,\nu}$ sont respectivement les coefficients d'absorption et de diffusion, $\alpha_{s,\nu}$ est l'albédo de diffusion simple $\alpha_{s,\nu} k_{ext,\nu} = k_{d,\nu}$, $p_{\Omega,\nu}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}')$ est la fonction de phase et \mathbf{grad}_x est le gradient par rapport à la variable position.

Nous donnons dans les quelques lignes qui suivent une description intuitive des termes qui composent cette équation. Pour cela nous allons suivre par la pensée la propagation des $f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) d\mathbf{x} d\boldsymbol{\omega} d\nu$ photons de fréquence ν , à $d\nu$ près, contenus dans l'élément $d\mathbf{x} d\boldsymbol{\omega}$ autour de $(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$ au cours d'un intervalle de temps δt , comme cela est représenté à la figure 4.4.

Terme de transport pur $c \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_x f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$. Il indique la variation de f du simple fait du déplacement libre des photons. Tous les photons situés en \mathbf{x} à l'instant t ont une vitesse $c \boldsymbol{\omega}$. En l'absence de perturbation, ils se "transportent" durant δt jusqu'au point $\mathbf{x} + c \boldsymbol{\omega} \delta t$. D'après le théorème de Liouville, le volume de l'espace des phases $d\mathbf{x} d\boldsymbol{\omega}$ occupé par les photons est conservé au cours de ce déplacement et on a :

$$f_\nu(\mathbf{x} + c \boldsymbol{\omega} \delta t, \boldsymbol{\omega}) = f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.23)$$

Si δt est un élément différentiel en temps, $f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$ peut être exprimé comme son développement limité au premier ordre autour de la position d'origine, ce qui donne :

$$f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + [c \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_x f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})] \delta t = f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.24)$$

d'où

$$c \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_x f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad (4.25)$$

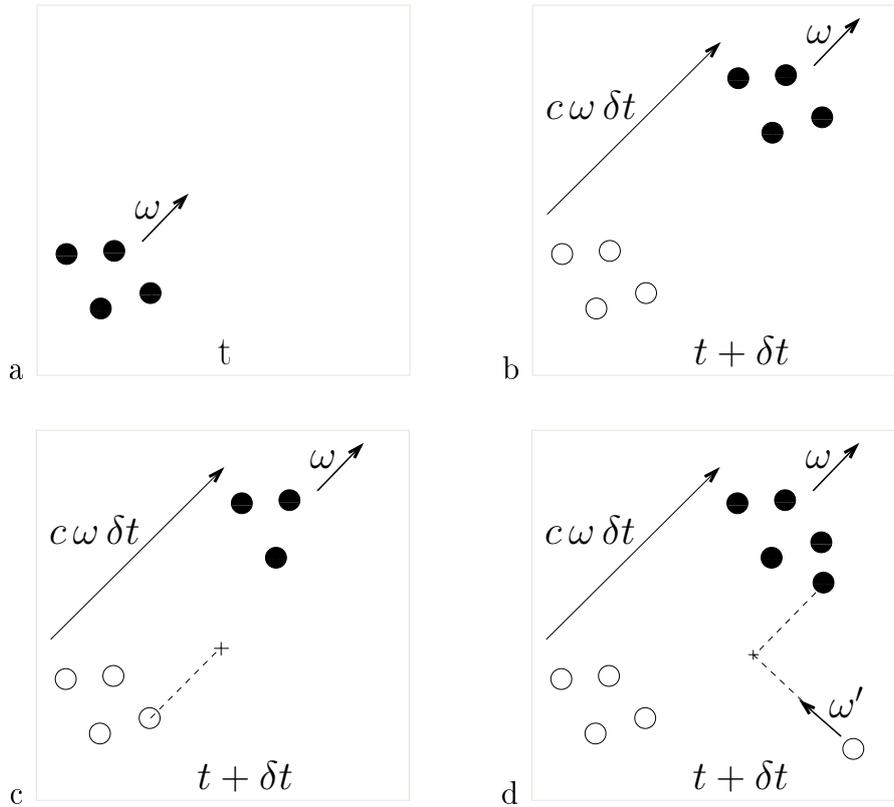


FIGURE 4.4: Représentation schématique de quelques photons à deux instants proches et interprétation physique des termes de l'équation de transfert radiatif. a & b : Terme de transport pur. c : Terme puits par absorption ou diffusion. d : Terme source par diffusion.

Si l'on projette le gradient sur la demi-droite $\mathbf{x} + s\boldsymbol{\omega}$ le long de laquelle les photons se propagent, $s \in [0, \infty]$ étant l'abscisse curviligne correspondante, ce terme s'écrit :

$$c \partial_s f_\nu(\mathbf{x} + s\boldsymbol{\omega}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad (4.26)$$

Cette équation indique qu'en l'absence de diffusion et d'absorption, f est constant le long du chemin que suivent les photons. Dans la configuration monodimensionnelle du photobioréacteur torique Fig. 4.1, l'équation 4.25 devient

$$c \mu \partial_z f_\nu(z, \theta) = 0 \quad (4.27)$$

où $\mu = \cos \theta$ et $\partial_z f_\nu(z, \theta)$ est la dérivée partielle de f par rapport à l'abscisse z .

Terme puits $-c k_{ext,\nu} f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$. Il représente le taux statistique avec lequel les photons subissent une absorption ou une diffusion qui change leur direction de propagation. Ils "disparaissent" ainsi de l'élément de volume $d\mathbf{x}d\boldsymbol{\omega}$ considéré (voir Fig. 4.4.c). Cette écriture linéaire suppose qu'il existe toujours une échelle en dessous de laquelle les lieux d'interactions avec les micro-organismes sont distribués uniformément et de manière aléatoire. En ne considérant que le terme de transport projeté sur la direction de propagation ainsi que le terme puits, l'équation de transfert radiatif s'écrit $c \partial_s f_\nu(\mathbf{x} + s\boldsymbol{\omega}, \boldsymbol{\omega}) = -c k_{ext,\nu} f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$ et on obtient l'atténuation exponentielle

$$f_\nu(\mathbf{x} + s\boldsymbol{\omega}, \boldsymbol{\omega}) \propto \exp(-k_{ext,\nu}s) \quad (4.28)$$

qui sera justifiée par *l'absence de mémoire* à la section suivante². Dans la configuration monodimensionnelle du photobioréacteur torique Fig. 4.1 (voir Eq. 4.27) cela donne :

$$f_\nu(z, \theta) \propto \exp(-k_{ext,\nu} \frac{z}{\mu}) \quad (4.29)$$

Terme source $c \alpha_{s,\nu} k_{ext,\nu} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega,\nu}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}')$. Il représente l'arrivée de photons dans le volume $d\mathbf{x}d\boldsymbol{\omega}$ de l'espace des phases suite à une diffusion vers $\boldsymbol{\omega}$ dans $d\mathbf{x}$ (voir Fig. 4.4.d). $c \alpha_{s,\nu} k_{ext,\nu} f_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}')$ est le nombre de photons par unité de temps qui, se propageant dans la direction $\boldsymbol{\omega}'$ dans $d\mathbf{x}$, subissent une diffusion, et $p_{\Omega,\nu}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}')$ est la probabilité qu'une telle diffusion mène à l'apparition d'un photon dans la direction $\boldsymbol{\omega}$. L'intégrale sur l'angle solide total permet de tenir compte des photons venant de toutes les directions.

L'équation de transfert radiatif sur la luminance $\hat{L}_\nu = c f_\nu$ s'écrit :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_\mathbf{x} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext,\nu} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_{s,\nu} k_{ext,\nu} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega,\nu}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (4.30)$$

Cette équation s'accompagne des conditions aux limites suivantes pour la configuration du photobioréacteur torique Fig. 4.1 (toutes les définitions géométriques étant données sur cette figure) :

2. La démarche inverse est usuellement choisie dans les ouvrages de transfert radiatifs : l'atténuation exponentielle est d'abord justifiée par l'absence de mémoire, puis mise en relation avec le terme puits de la forme locale de l'équation de transfert radiatif.

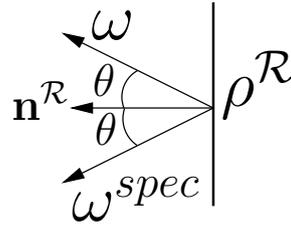


FIGURE 4.5: Définition de la direction de réflexion spéculaire.

- En $z = 0$:
 - Pour une incidence collimatée

$$\hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_\nu}{\mu_i} \delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i) \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.31)$$

où q_ν est la densité surfacique de flux incidente, par unité de fréquence, $\mu_i = \cos(\theta_i)$ et $\delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i)$ est la distribution de Dirac centrée en $\boldsymbol{\omega}_i$.

- Pour une incidence lambertienne

$$\hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_\nu}{\pi} \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.32)$$

- En $z = E$:

$$\hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \rho_\nu^{\mathcal{R}} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (4.33)$$

où $\rho_\nu^{\mathcal{R}}$ est la réflectivité à la fréquence ν (traduisant les phénomènes de réflexion et d'absorption à la paroi \mathcal{R}), et $-\boldsymbol{\omega}^{spec}$ est la direction spéculaire correspondant à la direction $\boldsymbol{\omega}$ (voir Fig. 4.5).

Dans un problème où toutes les propriétés radiatives sont grises (l'absorption et la diffusion dans le milieu, ainsi que la réflexion à la paroi \mathcal{R} sont indépendantes de la fréquence ν du rayonnement), l'équation de transfert radiatif sur \hat{L}_ν peut directement être intégrée sur la gamme spectrale étudiée afin d'obtenir l'équation d'évolution de $\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \hat{L}_\nu(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, t)$:

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (4.34)$$

où $k_{ext} \equiv k_{ext,\nu}$, $k_a \equiv k_{a,\nu}$, $k_d \equiv k_{d,\nu}$, $\alpha_s \equiv \alpha_{s,\nu}$ et $p_\Omega \equiv p_{\Omega,\nu}$. Cette équation s'accompagne des conditions aux limites suivantes pour la configuration du photobioréacteur torique Fig. 4.1 :

- En $z = 0$:
 - Pour une incidence collimatée

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_{\cap}}{\mu_i} \delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i) \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.35)$$

où $q_{\cap} = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu q_{\nu}$.

- Pour une incidence lambertienne

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_{\cap}}{\pi} \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.36)$$

- En $z = E$:

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (4.37)$$

où $\rho^{\mathcal{R}} \equiv \rho_{\nu}^{\mathcal{R}}$.

Dans la suite de ce chapitre, nous considérons un modèle gris pour le photobioréacteur torique de la figure 4.1 et nous travaillons sur l'équation de transfert radiatif Eq. 4.34, associée aux conditions aux limites ci-dessus.

4.2.3 Construction de la forme intégrale de l'équation de transfert radiatif à partir de la statistique du transport corpusculaire.

Il existe toujours une expression intégrale équivalente à l'équation de transfert radiatif locale Eq. 4.34 associée à ses conditions aux limites [113]. Il s'agit d'une formulation intégrale de la solution du problème modélisé par l'équation de transfert radiatif et ses conditions aux limites. Nous ne démontrons pas ici de manière formelle et générale cette équivalence. Nous nous concentrons dans la suite sur les images statistiques qui permettent de construire de telles formulations intégrales en se basant sur des phénomènes intuitifs de la physique corpusculaire tels que l'absorption et la diffusion des photons (la réflexion aux parois étant abordée au chapitre 5). Cet exercice est très utile à la compréhension des phénomènes mis en jeu dans les photobioréacteurs. Cela permet de se projeter dans l'espace des chemins optiques, c'est-à-dire l'ensemble des trajectoires de diffusions multiples empruntées par les photons dans le volume réactionnel. De plus, la formulation intégrale a une place centrale dans ce mémoire de par sa cohérence avec la méthode de Monte Carlo, qui fera l'objet des chapitres 5, 6 et 7. Les dérivations mathématiques qui accompagnent les discussions suivantes ont pour objectif de poser des notations et de se familiariser avec un outil formel

abondamment utilisé par la suite. Cependant, nous souhaitons ici mettre l'accent sur les images physiques et l'ensemble de ce paragraphe peut être lu sans attacher une importance centrale aux expressions mathématiques (même si ces formulations sont des outils précieux pour une analyse concrète du procédé). Dans ce cadre, la formulation intégrale peut être vue comme un moyen pratique d'établir de manière formelle des équivalences entre différentes visions du problème de transport.

Statistique corpusculaire de l'absorption et absence de mémoire. Dans un premier temps, intéressons nous comme au chapitre 2 à la transmittivité T d'une lame contenant une suspension de micro-organismes photosynthétiques. Dans le cas du photobioréacteur torique Fig. 4.1 et en l'absence de réflexion à la paroi \mathcal{R} ($\rho^{\mathcal{R}} = 0$), cela correspond à la proportion des photons incidents à la surface \mathcal{F} qui arrivent à l'arrière du réacteur, en $z = E$. D'un point de vue statistique, T est la probabilité qu'un photon partant de \mathcal{F} arrive en $z = E$. Nous considérons ici une incidence collimatée.

Travaillons pour commencer avec un modèle d'absorption pure tel que celui utilisé au chapitre 1. Dans cette situation, le rayonnement récupéré à l'arrière du réacteur est tout simplement la luminance $\hat{L}^0 = \frac{q_0}{\mu_i}$ incidente en \mathcal{F} atténuée exponentiellement sur la longueur de traversée $\frac{E}{\mu_i}$ du milieu, où μ_i est le cosinus de l'angle d'incidence θ_i (voir Fig. 4.6.a). La transmittivité s'écrit :

$$T = \frac{\hat{L}(z = E, \boldsymbol{\omega}_i)}{\hat{L}^0} = \exp\left(-k_a \frac{E}{\mu_i}\right) \quad (4.38)$$

car k_a est homogène dans la configuration radiative étudiée, k_a étant le coefficient d'absorption du milieu. Ce résultat très intuitif implique un certain nombre d'hypothèses sur le comportement individuel des photons, notamment l'absence de mémoire.

Encart 1 INTERPRÉTATION TEMPORELLE DE L'ABSENCE DE MÉMOIRE

Faisons une expérience mentale dans laquelle N_0 photons sont émis simultanément à l'instant $t = 0$ en un point \mathbf{x}_0 de \mathcal{F} ($z_0 = 0$). Ces photons se propagent sur la demi-droite définie par \mathbf{x}_0 et la direction $\boldsymbol{\omega}_i$ (voir Fig. 4.6) et nous suivons l'évolution de leur nombre $N(t)$ au cours du temps. L'absence de mémoire signifie que les photons interagissent localement avec les micro-organismes indépendamment de leur histoire. En d'autres termes, la décroissance du nombre de photons par absorption à l'instant t ne dépend pas des instants précédents, et la disparition locale ne dépend donc que de la proportion restante, puisque chacun des photons interagit de manière identique avec les micro-organismes et indépendamment du nombre de photons (les photons n'interagissent pas mutuellement et

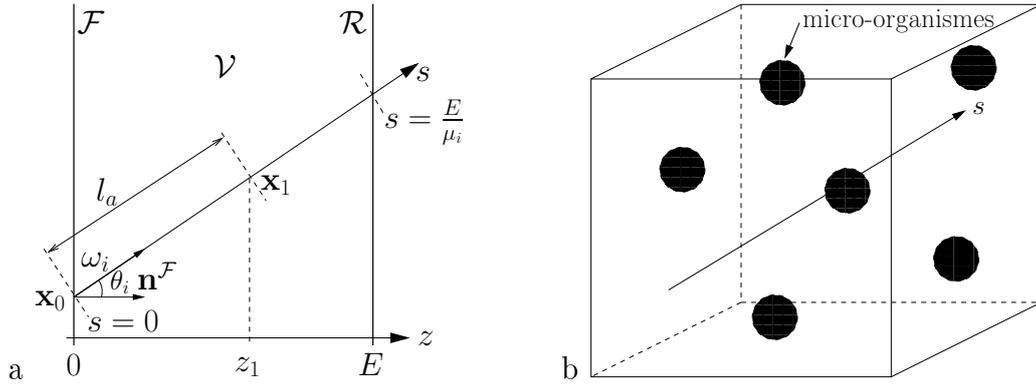


FIGURE 4.6: Chemin optique des photons en l'absence de diffusion. a : Demi-droite $\mathbf{x}_0 + s \boldsymbol{\omega}_i$ d'abscisse curviligne $s \in [0, \infty]$. b. Propagation des photons sur leur chemin optique dans la suspension de micro-organismes.

les propriétés radiatives des micro-organismes sont indépendantes du nombre de photons qui sont en train d'interagir avec eux). Le nombre de photons $N(t)$ évolue comme :

$$d_t N(t) = -\frac{1}{\tau_a} N(t) \quad (4.39)$$

où $d_t N(t)$ est la dérivée temporelle de N à l'instant t et τ_a est le libre temps moyen d'absorption, c'est-à-dire le temps caractéristique pour qu'un photon se propageant à la vitesse c soit absorbé par le milieu (le milieu étant homogène, τ_a est indépendant de la position). $\frac{1}{\tau_a}$ est le taux statistique d'absorption des photons qui s'écrit aussi $\frac{1}{\tau_a} = c k_a$ (voir le terme puits de l'équation de transfert radiatif dans la section précédente). Le coefficient d'absorption k_a quantifie l'occurrence avec laquelle un photon se propageant en ligne droite dans le volume réactionnel rencontre un micro-organisme par une unité de longueur parcourue sur son abscisse curviligne s (voir Fig. 4.6.b). Puisque le photon se propage en ligne droite, il ne perçoit que la section des micro-organismes et non leur volume. Si l'interaction était de nature matérielle, la section géométrique des micro-organismes serait considérée. Ici l'interaction est de nature électromagnétique et la section efficace définie au chapitre 2 est considérée. Le coefficient d'absorption est la densité de sections efficaces σ_a dans le volume réactionnel :

$$k_a = C_x \sigma_a \quad (4.40)$$

où C_x est la concentration en micro-organismes (ou de manière identique la concentration en biomasse). Les N photons que nous suivons se propagent tous avec la vitesse c suivant la

direction $\boldsymbol{\omega}_i$, leur abscisse z_1 évolue au cours de temps comme $z_1(t) = \mu_i ct$. En changeant la variable temporelle par l'abscisse z_1 dans l'équation 4.39, on obtient

$$d_z N(z_1) = -\frac{k_a}{\mu_i} N(z_1) \quad (4.41)$$

qui a pour solution $N(z_1) = N_0 \exp(-k_a \frac{z_1}{\mu_i})$. On retrouve bien l'expression de la transmittivité

$$T = \frac{N(z_1 = E)}{N_0} = \exp(-k_a \frac{E}{\mu_i}) \quad (4.42)$$

Afin d'appréhender cette atténuation exponentielle de manière statistique et d'aller vers la formulation intégrale de la transmittivité, faisons une expérience mentale dans laquelle un grand nombre de photons sont émis les uns après les autres de manière continue en $\mathbf{x}_0 \in \mathcal{F}$ suivant $\boldsymbol{\omega}_i$. La direction $\boldsymbol{\omega}_i$ et l'origine \mathbf{x}_0 définissent la demi-droite sur laquelle se propagent les photons : il s'agit du chemin optique qu'empruntent les photons. La probabilité qu'un photon émis en \mathbf{x}_0 parcoure une longueur l_1 dans le milieu sans être absorbé (c'est-à-dire la probabilité qu'il soit absorbé après avoir parcouru une distance supérieure l_1) est notée $P(l_1)$. La probabilité qu'un photon parcoure une longueur l_2 sans être absorbé, sachant qu'il a déjà parcouru une longueur l_1 depuis son émission en \mathbf{x}_0 , est notée $P(l_2|l_1)$. La probabilité qu'un photon parcoure une longueur supérieure à $l = l_1 + l_2$ est donc :

$$P(l_1 + l_2) = P(l_1)P(l_2|l_1) \quad (4.43)$$

On considère ici la position $\mathbf{x}_1 = \mathbf{x}_0 + l_1 \boldsymbol{\omega}_i$ comme une source secondaire dont l'émission correspond à la proportion de photons arrivant jusqu'en \mathbf{x}_1 , c'est-à-dire $P(l_1)$, puis partant de cette source secondaire, les photons ont une probabilité $P(l_2|l_1)$ d'arriver en $\mathbf{x}_2 = \mathbf{x}_1 + l_2 \boldsymbol{\omega}_i$. Dans cette expérience mentale, l'absence de mémoire se traduit par le fait que la probabilité $P(l_2|l_1)$ est indépendante de l_1 . En effet, un photon arrivant à la position \mathbf{x}_1 interagira par la suite avec le milieu exactement de la même manière qu'un photon qui serait émis en \mathbf{x}_1 . On a donc :

$$P(l_2|l_1) = P(l_2) \quad (4.44)$$

d'où

$$P(l_1 + l_2) = P(l_1)P(l_2) \quad (4.45)$$

Le milieu étant homogène, la seule forme pouvant satisfaire à cette relation est

$$P(l) = \exp(-k_a l) \quad (4.46)$$

$P(l)$ est la probabilité qu'un photon soit absorbé par le milieu après avoir parcouru une distance supérieure l ($P(E/\mu_i)$ est la transmittivité de la lame d'épaisseur E). Intéressons nous maintenant à la probabilité $p_{L_a}(l_a)dl_a$ qu'un photon soit absorbé dans le volume réactionnel après avoir parcouru une distance comprise entre l_a et $l_a + dl_a$. $p_{L_a}(l_a)$ est la densité de probabilité des longueurs d'absorption. Il s'agit, à un facteur près, de la distribution que l'on obtiendrait expérimentalement en notant pour chaque photon émis en \mathbf{x}_0 la longueur qu'il parcourt avant d'être absorbé. La probabilité $p_{L_a}(l_a)dl_a$ est égale à la probabilité $P(l_a)$ que le photon soit absorbé à une distance supérieure à l_a , moins la probabilité $P(l_a + dl_a)$ qu'il soit absorbé à une distance supérieure à $l_a + dl_a$:

$$p_{L_a}(l_a)dl_a = P(l_a) - P(l_a + dl_a) \quad (4.47)$$

dl_a étant un élément différentiel de longueur, $(P(l_a + dl_a) - P(l_a))/dl_a$ est la dérivée de $P(l)$ prise en l_a , notée ici $d_l P(l_a)$, et il vient :

$$p_{L_a}(l_a) = -d_l P(l_a) \quad (4.48)$$

En dérivant l'expression Eq. 4.46 de $P(l)$, on obtient la densité de probabilité des longueurs d'absorption :

$$p_{L_a}(l_a) = k_a \exp(-k_a l_a) \quad (4.49)$$

Cette densité de probabilité est normalisée, c'est-à-dire que la probabilité qu'un photon soit absorbé entre $l_a = 0$ et $l_a \rightarrow \infty$ est bien égale à 1 :

$$\int_0^{\infty} dl_a p_{L_a}(l_a) = 1 \quad (4.50)$$

La transmittivité de la lame d'épaisseur E (voir Fig. 4.6) est la probabilité qu'un photon ne soit toujours pas absorbé après avoir parcouru la distance E/μ_i :

$$T = P(E/\mu_i) = \int_{\frac{E}{\mu_i}}^{\infty} dl_a p_{L_a}(l_a) \quad (4.51)$$

Cette équation est la formulation intégrale de la transmittivité. Dans la suite de ce mémoire, nous prendrons l'habitude de remplacer les bornes d'intégration par l'ajout d'une fonction échelon $H[\]$ dans l'intégrande des formulations intégrales. Cela donne ici :

$$T = \int_0^{\infty} dl_a p_{L_a}(l_a) H\left[l_a > \frac{E}{\mu_i}\right] \quad (4.52)$$

où $H[\]$ est égale à 1 si la condition entre crochets est satisfaite et égale à 0 sinon. De plus, si on travaille avec la position d'absorption \mathbf{x}_1 correspondant à la longueur d'absorption l_a : $\mathbf{x}_1 = \mathbf{x}_0 + l_a \boldsymbol{\omega}_i$ (voir Fig. 4.6.a), on peut réécrire la condition dans la fonction échelon Eq. 4.52 en fonction de l'abscisse z_1 de cette position d'absorption (z_1 est une fonction de l_a). Cela donne :

$$T = \int_0^\infty dl_a p_{L_a}(l_a) H[z_1 > E] \quad (4.53)$$

Cela revient bien à intégrer les longueurs d'absorption supérieures à $\frac{E}{\mu_i}$.

Cette expression a été obtenue par un raisonnement mathématique. Son interprétation sur les images de la statistique du transport corpusculaire est directe : sur l'ensemble des événements possibles, seuls les événements correspondant à une position d'absorption en dehors de la lame sont considérés. Maintenant que nous disposons d'une expression mathématique qui est la traduction rigoureuse des phénomènes d'extinction, nous n'hésiterons pas à l'employer sans en démontrer à nouveau les fondements.

Chemins optiques de diffusion multiple. Considérons maintenant la diffusion. Exactement comme dans le cas de l'absorption, on définit le coefficient de diffusion $k_d = C_x \sigma_d$, où σ_d est la section efficace de diffusion, et la densité de probabilité des longueurs de diffusions $p_{L_d}(l_d)$ est

$$p_{L_d}(l_d) = k_d \exp(-k_d l_d) \quad (4.54)$$

Le coefficient d'extinction est $k_{ext} = k_a + k_d$, et la densité de probabilité des longueurs d'extinction $p_{L_{ext}}(l_{ext})$ est

$$p_{L_{ext}}(l_{ext}) = k_{ext} \exp(-k_{ext} l_{ext}) \quad (4.55)$$

$p_{L_{ext}}(l_{ext})$ est la densité de probabilité qu'un photon interagisse avec un micro-organisme après avoir parcouru une longueur l_{ext} dans le volume réactionnel, indépendamment de la nature de cette interaction (absorption ou diffusion). Lorsqu'une telle interaction se produit, la probabilité qu'il s'agisse d'une diffusion est l'albédo de diffusion simple $\alpha_s = k_d/k_{ext}$, et la probabilité que l'interaction soit une absorption est son complémentaire $1 - \alpha_s$. Lorsqu'un photon est diffusé, sa direction de propagation est changée. Sachant qu'un photon arrivant avec une direction $\boldsymbol{\omega}_0$ est diffusé par un micro-organisme, la densité de probabilité que ce photon soit diffusé suivant la direction $\boldsymbol{\omega}_1$ est donnée par la fonction de phase $p_{\Omega_1}(\boldsymbol{\omega}_1|\boldsymbol{\omega}_0)$. En d'autres termes $p_{\Omega_1}(\boldsymbol{\omega}_1|\boldsymbol{\omega}_0)d\boldsymbol{\omega}_1$ est la probabilité que le photon reparte avec une direction comprise dans $d\boldsymbol{\omega}_1$ autour de $\boldsymbol{\omega}_1$.

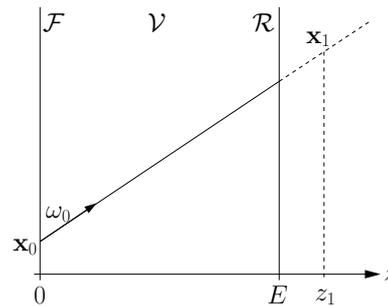
Dans le cas de l'absorption pure, les photons n'empruntaient qu'un seul chemin optique

puisque nous considérons une source collimatée. En présence de diffusion, un photon peut être transmis en empruntant différents chemins optiques : ce sont les chemins de diffusion multiple correspondant à 0, 1, 2, 3... diffusions dans le milieu avant l'arrivée en $z = E$. Nous allons dans la suite détailler ces chemins optiques en suivant la propagation des photons dans le volume réactionnel. Nous adoptons une organisation d'écriture permettant deux niveaux de lecture : les événements statistiques correspondant au transport des photons sont énoncés point par point et accompagnés d'une figure représentant un des chemins optiques correspondant à cet événement, puis l'expression intégrale de la probabilité de l'événement est donnée en dessous. Nous reprenons pour cela l'expérience mentale où les photons sont émis les uns après les autres depuis \mathbf{x}_0 , leur direction de départ étant ici notée ω_0 . La transmittivité est la probabilité qu'un photon arrive en $z = E$. Elle peut s'écrire comme la somme des probabilités des événements correspondant à une transmission après 0, 1, 2, 3... diffusions dans le milieu. On note $T^{(0)}$ la probabilité qu'un photon traverse le photobioréacteur directement, sans interagir avec les micro-organismes. $T^{(1)}$ est la probabilité qu'un photon sorte en $z = E$ après avoir vécu une diffusion, $T^{(2)}$ après deux diffusions, et ainsi de suite. T s'écrit donc :

$$T = T^{(0)} + T^{(1)} + T^{(2)} + \dots \quad (4.56)$$

Le premier terme $T^{(0)}$ est calculé simplement par atténuation exponentielle selon le coefficient d'extinction. Les photons qui sortent de ce faisceau direct par diffusion ne sont pas pour autant perdus, ils participent aux termes d'ordres supérieurs $T^{(j>0)}$. $T^{(0)}$ représente l'événement statistique suivant :

- Un photon est transmis directement sans interagir avec le milieu. Il participe à la transmittivité et le chemin optique correspondant est une ligne droite identique à celle observée dans le cas de l'absorption. La probabilité de cet événement est :



$$\int_0^\infty dl_{ext,0} P_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H[z_1 > E] \quad (4.57)$$

où z_1 est l'abscisse du premier point d'interaction $\mathbf{x}_1 = \mathbf{x}_0 + l_{ext,0} \boldsymbol{\omega}_0$. $T^{(0)}$ s'écrit donc :

$$T^{(0)} = \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H[z_1 > E] \quad (4.58)$$

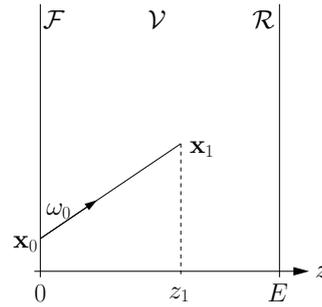
Considérons maintenant l'ensemble des événements pouvant se produire lorsqu'un photon interagit une première fois avec le volume réactionnel.

- Un photon interagit dans le milieu à une position \mathbf{x}_1 après avoir parcouru une première longueur d'extinction $l_{ext,0}$ (toutes les positions $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}$ sont envisagées). La probabilité de cet événement est :

$$\int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H[0 < z_1 < E] \quad (4.59)$$

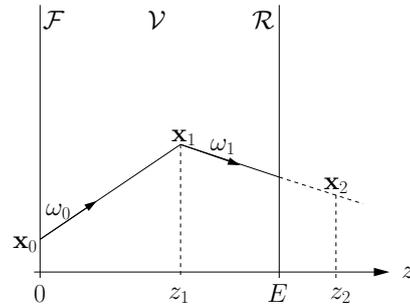
Lorsque cela se produit, il y a quatre cas de figures : le photon est absorbé, le photon est diffusé et sort du photobioréacteur par la face avant, le photon est diffusé et sort du photobioréacteur par la face arrière (transmission) et enfin, le photon est diffusé et interagit à nouveau avec le milieu, il participe aux ordres supérieurs $T^{(j>1)}$. Ces événements sont détaillés dans la suite :

- (1) L'interaction en \mathbf{x}_1 est une absorption, le photon est perdu et ne participe pas à la transmittivité. La probabilité de cet événement est :



$$\int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H[0 < z_1 < E] (1 - \alpha_s) \quad (4.60)$$

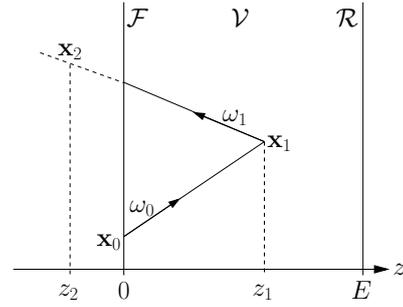
- (2) L'interaction en \mathbf{x}_1 est une diffusion. Le photon repart suivant une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ et il est transmis. La probabilité de cet événement est :



$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H [0 < z_1 < E] \alpha_s \\
& \times \int_{4\pi} d\omega_1 p_{\Omega_1}(\omega_1|\omega_0) \int_0^\infty dl_{ext,1} p_{L_{ext,1}}(l_{ext,1}) H [z_2 > E]
\end{aligned} \tag{4.61}$$

où z_2 est l'abscisse du second point d'interaction $\mathbf{x}_2 = \mathbf{x}_1 + l_{ext,1} \boldsymbol{\omega}_1$. Comme cela a été mentionné dans le cadre de l'absorption, du fait de l'absence de mémoire le point de diffusion \mathbf{x}_1 peut être vu comme une source secondaire dont l'émission correspond aux photons diffusés en \mathbf{x}_1 , c'est-à-dire $\int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H [0 < z_1 < E] \alpha_s$. Les photons partent de cette source secondaire avec une distribution angulaire correspondant à la fonction de phase. Partant de la position \mathbf{x}_1 suivant la direction $\boldsymbol{\omega}_1$, la probabilité qu'un photon soit transmis est $\int_0^\infty dl_{ext,1} p_{L_{ext,1}}(l_{ext,1}) H [z_2 > E]$, où z_2 est une fonction de \mathbf{x}_1 et $l_{ext,1}$, exactement comme si nous considérons une transmission directe à partir de la position \mathbf{x}_1 .

- (3) L'interaction en \mathbf{x}_1 est une diffusion. Le photon repart suivant une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ et il sort du photobioréacteur par la face avant, en $z = 0$. Cet événement ne participe pas à la transmittivité et sa probabilité est :



$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H [0 < z_1 < E] \alpha_s \\
& \times \int_{4\pi} d\omega_1 p_{\Omega_1}(\omega_1|\omega_0) \int_0^\infty dl_{ext,1} p_{L_{ext,1}}(l_{ext,1}) H [z_2 < 0]
\end{aligned} \tag{4.62}$$

- (4) L'interaction en \mathbf{x}_1 est une diffusion. Le photon repart suivant une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ et il interagit à nouveau dans le volume réactionnel en \mathbf{x}_2 . Nous retrouverons cet événement plus tard. Sa probabilité est :

$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H [0 < z_1 < E] \alpha_s \\
& \times \int_{4\pi} d\omega_1 p_{\Omega_1}(\omega_1|\omega_0) \int_0^\infty dl_{ext,1} p_{L_{ext,1}}(l_{ext,1}) H [0 < z_2 < E]
\end{aligned} \tag{4.63}$$

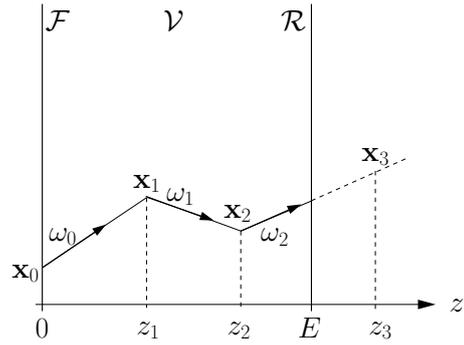
Seul l'événement (2) participe à la transmission après une diffusion $T^{(1)}$ et on obtient :

$$T^{(1)} = \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H[0 < z_1 < E] \alpha_s \quad (4.64)$$

$$\times \int_{4\pi} d\omega_1 p_{\Omega_1}(\omega_1|\omega_0) \int_0^\infty dl_{ext,1} p_{L_{ext,1}}(l_{ext,1}) H[z_2 > E]$$

A partir de l'événement (4), le processus d'interaction se reproduit à l'identique de manière infinie. Comme dans le cas de l'interaction en \mathbf{x}_1 , l'interaction en \mathbf{x}_2 peut être soit une absorption, soit une diffusion. Si cette interaction est une diffusion, trois événements sont à nouveau possibles : la transmission, le retour en $z = 0$ et une nouvelle diffusion en \mathbf{x}_3 .

- L'événement participant à la transmission après deux diffusions est : un photon interagit dans le milieu à une position \mathbf{x}_1 , cette interaction est une diffusion, le photon repart avec la direction de diffusion ω_1 , il interagit à nouveau dans le volume réactionnel en \mathbf{x}_2 , il repart avec la direction de diffusion ω_2 et est transmis. $T^{(2)}$ se construit à l'identique de $T^{(1)}$ en considérant un ordre de diffusion supplémentaire :



$$T^{(2)} = \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) H[0 < z_1 < E] \alpha_s \quad (4.65)$$

$$\times \int_{4\pi} d\omega_1 p_{\Omega_1}(\omega_1|\omega_0) \int_0^\infty dl_{ext,1} p_{L_{ext,1}}(l_{ext,1}) H[0 < z_2 < E] \alpha_s$$

$$\times \int_{4\pi} d\omega_2 p_{\Omega_2}(\omega_2|\omega_1) \int_0^\infty dl_{ext,2} p_{L_{ext,2}}(l_{ext,2}) H[z_3 > E]$$

La formulation intégrale de T est obtenue en prenant la somme à l'infinie des $T^{(j)}$. Elle s'écrit de manière compacte sous forme récursive :

$$T = \int_0^\infty dl_{ext,0} p_{L_{ext,0}}(l_{ext,0}) \{H[z_1 > E] \times 1 + H[0 < z_1 < E] \alpha_s \mathcal{T}_1\} \quad (4.66)$$

avec \mathcal{T}_j définit de manière récursive comme :

$$\begin{aligned} \mathcal{T}_{j \geq 1} = & \int_{4\pi} d\omega_j p_{\Omega_j}(\omega_j | \omega_{j-1}) \int_0^\infty dl_{ext,j} p_{L_{ext,j}}(l_{ext,j}) \\ & \times \{H[z_{j+1} > E] \times 1 + H[0 < z_{j+1} < E] \alpha_s \mathcal{T}_{j+1}\} \end{aligned} \quad (4.67)$$

La formulation intégrale peut être lue comme une formalisation de l'interprétation du transfert radiatif en terme de chemins optiques. Dans ce contexte, elle consiste en l'intégration des contributions de tous les chemins optiques participant à la grandeur radiative étudiée. L'espace des chemins optiques peut varier en fonction des images physiques employées à l'échelle corpusculaire. La description précédente était dictée par le choix d'un raisonnement sur notre expérience mentale dans laquelle les photons sont émis un par un. Le fait de considérer un photon et non un ensemble de photons nous a menés dans un espace où certains chemins optiques s'interrompent dans le volume réactionnel de par une absorption par un micro-organisme. De manière équivalente, on peut considérer un espace des chemins optiques défini par un ensemble de positions de diffusion, plutôt qu'un ensemble de positions d'interaction. Dans ce cas, on travaille avec la densité de probabilité des longueurs de diffusion (au lieu des longueurs d'extinction) et tous les chemins mènent à une sortie du volume réactionnel, soit en $z = 0$ soit en $z = E$: aucun chemin n'est interrompu par absorption mais il y a atténuation le long du chemin. L'expérience mentale de l'encart 1, dans laquelle N_0 photons sont émis simultanément, peut alors être employée. Cet ensemble de photons se propage suivant un chemin optique et au cours de leur propagation leur nombre décroît exponentiellement par absorption, comme cela a été décrit en l'absence de diffusion. La contribution de ce chemin est donc pondérée par la transmission en absorption $\exp(-k_a d)$ où d est la longueur du chemin optique. On obtient la formulation intégrale suivante :

$$T = \int_0^\infty dl_{d,0} p_{L_{d,0}}(l_{d,0}) \{H[z_1 > E] \exp(-k_a d_0) + H[0 < z_1 < E] \mathcal{T}_1\} \quad (4.68)$$

avec \mathcal{T}_j défini de manière récursive comme :

$$\begin{aligned} \mathcal{T}_{j \geq 1} = & \int_{4\pi} d\omega_j p_{\Omega_j}(\omega_j | \omega_{j-1}) \int_0^\infty dl_{d,j} p_{L_{d,j}}(l_{d,j}) \\ & \times \{H[z_{j+1} > E] \exp(-k_a d_j) + H[0 < z_{j+1} < E] \mathcal{T}_{j+1}\} \end{aligned} \quad (4.69)$$

où d_j est la longueur du chemin optique correspondant à une sortie du milieu avant d'at-

teindre la position de diffusion \mathbf{x}_{j+1} (qui est à l'extérieur du volume réactionnel comme dans la discussion précédente). Dans le cas du chemin correspondant à une transmission directe, $d_0 = \frac{E}{\mu_i}$ comme dans notre étude en l'absence de diffusion. On montre facilement que cette formulation intégrale est mathématiquement équivalente à la formulation Eqs. 4.66 et 4.67. Pour cela il faut remarquer que $dl_{ext} p_{L_{ext}}(l_{ext}) \alpha_s = dl_{ext} k_{ext} \exp(-k_{ext} l_{ext}) \frac{k_d}{k_{ext}} = dl_{ext} k_d \exp(-k_d l_{ext}) \exp(-k_a l_{ext})$. En changeant la variable muette l_{ext} pour l_d on obtient $dl_{ext} p_{L_{ext}}(l_{ext}) \alpha_s = dl_d p_{L_d}(l_d) \exp(-k_a l_d)$. On voit ainsi apparaître la densité de probabilité des longueurs de diffusion $p_{L_d}(l_d)$ et l'atténuation exponentielle par absorption sur chaque segment de longueur l_d composant le chemin optique.

Réciprocité des chemins optiques et analyse de la luminance dans le photobioréacteur torique. La réciprocité des chemins optiques est une propriété très utile en terme d'images physiques. Cette propriété est une traduction directe de la micro-réversibilité, ou encore du second principe de la thermodynamique. Nous énonçons ici théoriquement la réciprocité des chemins optiques sans la démontrer : lorsque l'on considère un chemin optique qui, partant de la position \mathbf{x}_0 avec la direction $\boldsymbol{\omega}_0$, se termine à la position \mathbf{x}_1 avec la direction $\boldsymbol{\omega}_1$ (chemin 1), on définit le chemin réciproque qui, partant de la position \mathbf{x}_1 avec la direction $-\boldsymbol{\omega}_1$, se termine à la position \mathbf{x}_0 avec la direction $-\boldsymbol{\omega}_0$ (chemin 2), et le principe de réciprocité implique que la densité de probabilité qu'un photon suive le chemin 1 est égale à celle qu'un photon suive le chemin 2. Afin d'illustrer les images physiques associées à cette propriété, étudions la luminance $\hat{L}(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega})$ en un point \mathbf{x}_0 d'abscisse $z_0 = 3 \text{ cm}$ du photobioréacteur torique (voir Figs. 4.7 et 4.8). Il est difficile de se représenter mentalement les chemins optiques que suivent les photons incidents à la surface \mathcal{F} avant d'arriver à la position \mathbf{x}_0 car la probabilité qu'un photon partant de \mathcal{F} passe exactement par la position \mathbf{x}_0 est nulle. Il est alors utile de construire mentalement ces chemins optiques en utilisant le principe de réciprocité : on part de la position \mathbf{x}_0 et on remonte jusqu'à la source en suivant exactement la même physique que lors de la construction des chemins directs au paragraphe précédent. Les chemins optiques réciproques qui contribuent à la luminance $\hat{L}(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega})$ partent de \mathbf{x}_0 avec la direction de départ $\boldsymbol{\omega}_0 = -\boldsymbol{\omega}$ et arrivent, après n diffusions, en $z = 0$ (voir Fig. 4.7). Bien que la construction de ces chemins soit très simple, l'utilisation du principe de réciprocité demande un traitement un peu plus subtil des conditions aux limites, entraînant parfois une complexification de l'obtention de la contribution de ces chemins. Cependant, la démarche générale reste identique à celle des discussions précédentes et nous ne développons pas cet aspect ici car nous souhaitons seulement mettre l'accent sur la construction mentale des chemins optiques réciproques. La formulation intégrale de $\hat{L}(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega}) = \hat{L}(\mathbf{x}_0, -\boldsymbol{\omega}_0)$ obtenue en appliquant le principe de réciprocité (c'est-à-dire en suivant les chemins optiques

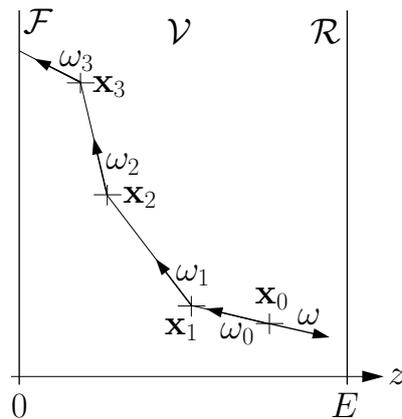


FIGURE 4.7: Construction d'un chemin optique sur l'image de la réciprocity des chemins optiques.

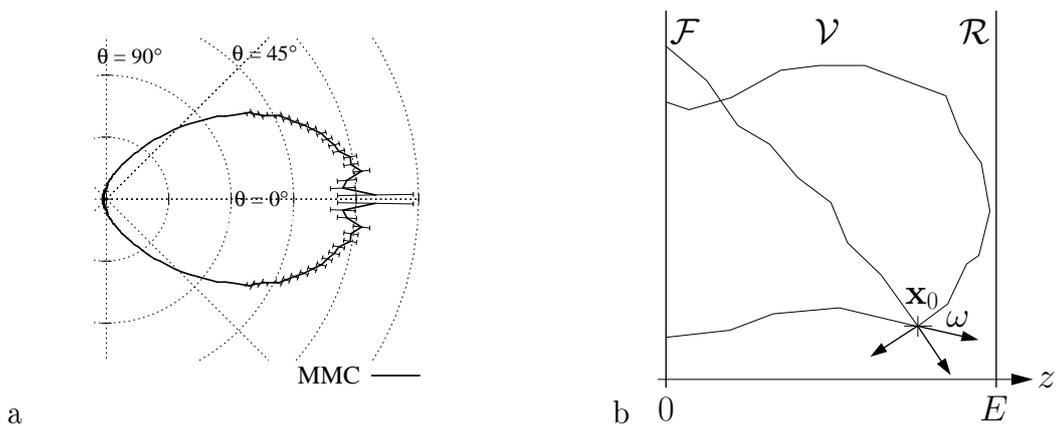


FIGURE 4.8: a. Répartition angulaire de la luminance $\hat{L}(z_0, \theta)$ à la position $z_0 = 3\text{ cm}$ dans le photobioréacteur torique de la figure 4.1 où $\rho^{\mathcal{R}} = 0$ et l'incidence est lambertienne. θ est l'angle entre la direction de propagation des photons et l'axe \mathbf{e}_z . Résultats obtenus par la méthode de Monte Carlo (voir Chap. 5) en construisant un histogramme des angles de propagation θ pour des classes de largeur 1.8° . Les écarts-types des estimateurs sont donnés en barres d'erreurs. b. Hypothèse sur les chemins optiques correspondants.

des figures 4.7 et 4.8.b) est donnée à titre indicatif :

$$\hat{L}(\mathbf{x}_0, -\boldsymbol{\omega}_0) = \int_0^\infty dl_{d,0} p_{L_{d,0}}(l_{d,0}) \{H[z_1 < 0] \exp(-k_a d_0) + H[0 < z_1 < E] \mathcal{L}_1\} \quad (4.70)$$

avec \mathcal{L}_j définit de manière récursive comme :

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{j \geq 1} = & \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}_j p_{\Omega_j}(\boldsymbol{\omega}_j | \boldsymbol{\omega}_{j-1}) \int_0^\infty dl_{d,j} p_{L_{d,j}}(l_{d,j}) \\ & \times \{H[z_{j+1} < 0] \exp(-k_a d_j) + H[0 < z_{j+1} < E] \mathcal{L}_{j+1}\} \end{aligned} \quad (4.71)$$

où les positions de diffusion sont $\mathbf{x}_{j+1} = \mathbf{x}_j + l_{d,j} \boldsymbol{\omega}_j$, $j \geq 0$, et les longueurs des chemins optiques d_j sont définies plus haut.

Le résultat de la figure 4.8.a indique une forte probabilité des chemins menant à une direction $\boldsymbol{\omega}$ proche de \mathbf{e}_z . Ceci est notamment dû à la forme très particulière de la fonction de phase des micro-organismes. Cette fonction de phase étant extrêmement orientée vers l'avant, les photons sont en moyenne très peu déviés de leur trajectoire lorsqu'ils sont diffusés. Seuls les photons qui expérimentent un grand nombre de diffusions sont suffisamment déviés de leur trajectoire initiale et participent à la luminance aux angles $\theta > 90^\circ$. Ces photons sont visiblement très peu présents dans la configuration étudiée. De plus, du fait de la faible déviation (en moyenne) des chemins optiques, plus la direction $\boldsymbol{\omega}$ est éloignée de \mathbf{e}_z et plus la longueur des chemins correspondants est grande, or nous sommes ici dans le cadre d'une atténuation exponentielle par absorption le long des chemins optiques de diffusion.

Ces images permettent une première analyse du photobioréacteur torique, mais à ce stade, il est encore difficile d'identifier quels chemins (ordre de diffusion, longueur, etc) participent significativement, ou non, au transfert de rayonnement. Par exemple, nous avons réussi à déduire des résultats de la figure 4.8.a que peu de photons sont significativement déviés de leur direction de départ. Dans le même esprit, le but de la section suivante est de préciser un ensemble de caractéristiques des chemins de diffusion multiples.

4.3 Épaisseurs optiques et invariance d'échelle du transport

Nous introduisons dans cette section un ensemble de grandeurs sans dimensions couramment utilisées pour caractériser une configuration radiative donnée. Ces grandeurs ont une place centrale dans la construction d'un intuitif autour du transfert radiatif dans les photobioréacteurs. En fonction de la valeur de l'albédo α_s , du paramètre d'asymétrie g de la fonction de phase et de l'épaisseur optique du milieu, il est possible d'avoir une première analyse de l'infinité des événements de la statistique du transport corpusculaire, afin de caractériser

le régime de diffusion et d'identifier les approximations susceptibles d'être pertinentes pour l'étude du système.

L'albédo de diffusion simple représente la proportion de diffusions sur l'ensemble des événements d'interaction :

$$\alpha_s = \frac{k_d}{k_{ext}} \quad (4.72)$$

α_s est égal à 0 dans le cas d'un milieu purement absorbant et égal à 1 dans un milieu non-absorbant. Dans la configuration radiative du photobioréacteur torique Fig. 4.1, $\alpha_s \simeq 0.86$, ce qui signifie qu'en moyenne un photon va être diffusé 4 fois avant d'être absorbé par un micro-organisme. Nous avons vu à la section précédente la place importante de la forme de la fonction de phase dans l'analyse des résultats. Cette information est contenue dans le paramètre d'asymétrie g qui est la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion :

$$g = \int_{4\pi} d\omega p_{\Omega}(\omega|\omega') \omega \cdot \omega' \quad (4.73)$$

g est contenu entre -1 et 1 . g est égal à 0 dans le cas d'une fonction de phase symétrique pour les directions avant et arrière, ce qui est par exemple le cas pour une fonction de phase isotrope. $g < 0$ dans le cas d'une fonction de phase orientée vers l'arrière et $g > 0$ pour une fonction de phase orientée vers l'avant. Dans le cas des micro-organismes photosynthétiques g est proche de 1, plus précisément $g = 0.945$ pour la situation étudiée (Fig. 4.1). Enfin, l'épaisseur optique d'extinction e est le rapport d'une longueur caractéristique \tilde{L} du milieu sur le libre parcours moyen d'extinction $\lambda_{ext} = 1/k_{ext}$:

$$e = \tilde{L} k_{ext} \quad (4.74)$$

Si on prend l'épaisseur E de la lame comme longueur caractéristique, e est à peu près égal à 23 dans la configuration radiative étudiée. Comme nous l'avons vu à la section 4.2.3, l'absorption par le milieu peut être traitée a posteriori, comme une atténuation exponentielle le long des chemins de diffusion multiple. On se concentre donc généralement sur l'épaisseur optique de diffusion e_d , qui est le rapport de \tilde{L} sur le libre parcours moyen de diffusion $\lambda_d = 1/k_d$:

$$e_d = \tilde{L} k_d = \alpha_s e \quad (4.75)$$

Il s'agit de l'inverse du nombre de Knudsen. Dans la configuration radiative du photobioréacteur torique, $e_d \simeq 20$ si on considère $\tilde{L} = E$. L'information que l'on cherche ici à caractériser est la distribution des longueurs des chemins de diffusion. Cette distribution est complexe car elle inclut tous les chemins (ici, les chemins qui partant de $z = 0$ traversent la lame et

ceux qui reviennent en $z = 0$), et quelle que soit la valeur de $e_d > 0$, toutes les longueurs allant de 0 à l'infini existent. Lorsque le paramètre e_d varie, la distribution des longueurs se déforme mais une analyse de cette évolution correspond à une étude spécifique qui n'est pas abordée dans la présente thèse [114, 115]. Nous signalons ici qu'une thèse actuellement en cours au sein des laboratoires LAPLACE et RAPSODEE se concentre justement sur cette étude (à travers le développement d'outils méthodologiques spécifiques) et sur son potentiel d'analyse dans le cadre des procédés photoréactifs [116].

Le transfert en diffusion multiple dans les photobioréacteurs est d'autant plus difficile à penser que les paramètres d'asymétrie sont très élevés. Une diffusion ne signifie donc pas du tout la perte de l'information sur la direction de départ. Ce point est très important car l'éloignement à l'isotropie de la fonction de distribution définit la validité de diverses approximations et des images physiques auxquelles elles sont associées. Afin de caractériser la perte d'information sur les directions de propagation, intéressons nous à la projection d'un chemin optique de diffusion multiple sur sa direction de départ (voir Fig. 4.9). On note l^* la longueur de cette projection :

$$l^* = \sum_{j=0}^{\infty} l_{d,j} \mu_j \quad (4.76)$$

où $l_{d,j}$ est la longueur du j -ème segment du chemin de diffusion et $\mu_j = \boldsymbol{\omega}_j \cdot \boldsymbol{\omega}_0$ est le produit scalaire entre la direction de départ et la direction du j -ème segment du chemin de diffusion.

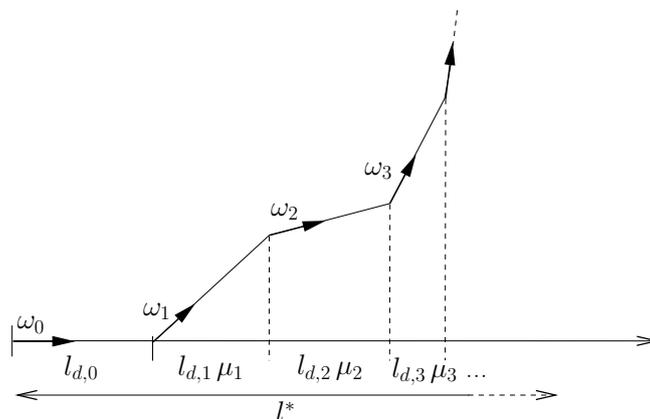


FIGURE 4.9: Projection d'un chemin de diffusion multiple sur sa direction de départ.

La moyenne λ^* de l^* sur tous les chemins possibles est notée :

$$\lambda^* = \sum_{j=0}^{\infty} \lambda \bar{\mu}_j \quad (4.77)$$

où $\lambda = \frac{1}{k_d}$ est le libre parcours moyen de diffusion, qui est défini comme la moyenne des longueurs de diffusion (voir l'expression de $p_{L_{d,0}}(l_{d,0})$ Eq. 4.54) :

$$\lambda = \int_0^{\infty} dl_{d,j} p_{L_{d,j}}(l_{d,j}) l_{d,j} = \frac{1}{k_d} \quad (4.78)$$

et où

$$\bar{\mu}_j = \int_{4\pi} d\omega_1 p_{\Omega_1}(\omega_1|\omega_0) \int_{4\pi} d\omega_2 p_{\Omega_2}(\omega_2|\omega_1) \dots \int_{4\pi} d\omega_j p_{\Omega_j}(\omega_j|\omega_{j-1}) \omega_j \cdot \omega_0 \quad (4.79)$$

De manière intuitive, pour une configuration radiative où la fonction de phase est isotrope ($g = 0$), toutes les directions de diffusion sont équiprobables et l'information sur la direction de départ est perdue dès la première diffusion. $\bar{\mu}_0 = 1$ (voir figure 4.9) et tous les $\bar{\mu}_{j>0}$ sont nuls. La longueur moyenne λ^* de la projection est égale au libre parcours moyen de diffusion λ . Lorsque la fonction de phase est anisotrope, il faut remarquer que $\omega_j \cdot \omega_0$ peut se réécrire :

$$\omega_j \cdot \omega_0 = \omega_j \cdot \omega_{j-1} \cdot \omega_{j-1} \cdot \omega_{j-2} \dots \omega_1 \cdot \omega_1 \cdot \omega_0 \quad (4.80)$$

puisque tous les produits scalaires $\omega_q \cdot \omega_q$ sont égaux à 1. On fait ainsi apparaître le produit des paramètres d'asymétrie $g = \int_{4\pi} d\omega_q p_{\Omega_q}(\omega_q|\omega_{q-1}) \omega_q \cdot \omega_{q-1}$ dans l'expression de $\bar{\mu}_j$ et on obtient :

$$\bar{\mu}_j = g^j \quad (4.81)$$

On retrouve bien que $\bar{\mu}_0 = 1$ et tous les $\bar{\mu}_{j>0}$ sont nuls dans le cas où $g = 0$. De manière générale, il vient :

$$\lambda^* = \sum_{j=0}^{\infty} \lambda g^j = \frac{\lambda}{1-g} \quad (4.82)$$

Cela revient à définir un coefficient de diffusion équivalent $k_d^* = \frac{1}{\lambda^*} = k_d(1-g)$ correspondant à une situation où, comme dans le cas d'une fonction de phase isotrope, l'information sur la direction de départ est perdue dès la première diffusion. De manière similaire, en travaillant avec les longueurs d'extinction et en pondérant chaque interaction par l'albedo de diffusion simple (probabilité que le chemin continue après l'interaction), on obtient le coefficient d'extinction équivalent $k_{ext}^* = k_{ext}(1 - \alpha_s g)$. Cette propriété d'invariance du transport est

couramment utilisée afin de se ramener à un problème équivalent dans lequel la fonction de phase est isotrope. Ce problème équivalent correspond à l'albédo de transport α_s^*

$$\alpha_s^* = \alpha_s \frac{1 - g}{1 - \alpha_s g} \quad (4.83)$$

à l'épaisseur optique de transport

$$e^* = (1 - \alpha_s g) e \quad (4.84)$$

et à une fonction de phase isotrope :

$$p_{\Omega}(\omega|\omega') = \frac{1}{4\pi} \quad (4.85)$$

On définit aussi l'épaisseur de diffusion du problème de transport

$$e_d^* = \alpha_s^* e^* = (1 - g) e_d \quad (4.86)$$

Cette équivalence n'est pas stricte. L'équation de transfert radiatif n'est notamment pas invariante par ce changement d'échelle. De plus, la définition du problème de transport équivalent ne prend pas complètement en compte la forme de la fonction de phase mais seulement son paramètre d'asymétrie. Cependant, on retrouve cette invariance dans de multiples situations : l'équation de diffusion sous l'approximation P1 par exemple (voir Sec. 4.5) est invariante par ce changement d'échelle. On retiendra surtout que le fait de raisonner sur ce problème équivalent à fonction de phase isotrope est très utile en terme d'images physiques et permet de comparer des situations très différentes, indépendamment de la forme de la fonction de phase.

Dans la configuration radiative du photobioréacteur torique Fig. 4.1, $\alpha_s^* = 0.25$, $e^* = 4.4$ et $e_d^* = 1.1$ (en prenant E comme longueur caractéristique). Ce genre de situation typique des photobioréacteurs est qualifié d'intermédiaire, dans le sens où l'épaisseur optique de diffusion $e_d^* = 1.1$ est suffisamment élevée pour que la diffusion joue un rôle significatif (les photons expérimentent en ordre de grandeur l'équivalent d'une diffusion isotrope à la traversée du milieu), sans correspondre pour autant à une "forte" épaisseur optique. Bien que le traitement de cette situation intermédiaire ne soit pas direct, le problème équivalent en transport nous ramène à des images physiques facilement manipulables. Nous passons ainsi dans la section suivante d'une description où les chemins optiques comportent un grand nombre de diffusions vers l'avant (une vingtaine en ordre de grandeur) au régime de la diffusion simple.

4.4 Approximation de la diffusion simple

Il est toujours possible d'écrire la luminance \hat{L} de l'ensemble des photons du système comme la somme des luminances $\hat{L}^{(j)}$ correspondant aux photons ayant vécu exactement j diffusions :

$$\hat{L} = \hat{L}^{(0)} + \hat{L}^{(1)} + \hat{L}^{(2)} + \hat{L}^{(3)} + \dots \quad (4.87)$$

Cela revient simplement à considérer que le nombre total de photons dans un élément de volume $dx d\omega$ de l'espace des phases est la somme des photons ayant vécu j diffusions. Chaque $\hat{L}^{(j)}$ obéit à une équation d'évolution qui lui est propre et dans laquelle un terme source correspond aux photons d'ordre inférieur $\hat{L}^{(j-1)}$ qui diffusent localement dans le volume et passent de la population $(j-1)$ à la population (j) . Dans cette section, nous écrirons tout d'abord ce système composé d'une infinité d'équations couplées (Eq. 4.89 et Eq. 4.97), avec les conditions aux limites associées (Eqs. 4.90-4.91 et Eqs. 4.99-4.100, dans le cas particulier de la configuration du photobioréacteur torique en l'absence de réflexion aux parois et pour une incidence collimatée en $z = 0$). Puis nous ferons l'approximation de la diffusion simple, qui consiste à ne considérer que les chemins optiques comportant zéro ou une diffusion.

$$\hat{L} \simeq \hat{L}^{(0)} + \hat{L}^{(1)} \quad (4.88)$$

Dans la section 4.2.3, la complexité des formulations intégrales (et des images physiques) était due à une forme récursive traduisant le phénomène de diffusion multiple. Ici seuls les deux premiers termes, c'est-à-dire les ordres de diffusion 0 et 1 sont considérés, ce qui simplifie significativement les expressions mathématiques et permet l'obtention de solutions analytiques. Au final, nous ne considérerons donc que deux sous-ensembles de la population de photons : les photons qui arrivent directement des parois sans avoir vécu de diffusion seront appelés "les photons balistiques", et les photons ayant vécu une seule diffusion seront appelés "les photons diffus".

4.4.1 Développement en ordres de diffusion.

Nous étudions dans cette section la configuration du photobioréacteur torique en l'absence de réflexion aux parois et pour une incidence collimatée en $z = 0$. Les photons balistiques obéissent à une équation de transfert radiatif indépendante et, dans notre configuration, seules les sources aux parois contribuent à l'apparition de photons dans cette population. L'équation de transfert radiatif sur $\hat{L}^{(0)}$ comporte donc un terme puits par extinction et

aucun terme source :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.89)$$

avec les conditions aux limites :

- En $z = 0$:

$$\hat{L}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i) \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.90)$$

où $\mu_i = \cos(\theta_i)$ et $\delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i)$ est la distribution de Dirac centrée en $\boldsymbol{\omega}_i$ (voir Fig. 4.1).

- En $z = E$:

$$\hat{L}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (4.91)$$

La solution de $\hat{L}^{(0)}$ est triviale, il s'agit de l'atténuation exponentielle par extinction de la luminance $\frac{q_{\Gamma}}{\mu_i}$ incidente à la paroi :

$$\hat{L}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \exp\left(-k_{ext} \frac{z}{\mu_i}\right) \delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i) \quad (4.92)$$

où z est l'abscisse du point \mathbf{x} . $\hat{L}^{(1)}$ obéit à l'équation de transfert radiatif suivante :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}^{(1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}^{(1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \mathcal{C}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.93)$$

où $\mathcal{C}^{(0)}$ est le terme source dû à la diffusion des photons balistiques en \mathbf{x} dans la direction $\boldsymbol{\omega}$ (voir Fig. 4.4.d, Sec. 4.2) :

$$\mathcal{C}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (4.94)$$

Les conditions aux limites sur $\hat{L}^{(1)}$ sont :

- En $z = 0$:

$$\hat{L}^{(1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.95)$$

- En $z = E$:

$$\hat{L}^{(1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (4.96)$$

puisque aucun photon ayant vécu une diffusion n'est émis ou réfléchi (ici $\rho^{\mathcal{R}} = 0$) aux parois. A l'ordre j , on a :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}^{(j)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}^{(j)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \mathcal{C}^{(j-1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.97)$$

avec

$$\mathcal{C}^{(j-1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(j-1)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (4.98)$$

et les conditions aux limites :

- En $z = 0$:

$$\hat{L}^{(j)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (4.99)$$

- En $z = E$:

$$\hat{L}^{(j)}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (4.100)$$

La luminance s'écrit finalement comme la somme des $\hat{L}^{(j)}$ (voir Eq. 4.87). Le système d'équations que nous venons d'obtenir est fermé à l'ordre zéro puisque la solution de $\hat{L}^{(0)}$ est indépendante des autres et puisque chacune des équations d'ordres $j > 0$ est uniquement couplée à l'ordre inférieur. Ainsi, une troncature du développement consiste simplement à négliger l'existence de certains photons, sans que cela n'entraîne d'erreur sur la description des ordres qui sont retenus.

4.4.2 Mise en œuvre de l'approximation de la diffusion simple dans le photobioréacteur torique

Dans la suite de cette section, nous nous plaçons dans le problème de transport équivalent défini par α_s^* , k_{ext}^* et $p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') = \frac{1}{4\pi}$ (voir Sec. 4.3) et nous ne considérons que les ordres de diffusion 0 et 1 (voir Eq. 4.88). Dans ces conditions,

$$\hat{L}^{(0)}(z, \boldsymbol{\omega}) = \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i) \quad (4.101)$$

et en injectant cette solution dans l'expression de $\mathcal{C}^{(0)}$ Eq. 4.94, on obtient :

$$\mathcal{C}^{(0)}(z, \boldsymbol{\omega}) = \frac{\alpha_s^* k_{ext}^* q_{\Gamma}}{4\pi \mu_i} \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \quad (4.102)$$

Du fait de l'isotropie de la fonction de phase, le terme source $\mathcal{C}^{(0)}(z, \boldsymbol{\omega})$ est indépendant de la direction $\boldsymbol{\omega}$ ($\mathcal{C}^{(0)}$ est isotrope). La solution de l'équation 4.97 sur $\hat{L}^{(1)}$, associée aux conditions aux limites Eqs. 4.95 et 4.96 est obtenue par la méthode de la variation de la constante, ou de manière similaire en considérant que la luminance $\hat{L}^{(1)}(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega}_0)$ est l'intégrale du terme source $\mathcal{C}^{(0)}(\mathbf{x}_1, \boldsymbol{\omega}_0)$ sur l'ensemble des positions \mathbf{x}_1 définies par $\mathbf{x}_1 = \mathbf{x}_0 - s \boldsymbol{\omega}_0$, $s \in [0, +\infty[$, atténué par extinction sur la longueur $\|\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_1\|$. On observe sur la figure 4.10 que cela revient bien à considérer l'ensemble des chemins optiques comprenant une diffusion. Dans la configuration monodimensionnelle étudiée, $\hat{L}^{(1)}(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega}_0)$ ne dépend que de l'abscisse z_0 et du cosinus $\mu_0 = \boldsymbol{\omega}_0 \cdot \mathbf{e}_z$ de la direction considérée. En outre $\|\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_1\| = \left| \frac{z_0 - z_1}{\mu_0} \right|$. Pour les

directions $\mu_0 > 0$, on obtient

$$\hat{L}^{(1)}(z_0, \mu_0) = \int_0^{z_0} \frac{dz_1}{\mu_0} C^{(0)}(z_1) \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z_0 - z_1}{\mu_0}\right) \quad (4.103)$$

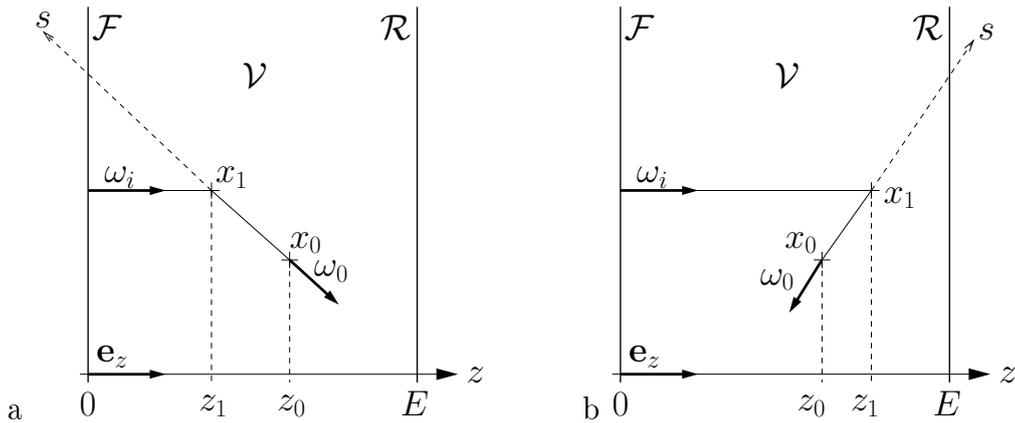


FIGURE 4.10: Chemins de diffusion simple participant à $\hat{L}^{(1)}(z_0, \mu_0)$. a : Pour $\mu_0 > 0$. b : Pour $\mu_0 < 0$.

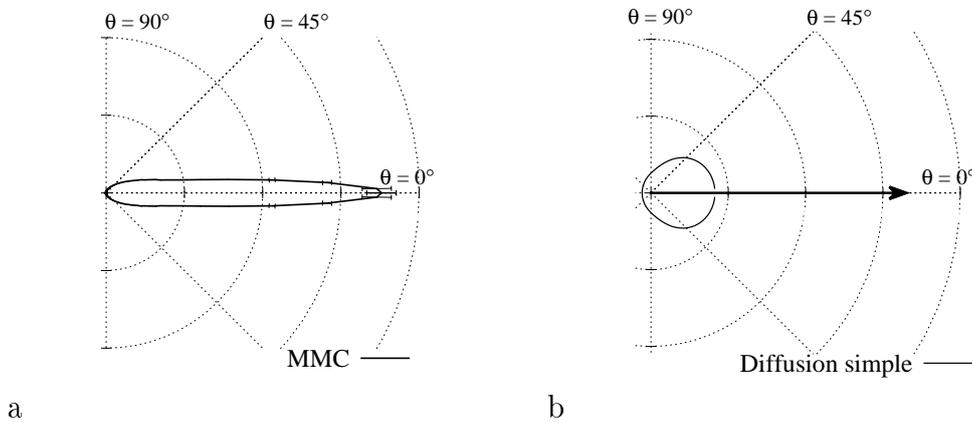


FIGURE 4.11: Distributions angulaires de la luminance $\hat{L}(z_0, \theta)$ à la position $z_0 = 3\text{ cm}$ du photobioréacteur torique Fig. 4.1 : $\rho^{\mathcal{R}} = 0$, incidence collimatée normale. a : Résultats obtenus par la méthode de Monte Carlo (voir Chap. 5), les écarts-types des estimateurs sont donnés en barres d'erreurs. b : Résultats obtenus dans le problème de transport équivalent $\alpha_s^* = 0.25$, $k_{ext}^* = 110\text{ m}^{-1}$ en utilisant l'approximation de la diffusion simple. La flèche représente la partie de la distribution qui est due aux photons balistiques, c'est-à-dire la partie qui est une distribution de Dirac. Cette représentation ne permet pas d'apprécier le poids de la distribution des photons balistiques, pour cela on peut se référer à la figure 4.12.

et pour les directions $\mu_0 < 0$, on obtient

$$\hat{L}^{(1)}(z_0, \mu_0) = \int_{z_0}^E \frac{dz_1}{-\mu_0} \mathcal{C}^{(0)}(z_1) \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z_0 - z_1}{\mu_0}\right) \quad (4.104)$$

En injectant l'expression de $\mathcal{C}^{(0)}(z_1)$ dans ces expressions et en résolvant l'intégration, il vient :

- $\mu_0 > 0$

$$\hat{L}^{(1)}(z_0, \mu_0) = \frac{\alpha_s^*}{4\pi} \frac{q_\Gamma}{\mu_0 - \mu_i} \left[\exp\left(-k_{ext}^* \frac{z_0}{\mu_0}\right) - \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z_0}{\mu_i}\right) \right] \quad (4.105)$$

- $\mu_0 < 0$

$$\hat{L}^{(1)}(z_0, \mu_0) = \frac{\alpha_s^*}{4\pi} \frac{q_\Gamma}{\mu_0 - \mu_i} \left[\exp\left(-k_{ext}^* \frac{E}{\mu_i}\right) \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z_0 - E}{\mu_0}\right) - \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z_0}{\mu_i}\right) \right] \quad (4.106)$$

Enfin, la luminance totale $\hat{L}(z_0, \boldsymbol{\omega}_0)$ est approximée comme :

$$\hat{L}(z_0, \boldsymbol{\omega}_0) \simeq \hat{L}^{(0)}(z_0, \boldsymbol{\omega}_0) + \hat{L}^{(1)}(z_0, \mu_0) \quad (4.107)$$

La figure 4.11 présente la distribution angulaire de \hat{L} à l'abscisse $z_0 = 3 \text{ cm}$ obtenue par l'approximation de la diffusion simple pour le problème de transport équivalent α_s^* , k_{ext}^* , ainsi que celle donnée par la méthode de Monte Carlo pour α_s , k_{ext} et la fonction de phase de *Chlamydomonas reinhardtii*. Nous comparons ici la solution de référence (Monte Carlo) à l'association des images de la diffusion simple et du problème équivalent en transport. Dans la situation de référence, le faisceau de photons balistiques est totalement atténué à la position considérée. Tous les photons participant à \hat{L} ont vécu au moins une diffusion, mais ils sont très peu déviés de leur direction de départ du fait de la forte orientation vers l'avant de la fonction de phase. Ceci aboutit à une distribution angulaire de la luminance extrêmement orientée autour de la direction d'incidence. Dans le problème de transport équivalent en diffusion simple, cette distribution est remplacée par la somme d'une distribution de Dirac dans la direction d'incidence (contribution des photons balistiques qui représentent ici $\sim 75\%$ des photons) et d'une distribution d'ouverture angulaire relativement large (contribution des photons diffus).

L'intégration de la luminance $\hat{L}(z, \boldsymbol{\omega})$ sur toutes les directions $\boldsymbol{\omega}$ donne l'irradiance locale $\hat{G}(z)$:

$$\hat{G}(z) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(z, \boldsymbol{\omega}) \simeq \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}^{(0)}(z, \boldsymbol{\omega}) + \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}^{(1)}(z, \boldsymbol{\omega}) = \hat{G}^{(0)}(z) + \hat{G}^{(1)}(z) \quad (4.108)$$

où $\hat{G}^{(0)}$ est l'irradiance due aux photons balistiques et $\hat{G}^{(1)}$ est l'irradiance due aux photons ayant vécu une seule diffusion. L'expression de $\hat{G}^{(0)} = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \frac{q_\Omega}{\mu_i} \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \delta(\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\omega}_i)$ est tout simplement une atténuation exponentielle :

$$\hat{G}^{(0)}(z) = \frac{q_\Omega}{\mu_i} \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \quad (4.109)$$

Dans le cas particulier de la configuration radiative considérée, l'expression de $\hat{G}^{(1)}$ est analytique :

$$\begin{aligned} \hat{G}^{(1)}(z) = & \frac{\alpha_s^*}{2} q_\Omega \times \\ & \left\{ \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \left(Ei\left[k_{ext}^* z \frac{1-\mu_i}{\mu_i}\right] - Ei\left[-k_{ext}^*(E-z) \frac{1+\mu_i}{\mu_i}\right] + \log\left[\frac{1+\mu_i}{1-\mu_i}\right] \right) \right. \\ & \left. - Ei[-k_{ext}^* z] + \exp\left(-k_{ext}^* \frac{E}{\mu_i}\right) Ei[-k_{ext}^*(E-z)] \right\} \end{aligned} \quad (4.110)$$

où Ei est la fonction exponentielle intégrale $Ei(x) = -\int_{-x}^{\infty} dt \frac{e^{-t}}{t}$, qui est disponible dans la plupart des bibliothèques de calcul scientifique. L'évaluation numérique de $\hat{G}^{(1)}$ est très simple et extrêmement rapide. On remarque que pour les dérivations mathématiques, il est souvent plus pratique de travailler avec la fonction gamma incomplète $\Gamma[n, x] = \int_x^{\infty} dt t^{n-1} e^{-t}$ qui est reliée à l'exponentielle intégrale par $Ei(x) = -\Gamma[0, -x]$. Les quelques étapes importantes pour l'obtention de l'expression de $\hat{G}^{(1)}(z)$ sont données dans l'encart 2. Dans le cas d'une incidence normale $\mu_i \rightarrow 1$, $\hat{G}^{(1)}$ devient :

$$\begin{aligned} \hat{G}^{(1)}(z; \mu_i = 1) = & \frac{\alpha_s^*}{2} q_\Omega \left\{ \exp(-k_{ext}^* z) (\gamma + \log[2] + \log[k_{ext}^* z] - Ei[-2k_{ext}^*(E-z)]) \right. \\ & \left. - Ei[-k_{ext}^* z] + \exp(-k_{ext}^* E) Ei[-k_{ext}^*(E-z)] \right\} \end{aligned} \quad (4.111)$$

où $\gamma \simeq 0.577$ est la constante d'Euler-Mascheroni.

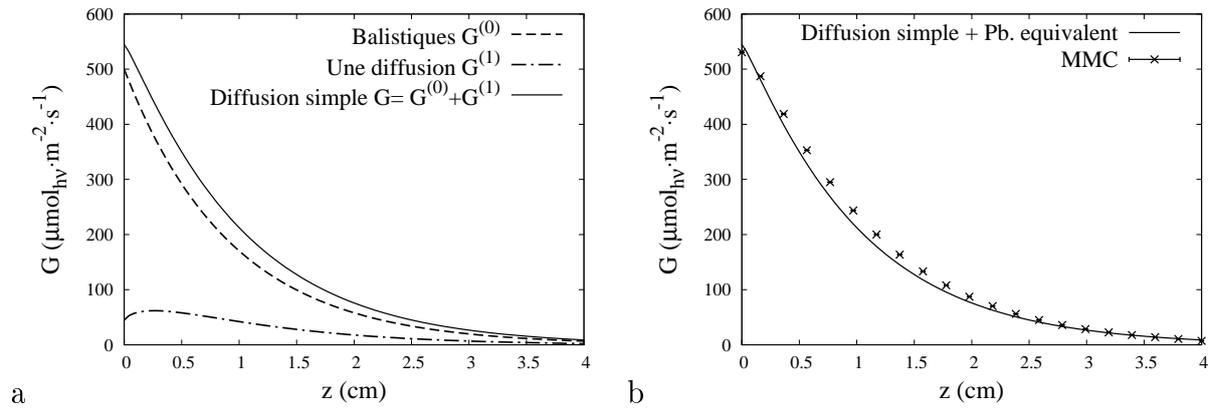


FIGURE 4.12: Champ d'irradiance \hat{G} dans le photobioréacteur Fig. 4.1; $\rho^{\mathcal{R}} = 0$; incidence collimatée normale. Résultats du problème de transport équivalent $\alpha_s^* = 0.25$, $k_{ext}^* = 110 \text{ m}^{-1}$ pour l'approximation de la diffusion simple. a : Proportion de photons balistiques et diffus. b : Comparaison avec la solution de référence (Méthode de Monte Carlo, MMC).

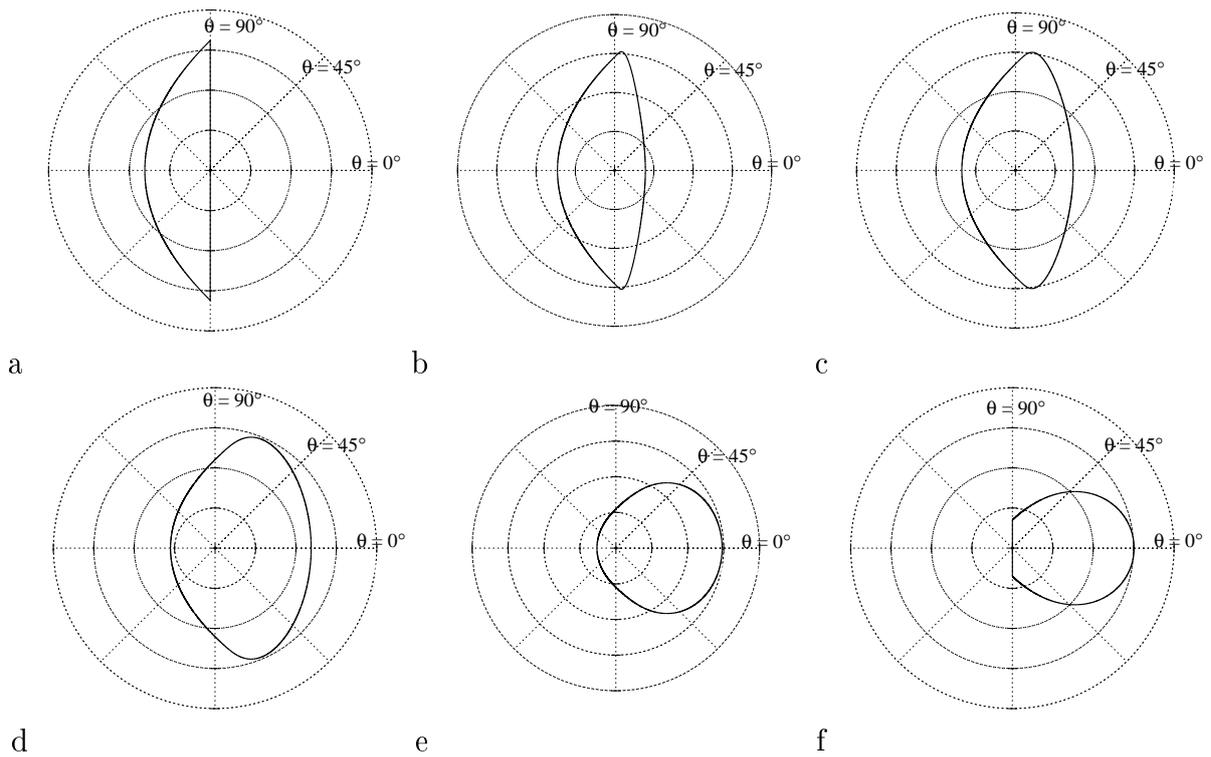


FIGURE 4.13: Distributions angulaires de la luminance diffuse $\hat{L}^{(1)}(z_0, \theta)$ pour différents z_0 dans le réacteur Fig. 4.1; $\rho^{\mathcal{R}} = 0$; incidence collimatée normale. Résultats du problème de transport équivalent $\alpha_s^* = 0.25$, $k_{ext}^* = 110 \text{ m}^{-1}$ pour l'approximation de la diffusion simple. a : $z_0 = 0$. b : $z_0 = 2.5 \text{ mm}$. c : $z_0 = 5 \text{ mm}$. d : $z_0 = 1 \text{ cm}$. e : $z_0 = 2.5 \text{ cm}$. f : $z_0 = 4 \text{ cm}$.

Le champ d'irradiance obtenu par l'approximation de la diffusion simple dans le photobioréacteur torique est donné à la figure 4.12. La figure 4.12.a montre la proportion de photons balistiques et diffus dans le volume réactionnel. Comme l'épaisseur optique de transport $e_d^* = 1.1$ l'indique, les photons diffus sont minoritaires mais ne sont pas pour autant négligeables. La figure 4.12.b montre la comparaison entre la solution de référence (méthode de Monte Carlo) et les résultats obtenus par la conjonction du problème équivalent en transport et de l'approximation de la diffusion simple. Compte-tenu de l'accord observé, nous retiendrons que les images physiques simples développées ici sont pertinentes pour l'analyse du procédé, notamment la substitution de la fonction de distribution observée à la figure 4.11 par la somme d'une distribution de Dirac et d'une distribution d'ouverture angulaire plus large. La distribution angulaire de la luminance des photons diffus $\hat{L}^{(1)}$ pour différentes abscisses du photobioréacteur est donnée à la figure 4.13. La description des photons balistiques est triviale et toute la difficulté de l'analyse est ramenée à la description des photons diffus, qui correspondent à une luminance relativement proche de l'isotropie. Ceci nous permettra en particulier d'utiliser dans la section suivante d'autres images pour arriver à une description macroscopique.

Encart 2 INTÉGRATION DE LA LUMINANCE DIFFUSE $\hat{L}^{(1)}$ POUR L'OBTENTION DE $\hat{G}^{(1)}$

L'expression de $\hat{G}^{(1)}$ est obtenue en intégrant Eq. 4.105 sur l'angle solide total et en remarquant que $\hat{L}^{(1)}$ ne dépend que de μ_0 :

$$\hat{G}^{(1)} = \int_{4\pi} d\omega_0 \hat{L}^{(1)}(\mu_0) = 2\pi \int_{-1}^1 d\mu_0 \hat{L}^{(1)}(\mu_0) \quad (4.112)$$

On note \hat{G}^+ la luminance diffuse due aux photons qui se propagent avec des directions correspondant à $\mu_0 > 0$:

$$\hat{G}^+(z_0) = \int_0^{z_0} dz_1 \mathcal{C}^{(0)}(z_1) 2\pi \int_0^1 d\mu_0 \frac{\exp\left(-k \frac{z_0 - z_1}{\mu_0}\right)}{\mu_0} \quad (4.113)$$

où le coefficient d'extinction k_{ext} est noté k pour plus de lisibilité et où

$$\int_0^1 d\mu_0 \frac{\exp\left(-k \frac{z_0 - z_1}{\mu_0}\right)}{\mu_0} = \Gamma[0, k(z_0 - z_1)] \quad (4.114)$$

d'après la définition de la fonction gamma incomplète donnée dans le corps du texte.

Il vient :

$$\hat{G}^+(z_0) = \frac{\alpha_s k}{2} \frac{q_\Gamma}{\mu_i} \int_0^{z_0} dz_1 \exp\left(-k \frac{z_1}{\mu_i}\right) \Gamma[0, k(z_0 - z_1)] \quad (4.115)$$

qui s'intègre analytiquement pour donner

$$\hat{G}^+(z_0) = \frac{\alpha_s}{2} q_\Gamma \left\{ \exp\left(-k \frac{z_0}{\mu_i}\right) \left(Ei \left[kz_0 \frac{1 - \mu_i}{\mu_i} \right] - \log \left[\frac{1 - \mu_i}{\mu_i} \right] \right) - Ei[-kz_0] \right\} \quad (4.116)$$

De manière identique, on note \hat{G}^- la luminance diffuse due aux photons qui se propagent avec des directions correspondant à $\mu_0 < 0$:

$$\hat{G}^-(z_0) = \int_{z_0}^E dz_1 \mathcal{C}^{(0)}(z_1) 2\pi \int_{-1}^0 d\mu_o \frac{\exp\left(-k \frac{z_0 - z_1}{\mu_o}\right)}{-\mu_o} \quad (4.117)$$

où

$$\int_{-1}^0 d\mu_o \frac{\exp\left(-k \frac{z_0 - z_1}{\mu_o}\right)}{-\mu_o} = \Gamma[0, -k(z_0 - z_1)] \quad (4.118)$$

Il vient :

$$\hat{G}^-(z_0) = \frac{\alpha_s k}{2} \frac{q_\Gamma}{\mu_i} \int_{z_0}^E dz_1 \exp\left(-k \frac{z_1}{\mu_i}\right) \Gamma[0, -k(z_0 - z_1)] \quad (4.119)$$

qui s'intègre analytiquement pour donner

$$\hat{G}^-(z_0) = \frac{\alpha_s}{2} q_\Gamma \left\{ \exp\left(-k \frac{z_0}{\mu_i}\right) \left(-Ei \left[-k(E - z_0) \frac{1 + \mu_i}{\mu_i} \right] - \log \left[\frac{1 + \mu_i}{\mu_i} \right] \right) + \exp\left(-k \frac{E}{\mu_i}\right) Ei[-k(E - z_0)] \right\} \quad (4.120)$$

L'irradiance diffuse est

$$\hat{G}^{(1)} = \hat{G}^+ + \hat{G}^- \quad (4.121)$$

dont la limite en $\mu_i \rightarrow 1$ est obtenue en remarquant que

$$\lim_{\mu_i \rightarrow 1} Ei \left[kz_0 \frac{1 - \mu_i}{\mu_i} \right] - \log \left[\frac{1 - \mu_i}{\mu_i} \right] = \gamma + \log[kz_0] \quad (4.122)$$

avec γ la constante d'Euler-Mascheroni.

4.5 Approximation macroscopique P1

4.5.1 Dérivation de l'équation de diffusion à partir de l'équation de transfert radiatif

L'objectif de cette section est d'obtenir une équation d'évolution spatiale de type diffusion pour la densité de photons (voir Eq. 4.151). Nous décrivons ici le passage de l'équation de transfert radiatif vers l'équation de diffusion, à partir de l'approximation P1 (voir paragraphe 4.5.1.1), afin de mettre en exergue le lien entre la description macroscopique et le point de vue mésoscopique sous-jacent que nous avons développé dans les sections précédentes.

Partons de l'équation de transfert radiatif stationnaire :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') + S(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.123)$$

où par rapport à l'équation 4.34, un terme source $S(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$ a été ajouté afin de garder la possibilité d'une séparation de la population de photons en ordre de diffusion comme dans la section précédente. Le passage à l'équation de diffusion se fait en intégrant l'équation de transfert radiatif sur l'ensemble des directions de propagation $\boldsymbol{\omega}$ afin d'obtenir un jeu d'équations sur les descripteurs macroscopiques : l'irradiance

$$\hat{G}(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \quad (4.124)$$

et le vecteur densité surfacique de flux

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \boldsymbol{\omega} \quad (4.125)$$

On montre dans l'encart 3 qu'en intégrant l'équation de transfert radiatif sur les directions de propagation $\boldsymbol{\omega}$, on obtient l'équation macroscopique suivante :

$$Div_{\mathbf{x}} \mathbf{j}(\mathbf{x}) = -k_{ext}(1 - \alpha_s) \hat{G}(\mathbf{x}) + S_{\hat{G}}(\mathbf{x}) \quad (4.126)$$

où $Div_{\mathbf{x}}$ est l'opérateur divergence par rapport à la position \mathbf{x} , $k_{ext}(1 - \alpha_s)$ est égal au coefficient d'absorption k_a et $S_{\hat{G}} = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} S(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$. La divergence du flux de photons résulte donc d'une balance entre leur taux de "disparition" par absorption, qui dans le cadre des images de la statistique corpusculaire est bien localement proportionnel à leur nombre, et leur taux "d'apparition" de par le terme source $S_{\hat{G}}(\mathbf{x})$. On note que l'équation 4.126 a été

obtenue sans aucune approximation. On montre dans l'encart 3 qu'en multipliant l'équation de transfert radiatif par $\boldsymbol{\omega}$ puis en l'intégrant, on obtient l'équation suivante :

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \left[\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \left(\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \right) \cdot \boldsymbol{\omega} \right] = -k_{ext}(1 - \alpha_s g) \mathbf{j}(\mathbf{x}) + \mathbf{S}_j(\mathbf{x}) \quad (4.127)$$

où $\mathbf{S}_j = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} S(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \boldsymbol{\omega}$ est le vecteur *source de flux*. Les deux termes de droite Eq. 4.127 ont été obtenus sans approximations, mais le terme de gauche, qui est l'intégration du terme de transport de l'équation de transfert radiatif multiplié par $\boldsymbol{\omega}$, ne peut pas être exprimé en fonction des descripteurs macroscopiques sans faire une approximation sur la fonction de distribution (nous choisirons ici l'approximation P1).

Encart 3 INTÉGRATION DE L'ÉQUATION DE TRANSFERT RADIATIF EQ. 4.123 SUR LES DIRECTIONS $\boldsymbol{\omega}$.

Toutes les dérivations suivantes supposent que les propriétés radiatives du milieu sont indépendantes de la direction de propagation des photons, ce qui est bien vérifié dans le cadre de l'étude des photobioréacteurs. L'équation macroscopique sur l'irradiance Eq. 4.126 est obtenue en intégrant l'équation de transfert radiatif sur les directions de propagation $\boldsymbol{\omega}$. Procédons terme à terme.

- *Terme puits :*

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \left[-k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \right] = -k_{ext} \hat{G}(\mathbf{x}) \quad (4.128)$$

- *Terme source par diffusion :*

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \left[\alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] = \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (4.129)$$

or la normalisation de la fonction de phase impose

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') = 1 \quad (4.130)$$

ce qui donne

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \left[\alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] = \alpha_s k_{ext} \hat{G}(\mathbf{x}) \quad (4.131)$$

- *Terme source $S(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$: on note*

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} [S(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})] = S_{\hat{G}}(\mathbf{x}) \quad (4.132)$$

- Terme de transport :

$$\int_{4\pi} d\omega \left[\omega \cdot \mathbf{grad}_x \hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \right] = \int_{4\pi} d\omega \operatorname{Div}_x \left[\omega \hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \right] = \operatorname{Div}_x \left[\int_{4\pi} d\omega \omega \hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \right] \quad (4.133)$$

où Div_x est la divergence par rapport à la variable \mathbf{x} . En effet, \mathbf{x} et ω étant deux variables indépendantes $\operatorname{Div}_x [\omega] = 0$. Il vient :

$$\int_{4\pi} d\omega \left[\omega \cdot \mathbf{grad}_x \hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \right] = \operatorname{Div}_x \mathbf{j}(\mathbf{x}) \quad (4.134)$$

d'après la définition de $\mathbf{j}(\mathbf{x})$.

L'équation macroscopique sur le vecteur densité de flux Eq. 4.127 est obtenue en multipliant l'équation de transfert radiatif par ω puis en l'intégrant. Procédons encore une fois terme à terme.

- Terme puits :

$$\int_{4\pi} d\omega \left[-k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \omega \right] = -k_{ext} \mathbf{j}(\mathbf{x}) \quad (4.135)$$

- Terme source par diffusion :

$$\int_{4\pi} d\omega \left[\alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\omega' \hat{L}(\mathbf{x}, \omega') p_\Omega(\omega|\omega') \omega \right] = \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\omega' \hat{L}(\mathbf{x}, \omega') \int_{4\pi} d\omega p_\Omega(\omega|\omega') \omega \quad (4.136)$$

Si la fonction de phase $p_\Omega(\omega|\omega')$ est symétrique autour de la direction ω' , ce qui est le cas pour les micro-organismes, alors $\int_{4\pi} d\omega p_\Omega(\omega|\omega') \omega$ est orienté suivant ω' :

$$\int_{4\pi} d\omega p_\Omega(\omega|\omega') \omega = g \omega' \quad (4.137)$$

où on a bien la définition du paramètre d'asymétrie (en multipliant cette expression par ω')

$$g = \int_{4\pi} d\omega p_\Omega(\omega|\omega') \omega \cdot \omega' \quad (4.138)$$

D'après l'équation 4.137 et la définition de \mathbf{j} Eq. 4.125, il vient

$$\int_{4\pi} d\omega \left[\alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\omega' \hat{L}(\mathbf{x}, \omega') p_\Omega(\omega|\omega') \omega \right] = k_{ext} \alpha_s g \mathbf{j}(\mathbf{x}) \quad (4.139)$$

- Terme source $S(\mathbf{x}, \omega)$: on note

$$\int_{4\pi} d\omega [S(\mathbf{x}, \omega) \omega] = \mathbf{S}_j(\mathbf{x}) \quad (4.140)$$

qui est un vecteur source de flux.

- Enfin, pour évaluer le terme de transport, il faudra faire une approximation sur la luminance (par exemple l'approximation P1, voir paragraphe suivant).

4.5.1.1 Approximation P1

On rappelle le terme de l'équation 4.127 qui est dû à l'intégration du terme de transport de l'équation de transfert radiatif et qui ne pouvait pas être exprimé en fonction des descripteurs macroscopiques sans faire une approximation sur la distribution angulaire de la luminance :

$$\int_{4\pi} d\omega \left[\omega \cdot \mathbf{grad}_x \left(\hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \right) \cdot \omega \right] \quad (4.141)$$

Nous choisissons ici l'approximation P1 qui consiste à modéliser \hat{L} par un développement à l'ordre 1 en harmoniques sphériques. A l'ordre zéro (approximation P0), \hat{L} est isotrope :

$$\hat{L}_{P0}(\mathbf{x}, \omega) = \frac{\hat{G}_{P0}(\mathbf{x})}{4\pi} \quad (4.142)$$

qui assure la définition $\hat{G}_{P0} = \int_{4\pi} d\omega \hat{L}_{P0}(\mathbf{x}, \omega)$. A l'ordre 1, l'approximation P1 s'écrit :

$$\hat{L}_{P1}(\mathbf{x}, \omega) = \frac{\hat{G}_{P1}(\mathbf{x})}{4\pi} + \frac{\mathbf{j}_{P1}(\mathbf{x}) \cdot \omega}{4\pi} \quad (4.143)$$

qui assure la définition $\mathbf{j}_{P1}(\mathbf{x}) = \int_{4\pi} d\omega \hat{L}_{P1}(\mathbf{x}, \omega) \omega$ et ne modifie pas la définition de l'irradiance : $\hat{G}_{P1} = \hat{G}_{P0}$ puisque l'intégrale de $\mathbf{j}_{P1}(\mathbf{x}) \cdot \omega$ sur toutes les directions est nulle. L'approximation P1 consiste donc à supposer que la luminance est la somme d'une constante et d'un cosinus³. Lors de l'écriture de l'intégrale Eq. 4.141, le terme en cosinus s'annule (intégration sur l'angle solide total) et la contribution du terme d'ordre 0 donne (voir encart 4) :

$$\int_{4\pi} d\omega \left[\omega \cdot \mathbf{grad}_x \left(\hat{L}(\mathbf{x}, \omega) \right) \cdot \omega \right] \simeq \int_{4\pi} d\omega \left[\omega \cdot \mathbf{grad}_x \left(\hat{L}_{P1}(\mathbf{x}, \omega) \right) \cdot \omega \right] = \frac{1}{3} \mathbf{grad}_x \hat{G}_{P1}(\mathbf{x}) \quad (4.144)$$

3. Dans le cas particulier d'une configuration monodimensionnelle plan parallèle, l'approximation P1 sur la luminance s'écrit :

$$\hat{L}_{P1}(\mathbf{x}, \omega) = \frac{\hat{G}_{P1}(\mathbf{x})}{4\pi} + \frac{\|\mathbf{j}_{P1}(\mathbf{x})\|}{4\pi} \cos(\theta)$$

où θ est l'angle entre \mathbf{e}_z et la direction ω (voir Fig. 4.1).

L'équation 4.127 sur le vecteur densité de flux s'exprime alors sous la forme :

$$\frac{1}{3} \mathbf{grad}_x \hat{G}_{P1}(\mathbf{x}) = -k_{ext}(1 - \alpha_s g) \mathbf{j}_{P1}(\mathbf{x}) + \mathbf{S}_j(\mathbf{x}) \quad (4.145)$$

Dans la suite de cette section, il sera implicite que \hat{G} et \mathbf{j} correspondent à l'approximation P1, et l'expression ci-dessus s'écrit (en supprimant les indices "P1") :

$$\frac{1}{3} \mathbf{grad}_x \hat{G}(\mathbf{x}) = -k_{ext}(1 - \alpha_s g) \mathbf{j}(\mathbf{x}) + \mathbf{S}_j(\mathbf{x}) \quad (4.146)$$

D'où l'on tire :

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}) = -D \mathbf{grad}_x \hat{G}(\mathbf{x}) + \frac{\mathbf{S}_j(\mathbf{x})}{k_{ext}(1 - \alpha_s g)} \quad (4.147)$$

où le coefficient de diffusion D est

$$D = \frac{1}{3 k_{ext}(1 - \alpha_s g)} \quad (4.148)$$

Dans l'équation 4.147, on reconnaît un terme correspondant à la loi de Fick ($\mathbf{j}(\mathbf{x}) = -D \mathbf{grad}_x \hat{G}(\mathbf{x})$) : il s'agit de l'image macroscopique classique où les particules descendent les gradients de densité. Le flux de photons est donc orienté suivant l'opposé du gradient de l'irradiance. Ce comportement peut être interprété comme un rappel à l'équilibre dans le sens où ce déplacement tend à homogénéiser le champ d'irradiance. On remarque que le coefficient de diffusion D ne dépend que du coefficient d'extinction $k_{ext}^* = k_{ext}(1 - \alpha_s g)$ du problème équivalent de transport défini à la section 4.3.

Encart 4 INTÉGRATION DU TERME DE TRANSPORT DE L'ÉQUATION DE TRANSFERT RADIATIF DANS LE CADRE DE L'APPROXIMATION P1.

Le terme $\frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}) \cdot \boldsymbol{\omega}}{4\pi}$ de la luminance n'apporte pas de contribution à l'intégrale Eq. 4.141. Le terme $\frac{\hat{G}(\mathbf{x})}{4\pi}$ donne :

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \left[\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_x \left(\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \right) \cdot \boldsymbol{\omega} \right] = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \left(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_x \hat{G}(\mathbf{x}) \right) \cdot \boldsymbol{\omega} \quad (4.149)$$

Or

$$\int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} (\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{A}) \cdot \boldsymbol{\omega} = \frac{4\pi}{3} \mathbf{A} \quad (4.150)$$

pour tout vecteur \mathbf{A} indépendant de $\boldsymbol{\omega}$. On obtient ainsi l'équation 4.144.

4.5.1.2 Equation de la diffusion

En substituant l'équation 4.147 dans l'équation 4.126, on obtient une équation de diffusion avec termes source et puits :

$$-D\nabla^2 \hat{G}(\mathbf{x}) = -k_a \hat{G}(\mathbf{x}) + S_{\hat{G}}(\mathbf{x}) - Div \left[\frac{\mathbf{S}_j(\mathbf{x})}{k_{ext}(1 - \alpha_s g)} \right] \quad (4.151)$$

où ∇^2 est l'opérateur laplacien par rapport à la position \mathbf{x} , Div est l'opérateur divergence par rapport à la position \mathbf{x} , k_a et k_{ext} sont respectivement les coefficients d'absorption et d'extinction, α_s est l'albédo de diffusion simple, g est le paramètre d'asymétrie de la fonction de phase, $S_{\hat{G}}$ et \mathbf{S}_j sont respectivement des termes sources en irradiance et en flux, et D est le coefficient de diffusion macroscopique :

$$D = \frac{1}{3 k_{ext}(1 - \alpha_s g)} = \frac{1}{3 k_{ext}^*} \quad (4.152)$$

4.5.2 Conditions aux limites

La transposition des conditions aux limites mésoscopiques Eqs. 4.35, 4.36 et 4.37 à la description macroscopique issue de l'approximation P1 pose un certain nombre de problèmes qui sont bien identifiés dans la littérature [117, 118, 111]. Dans cette section, nous proposons une lecture générale (incluant notamment le traitement de la réflexion aux parois) de la forme fonctionnelle Eq. 4.166 qui est souvent employée pour l'expression des conditions aux limites de l'équation de la diffusion Eq. 4.151. Au terme de cette discussion, nous aboutirons aux conditions aux limites Eqs. 4.171 et 4.172 qui seront utilisées à partir de la section 4.5.3 pour traiter notre exemple du photobioréacteur torique.

Aux parois du système, la distribution angulaire de la luminance est toujours discontinue à la jonction entre les hémisphères entrant et sortant (sauf dans une situation d'équilibre strict, voir Fig. 4.14 pour le cas particulier d'une incidence lambertienne, bien que cette hypothèse ne soit pas nécessaire aux discussions suivantes). L'hypothèse P1, qui modélise la luminance comme une fonction angulaire continue composée d'une constante et d'un cosinus, ne peut donc pas être vérifiée aux parois. Tout l'enjeu de l'écriture des conditions aux limites est d'assurer que l'irradiance et la densité de flux soient décrits avec le même ordre d'approximation aux parois et dans le champ. Cette problématique constitue en elle-même une thématique de recherche et les discussions qui suivent ne prennent pas en compte les développements les plus aboutis dans ce domaine. Une thèse se déroulant actuellement entre les laboratoires LAPLACE et RAPSODEE s'intéresse entre autres à la formulation de

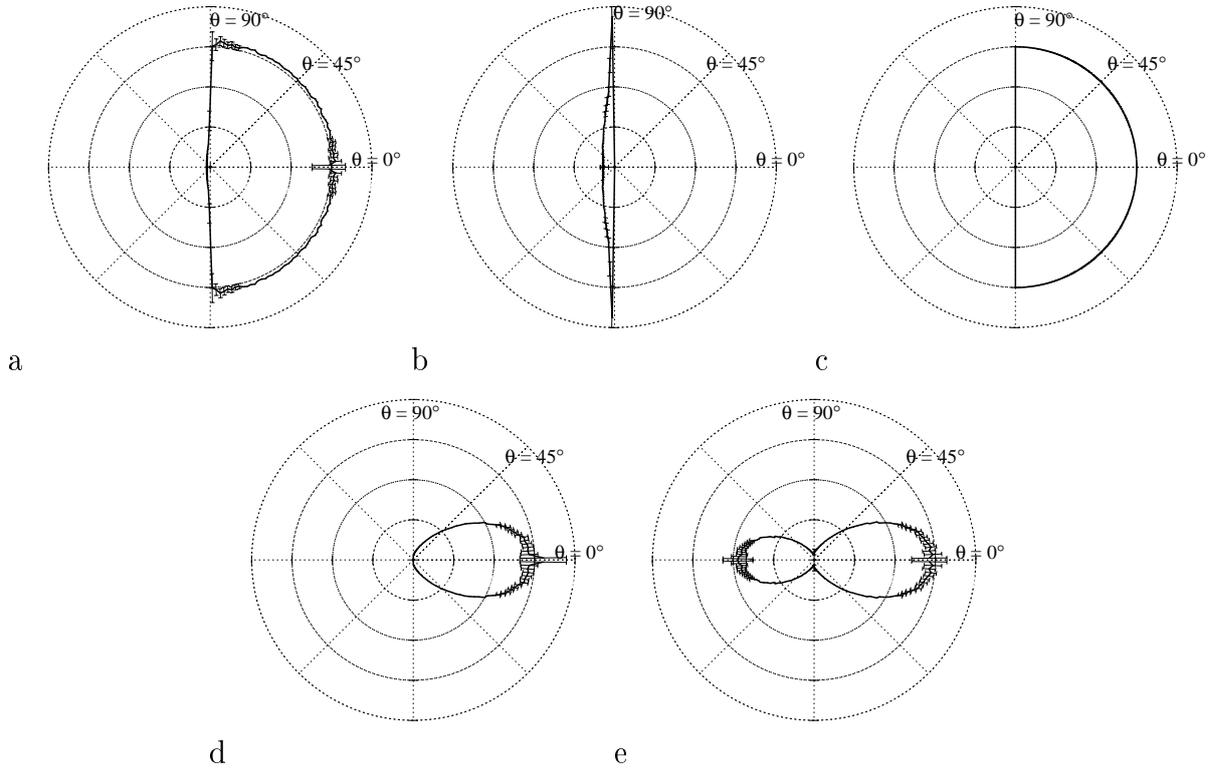


FIGURE 4.14: Distributions angulaires de la luminance aux parois du photobioréacteur torique Fig. 4.1 ; incidence lambertienne (choix arbitraire, l'écriture des conditions aux limites pour les incidences collimatées s'illustre de la même façon). Résultats obtenus par la méthode de Monte Carlo. a, b & c : paroi \mathcal{F} en $z = 0$. a : Luminance totale \hat{L} . b : Luminance diffuse $\hat{L}^{(d)}$. c : Luminance balistique $\hat{L}^{(0)}$. d & e : Luminance totale \hat{L} à la paroi \mathcal{R} en $z = E$. d : Pour $\rho^{\mathcal{R}} = 0$. e : Pour $\rho^{\mathcal{R}} = 0.54$.

ces conditions aux limites dans les milieux d'épaisseur intermédiaire tels que ceux étudiés dans ce mémoire [116].

Les conditions aux limites associées à l'équation de diffusion peuvent être de trois types :

- la valeur de \hat{G} est fixée aux limites,
- la valeur de \mathbf{j} est fixée,
- on suppose une relation linéaire entre les valeurs de \hat{G} et de \mathbf{j} (appelées conditions de Marshak en transfert radiatif).

Dans notre cas d'étude, il est impossible de postuler a priori la valeur de l'irradiance ou du flux à la paroi, mais il est possible de dériver une relation entre ces deux grandeurs afin de travailler avec les conditions aux limites de Marshak. Plus précisément, nous allons dériver

une relation entre \hat{G} et la densité surfacique de flux net q à la paroi :

$$q = \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} \quad (4.153)$$

où \mathbf{n} est la normale de la paroi. \mathbf{n} est orientée vers l'intérieur du système entraînant la convention $q > 0$ pour un flux entrant. Afin de dériver une relation linéaire entre \hat{G} et q en se basant sur des considérations physiques, il est pratique de séparer le traitement des photons balistiques et diffus. Nous pratiquons cette séparation uniquement aux parois mais l'irradiance dans l'équation de diffusion décrit toujours l'ensemble des photons. Cette pratique permet entre autres de tirer bénéfice de la connaissance parfaite des photons balistiques à la paroi en $z = 0$ puisque leur luminance est donnée par les conditions aux limites mésoscopiques (il s'agit d'une donnée du problème). On note $L^{(0)}$, $\hat{G}^{(0)}$ et $q^{(0)}$ la luminance, l'irradiance et la densité de flux des photons balistiques et $L^{(d)}$, $\hat{G}^{(d)}$ et $q^{(d)}$ celles de tous les autres photons, c'est-à-dire des photons ayant vécu au moins une diffusion. Contrairement à l'approximation de la diffusion simple, il ne s'agit pas ici d'une approximation puisque tous les photons sont considérés :

$$L^{(d)} = \sum_{j=1}^{\infty} L^{(j)} \quad (4.154)$$

La densité de flux à la paroi s'écrit $q = q^{(0)} + q^{(d)}$, où la densité $q^{(d)}$ est toujours négative puisque les photons diffus viennent du volume réactionnel (où ils ont vécu leur première diffusion) et sortent du milieu par les parois. Dans toutes les dérivations mathématiques qui suivent, on se place à la paroi et la variable spatiale est omise afin d'alléger les écritures. La figure 4.14 illustre les images physiques utilisées. $q^{(d)}$ s'écrit :

$$q^{(d)} = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} L^{(d)}(\boldsymbol{\omega}) \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} \quad (4.155)$$

Les conditions aux limites mésoscopiques fixent $L^{(d)}$ pour les directions entrantes. Dans le cas général d'une réflexion spéculaire à une paroi de réflectivité ρ (voir Eq. 4.37), on a

$$L^{(d)}(\boldsymbol{\omega}) = \rho L^{(d)}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}) \quad (4.156)$$

où $\boldsymbol{\omega}$ et $-\boldsymbol{\omega}^{spec}$ appartiennent respectivement à l'hémisphère entrant et sortant. Il vient :

$$q^{(d)} = (1 - \rho) \int_{2\pi^-} d\boldsymbol{\omega} L^{(d)}(\boldsymbol{\omega}) \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} \quad (4.157)$$

où $2\pi^-$ est l'hémisphère d'angle solide sortant défini tel que $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}$ est négatif (on retrouve

$q^{(d)} < 0$). On introduit la moyenne $\langle \mu \rangle^-$ des cosinus des directions de sortie des photons diffus. En d'autres termes, $\langle \mu \rangle^-$ est la moyenne des cosinus des directions de sortie des chemins de diffusion multiples (chemins de premier retour, voir [115] pour une description de ces chemins dans le cadre de l'approximation P1), pondérés par l'atténuation le long des chemins :

$$\langle \mu \rangle^- = \int_{2\pi^-} d\boldsymbol{\omega} p_{\boldsymbol{\Omega}}(\boldsymbol{\omega}) |\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}| \quad (4.158)$$

où l'on remarque que $\langle \mu \rangle^- > 0$ et où $p_{\boldsymbol{\Omega}}(\boldsymbol{\omega})$ est la densité de probabilité des directions de sortie des photons diffus :

$$p_{\boldsymbol{\Omega}}(\boldsymbol{\omega}) = \frac{L^{(d)}(\boldsymbol{\omega})}{\int_{2\pi^-} d\boldsymbol{\omega} L^{(d)}(\boldsymbol{\omega})} \quad (4.159)$$

Enfin, d'après les conditions aux limites mésoscopiques Eq. 4.156, l'irradiance diffuse s'écrit :

$$\hat{G}^{(d)} = \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} L^{(d)}(\boldsymbol{\omega}) = (1 + \rho) \int_{2\pi^-} d\boldsymbol{\omega} L^{(d)}(\boldsymbol{\omega}) \quad (4.160)$$

En utilisant les trois équations précédentes, la densité surfacique de flux diffus à la paroi Eq. 4.157 s'écrit :

$$q^{(d)} = -\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \langle \mu \rangle^- \hat{G}^{(d)} \quad (4.161)$$

La densité de flux totale est

$$q = q^{(0)} + q^{(d)} = q^{(0)} - \frac{1 - \rho}{1 + \rho} \langle \mu \rangle^- \hat{G}^{(d)} \quad (4.162)$$

et en injectant $\hat{G}^{(d)} = \hat{G} - \hat{G}^{(0)}$ dans cette expression, on obtient :

$$q = -\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \langle \mu \rangle^- \hat{G} + q^{(0)} + \frac{1 - \rho}{1 + \rho} \langle \mu \rangle^- \hat{G}^{(0)} \quad (4.163)$$

Le problème de la description des phénomènes aux parois dans le cadre de l'approximation P1 est que la loi de Fick (c'est-à-dire l'équation. 4.147 sans terme source) n'est pas valide aux frontières (puisqu'elle inclut l'hypothèse d'une distribution angulaire continue). Si elle était valide, on aurait :

$$q = \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} = -D \partial_s \hat{G} \quad (4.164)$$

où $\partial_s \hat{G}$ est la dérivée de l'irradiance par rapport à l'abscisse curviligne s associée à la normale \mathbf{n} (dans le photobioréacteur torique $\partial_s \equiv \partial_z$ à la paroi \mathcal{F} et $\partial_s \equiv -\partial_z$ sur \mathcal{R}). Ceci donnerait la relation linéaire suivante entre \hat{G} et sa dérivée spatiale (en injectant Eq. 4.164 dans Eq. 4.163) :

$$\hat{G} - \frac{1+\rho}{1-\rho} \frac{D}{\langle \mu \rangle^-} \partial_s \hat{G} = \frac{1+\rho}{1-\rho} \frac{1}{\langle \mu \rangle^-} q^{(0)} + \hat{G}^{(0)} \quad (4.165)$$

A notre connaissance, l'ensemble de la littérature ramène l'expression des conditions aux limites à la forme fonctionnelle suivante, qui est compatible avec l'équation 4.165 [111, 117, 118] :

$$\left[\hat{G} \pm \mathcal{L} \partial_s \hat{G} \right] = B \quad (4.166)$$

où \mathcal{L} est la longueur d'extrapolation et B est une constante. De plus, on travaille généralement avec la longueur d'extrapolation adimensionnelle h définie comme :

$$h = \mathcal{L} k_{ext}^* \quad (4.167)$$

En injectant la définition de D Eq. 4.152 dans l'équation 4.165, on obtient ici :

$$h = \frac{1}{3} \frac{1+\rho}{\langle \mu \rangle^-} \frac{1+\rho}{1-\rho} \quad (4.168)$$

Du point de vue de la description que nous proposons, on est donc ramené à la question de la détermination de $\langle \mu \rangle^-$. Si l'on considère en première approximation une distribution isotrope des directions de premier retour ($p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}) = 1/2\pi$), alors $\langle \mu \rangle^- = 1/2$ et on obtient :

$$h = \frac{2}{3} \frac{1+\rho}{1-\rho} \quad (4.169)$$

Cette valeur est couramment employée dans la communauté (voir [118] et les références citées) et elle sera utilisée en première approximation dans la suite de cette section. Nous remarquons cependant qu'un travail plus avancé, qui utilise une approche très différente de la nôtre, a proposé la valeur $h = 0.7104 \dots$ qui assure l'exactitude à l'ordre 2 dans un développement de Knudsen pour une situation bien particulière (où notamment la réflectivité est nulle) [119]. Ce résultat, qui correspond à la résolution du *problème de Milne*, est à comparer avec la valeur $h = 2/3$ que nous choisissons ici en première approximation (en l'absence de réflectivité). Dans la suite de cette section, nous écrirons aussi la constante B (voir Eq. 4.165 et Eq. 4.166) pour $\langle \mu \rangle^- = 1/2$:

$$B = 2 \frac{1+\rho}{1-\rho} q^{(0)} + \hat{G}^{(0)} \quad (4.170)$$

L'annexe C du présent manuscrit propose une réflexion académique sur l'écriture des longueurs d'extrapolation pour les systèmes conservatifs, toujours dans le cadre de la description que nous proposons.

RÉSUMÉ.

L'équation de la diffusion est résolue pour les conditions aux limites de Marshak :

$$\left[\hat{G} \pm \mathcal{L} \partial_s \hat{G} \right] = 2 \frac{1+\rho}{1-\rho} q^{(0)} + \hat{G}^{(0)} \quad (4.171)$$

où l'exposant ⁽⁰⁾ fait référence à la population balistique, $\partial_s \hat{G}$ est la dérivée de l'irradiance par rapport à l'abscisse curviligne s associée à la normale \mathbf{n} (dans le photobioréacteur torique $\partial_s \equiv \partial_z$ à la paroi \mathcal{F} et $\partial_s \equiv -\partial_z$ sur \mathcal{R}), et \mathcal{L} est la longueur d'extrapolation qui est approximée comme :

$$\mathcal{L} = \frac{2}{3} \frac{1+\rho}{1-\rho} \frac{1}{k_{ext}^*} \quad (4.172)$$

ρ est la réflectivité de la paroi et k_{ext}^* est le coefficient d'extinction de transport.

4.5.3 Mise en oeuvre dans le photobioréacteur torique

A - Résolution directe de l'équation de diffusion Eq. 4.151 avec les conditions aux limites de Marshak Eq. 4.171. Nous nous plaçons dans la configuration du photobioréacteur torique Fig. 4.1 avec une incidence lambertienne en $z = 0$. Pour cette configuration monodimensionnelle et en l'absence de source dans le volume, l'équation de diffusion Eq. 4.151 devient :

$$-D \partial_z^2 \hat{G}(z) = -k_a \hat{G}(z) \quad (4.173)$$

où $\partial_z^2 \hat{G}(z)$ est la dérivée seconde de l'irradiance par rapport à l'abscisse z . La forme du profil d'irradiance satisfaisant cette équation est :

$$\hat{G}(z) = C_0 \exp(\xi z) + C_1 \exp(-\xi z) \quad (4.174)$$

où C_0 et C_1 sont des constantes où on note $\xi = \sqrt{k_a/D}$, dans la configuration étudiée $\xi \simeq 161$. La condition à la limite en $z = 0$ est (voir Eq. 4.171 où $\rho = 0$) :

$$\hat{G}(0) - \mathcal{L}_0 \partial_z \hat{G}(0) = 2 q^{(0)}(0) + \hat{G}^{(0)}(0) \quad (4.175)$$

où

$$\mathcal{L}_0 = \frac{2/3}{k_{ext}^*} \quad (4.176)$$

et étant donnée la condition mésoscopique à la limite $\hat{L}^{(0)}(0, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{e}_z > 0$ (source lambertienne) et la solution triviale $\hat{L}^{(0)}(0, \boldsymbol{\omega}) = 0$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{e}_z < 0$ (voir Fig. 4.14),

$$q^{(0)}(0) = q_\Gamma \quad (4.177)$$

$$\hat{G}^{(0)}(0) = 2q_\Gamma \quad (4.178)$$

Il vient :

$$\hat{G}(0) - \frac{2/3}{k_{ext}^*} \partial_z \hat{G}(0) = 4q_\Gamma \quad (4.179)$$

La condition à la limite en $z = E$ est (voir Eq. 4.171 où $\rho = \rho^{\mathcal{R}}$) :

$$\hat{G}(E) + \mathcal{L}_E \partial_z \hat{G}(E) = 2 \frac{1 + \rho^{\mathcal{R}}}{1 - \rho^{\mathcal{R}}} q^{(0)} + \hat{G}^{(0)} \quad (4.180)$$

où

$$\mathcal{L}_E = \frac{2/3}{k_{ext}^*} \frac{1 + \rho^{\mathcal{R}}}{1 - \rho^{\mathcal{R}}} \quad (4.181)$$

L'épaisseur optique de diffusion $e_d \simeq 20$ de la configuration étudiée indique que les photons balistiques sont totalement négligeables⁴ en $z = E$. En prenant $q^{(0)} \simeq 0$ et $\hat{G}^{(0)} \simeq 0$, on obtient :

$$\hat{G}(E) + \frac{2/3}{k_{ext}^*} \frac{1 + \rho^{\mathcal{R}}}{1 - \rho^{\mathcal{R}}} \partial_z \hat{G}(E) = 0 \quad (4.182)$$

Les constantes C_0 et C_1 de la solution générale Eq. 4.174 de $\hat{G}(z)$ qui satisfont aux conditions aux limites Eqs. 4.179 et 4.182 sont :

$$C_1 = \frac{4q_\Gamma}{\exp(-\xi 2E) \frac{\mathcal{L}_E \xi - 1}{\mathcal{L}_E \xi + 1} (1 - \mathcal{L}_0 \xi) + 1 + \mathcal{L}_0 \xi} \quad (4.183)$$

et

$$C_0 = C_1 \frac{\mathcal{L}_E \xi - 1}{\mathcal{L}_E \xi + 1} \exp(-\xi 2E) \quad (4.184)$$

4. Les photons balistiques sont ici minoritaires en $z = E$; nous ne sommes pas dans le problème de transport équivalent où ils sont majoritaires $e_d^* \simeq 1$. Il est possible de considérer les photons balistiques dans l'équation 4.180 puisque leur solution mésoscopique est facilement obtenue (voir Sec. 4.4), même dans le cas d'une source lambertienne avec une réflectivité en $z = E$. Cependant, leur contribution à la condition aux limites est négligeable dans le cas des situations proches de $\gamma = 1$ qui sont étudiées dans les photobioréacteurs.

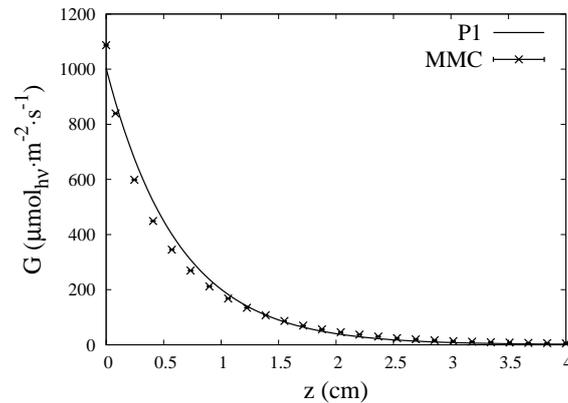


FIGURE 4.15: Champ d'irradiance \hat{G} dans le photobioréacteur Fig. 4.1 ; $\rho^{\mathcal{R}} = 0.54$; incidence Lambertienne. Comparaison entre l'approximation P1 et la solution de référence (Méthode de Monte Carlo, MMC).

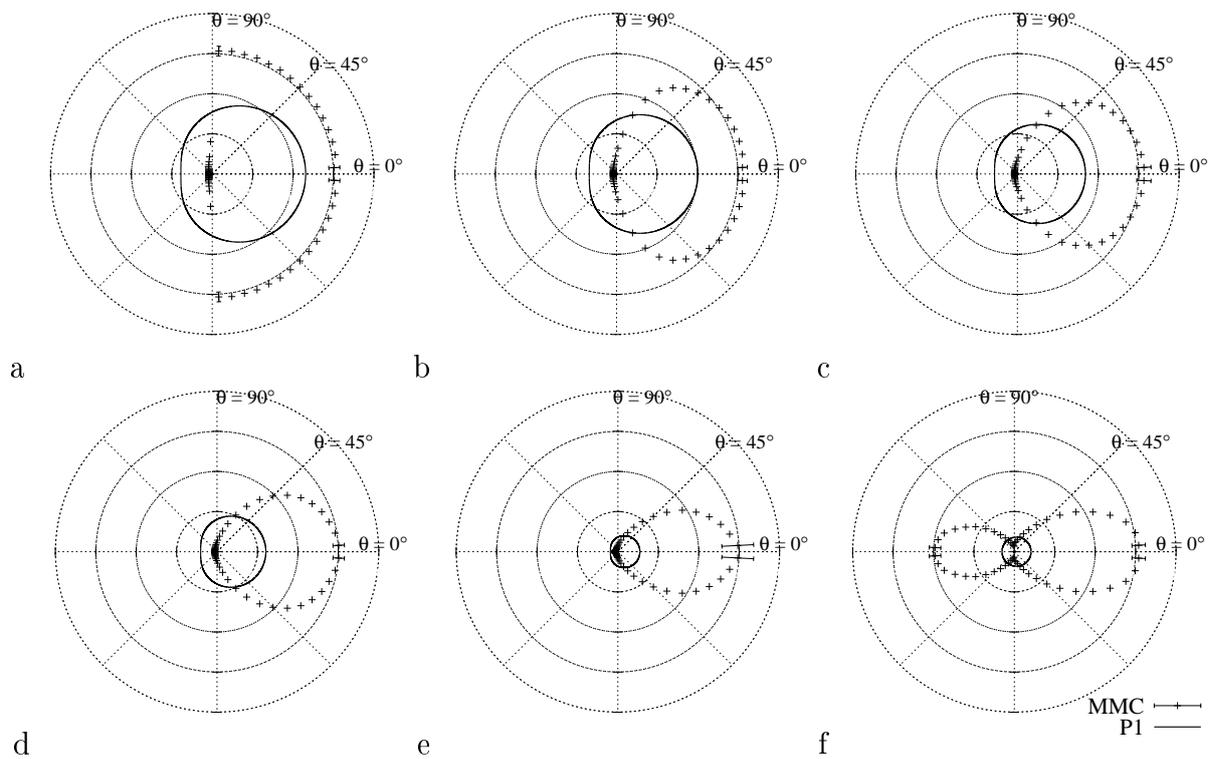


FIGURE 4.16: Distributions angulaires de la luminance $\hat{L}(z_0, \theta)$ pour différents z_0 dans le photobioréacteur Fig. 4.1 ; $\rho^{\mathcal{R}} = 0.54$; incidence Lambertienne. Comparaison entre l'approximation P1 et la solution de référence (Méthode de Monte Carlo, MMC). a : $z_0 = 0$. b : $z_0 = 2.5 \text{ mm}$. c : $z_0 = 5 \text{ mm}$. d : $z_0 = 1 \text{ cm}$. e : $z_0 = 2.5 \text{ cm}$. f : $z_0 = 4 \text{ cm}$.

On obtient l'expression suivante du champ d'irradiance :

$$\hat{G}(z) = q_0 C \left(\exp[-\xi z] + \frac{\mathcal{L}_E \xi - 1}{\mathcal{L}_E \xi + 1} \exp[-\xi(2E - z)] \right) \quad (4.185)$$

où

$$C = \frac{4}{\exp(-\xi 2E) \frac{\mathcal{L}_E \xi - 1}{\mathcal{L}_E \xi + 1} (1 - \mathcal{L}_0 \xi) + 1 + \mathcal{L}_0 \xi} \quad (4.186)$$

D'un point de vue mésoscopique, l'approximation P1 donne (voir Eq. 4.143) :

$$\hat{L}(z, \mu) = \frac{1}{4\pi} [G(z) - D \partial_z G(z) \mu] \quad (4.187)$$

où $\mu = \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{e}_z$ et où

$$\partial_z \hat{G}(z) = q_0 C \xi \left(-\exp[-\xi z] + \frac{\mathcal{L}_E \xi - 1}{\mathcal{L}_E \xi + 1} \exp[-\xi(2E - z)] \right) \quad (4.188)$$

Les figures 4.15 et 4.16 représentent respectivement le champ d'irradiance et la distribution angulaire de la luminance⁵ obtenus par l'approximation P1. Bien que la situation étudiée soit éloignée de l'équilibre, le champ d'irradiance donné par l'approximation P1 est en relative cohérence avec la référence obtenue par la méthode de Monte Carlo. Cette cohérence est surprenante car l'approximation P1 est dans l'incapacité de modéliser la situation radiative étudiée, qui correspond notamment à une luminance fortement anisotrope (avec toute la physique du transfert radiatif que cela implique, voir Fig. 4.16). Mais la source lambertienne éclaire le milieu de façon suffisamment isotrope pour que P1 puisse ici être employé. Lorsque l'on considère une source collimatée, comme à la figure 4.17, la validité de l'approximation est significativement dégradée : les restrictions qu'imposent l'approximation P1 ne sont plus respectées. Cependant, nous avons vu à la section 4.4, figure 4.11, que le problème de transport équivalent permet de séparer notre étude radiative en deux sous-systèmes simples : les photons balistiques, qui sont majoritaires dans le problème équivalent et dont la solution exacte est analytique, et les photons diffus qui correspondent à une luminance proche de l'isotropie. Cette relative isotropie de la luminance diffuse laisse à penser que les images de l'approximation P1 s'appliquent à la population des photons diffus. Dans le paragraphe qui suit, seuls les photons diffus du problème de transport équivalent seront traités par l'approximation P1.

5. Les distributions angulaires présentées à la figure 4.16 utilisent la même échelle pour l'approximation P1 et la méthode de Monte Carlo. Cependant, l'aire sous la courbe ne représente pas l'irradiance car l'angle solide élémentaire $\sin(\theta)d\theta d\varphi$ n'est pas ici pris en compte : $\hat{G} = 2\pi \int_0^\pi d\theta \sin(\theta)\hat{L}(\theta)$.

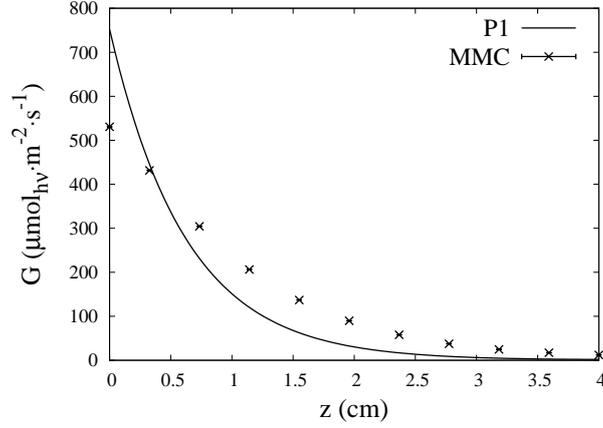


FIGURE 4.17: Champ d'irradiance \hat{G} dans le photobioréacteur Fig. 4.1 ; $\rho^{\mathcal{R}} = 0.54$; incidence collimatée normale. Comparaison entre l'approximation P1 et la solution de référence (Méthode de Monte Carlo, MMC). Pour une incidence collimatée, seule la condition à la limite en $z = 0$ est changée par rapport à la source lambertienne étudiée dans le texte. $q^{(0)}(z = 0)$ reste égal à q_{Γ} mais l'irradiance balistique devient $\hat{G}^{(0)}(z = 0) = q_{\Gamma}/\mu_i$. Les résultats obtenus pour une source lambertienne peuvent être repris en remplaçant $4q_{\Gamma}$ par $(2 + 1/\mu_i)q_{\Gamma}$ dans les expressions.

B - Résolution du même problème que précédemment en séparant les populations balistique et diffuse, pour une incidence collimatée. Nous nous plaçons ici dans le problème de transport équivalent. Afin d'alléger les expressions, nous négligeons la réflectivité $\rho^{\mathcal{R}}$. L'équation sur les photons balistiques possède la solution triviale (voir Sec. 4.4) :

$$\hat{G}^{(0)}(z) = \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \quad (4.189)$$

où μ_i est le cosinus de l'angle d'incidence. On résout maintenant l'équation de diffusion Eq. 4.151 sur l'irradiance diffuse $\hat{G}^{(d)}(z)$ qui est définie comme la somme des irradiances d'ordre de diffusions $j \geq 1$, $\hat{G}^{(d)}(z) = \sum_{j=1}^{\infty} \hat{G}^{(j)}(z)$:

$$-D \partial_z^2 \hat{G}^{(d)}(z) = -k_a^* \hat{G}^{(d)}(z) + S_{\hat{G}^{(d)}}(z) \quad (4.190)$$

où $k_a^* = (1 - \alpha_s^*)k_{ext}^*$ et D est invariant par le changement d'échelle du problème de transport équivalent $D = 1/(3k_{ext}^*)$. $S_{\hat{G}^{(d)}}(z)$ est le terme source dû aux photons balistiques qui diffusent dans le volume réactionnel :

$$S_{\hat{G}^{(d)}}(z) = \int_{4\pi} d\omega \mathcal{C}^{(0)}(z) = 4\pi \mathcal{C}^{(0)}(z) = \alpha_s^* k_{ext}^* \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) \quad (4.191)$$

avec $\mathcal{C}^{(0)}(z)$ le terme source mésoscopique donné à la section 4.4. Puisque $\mathcal{C}^{(0)}$ est isotrope dans le problème de transport équivalent, le terme source de flux S_j de l'équation 4.151 est ici nul. Par rapport au paragraphe A, nous avons ici remplacé les sources aux parois, qui entraînaient la forte anisotropie de \hat{L} dans le champ, par une source isotrope répartie dans tout le volume : les photons diffus ne viennent pas des parois, ce sont les photons balistiques qui diffusent dans le volume. La forme du profil de l'irradiance diffuse satisfaisant à l'équation de diffusion Eq. 4.190 est :

$$\hat{G}^{(d)}(z) = \frac{q_0}{\mu_i} \left[C_0 \exp(\xi z) + C_1 \exp(-\xi z) - \frac{\xi^2 - k_{ext}^*/D}{\xi^2 - (k_{ext}^*/\mu_i)^2} \left(\exp\left[-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right] - \exp[-\xi z] \right) \right] \quad (4.192)$$

où C_0 et C_1 sont des constantes. Nous sommes ici dans une situation où les photons balistiques sont traités séparément. De plus nous négligeons la réflectivité. Les conditions aux limites s'écrivent donc (voir Eq. 4.171 où $\hat{G}^{(0)} = 0$, $q^{(0)} = 0$ et $\rho = 0$) :

- en $z = 0$:

$$\hat{G}^{(d)}(0) - \mathcal{L}_0 \partial_z \hat{G}^{(d)}(0) = 0 \quad (4.193)$$

- en $z = E$:

$$\hat{G}^{(d)}(E) + \mathcal{L}_E \partial_z \hat{G}^{(d)}(E) = 0 \quad (4.194)$$

où

$$\mathcal{L}_0 = \mathcal{L}_E = \frac{2/3}{k_{ext}^*} \quad (4.195)$$

Les constantes C_0 et C_1 de la solution générale Eq. 4.192 qui satisfont aux conditions aux limites Eqs. 4.193 et 4.194 sont :

$$C_1 = - \frac{\xi^2 - k_{ext}^*/D}{\xi^2 - (k_{ext}^*/\mu_i)^2} \times \frac{\mathcal{L}_0(k_{ext}^*/\mu_i - \xi)^{\frac{1+\mathcal{L}_E\xi}{1-\mathcal{L}_0\xi}} + \exp[-\xi 2E] \left\{ 1 - \mathcal{L}_E \xi - \left(1 - \frac{\mathcal{L}_E k_{ext}^*}{\mu_i} \right) \exp[(\xi - k_{ext}^*/\mu_i)E] \right\}}{\exp[-\xi 2E] (1 - \mathcal{L}_E \xi) - (1 + \mathcal{L}_0 \xi)^{\frac{1+\mathcal{L}_E\xi}{1-\mathcal{L}_0\xi}}} \quad (4.196)$$

et

$$C_0 = -C_1 \frac{1 + \mathcal{L}_0 \xi}{1 - \mathcal{L}_0 \xi} - \mathcal{L}_0 \frac{\xi^2 - k_{ext}^*/D}{(\xi + k_{ext}^*/\mu_i)(1 - \mathcal{L}_0 \xi)} \quad (4.197)$$

D'un point de vue mésoscopique, l'approximation P1 donne la luminance diffuse :

$$\hat{L}^{(d)}(z, \mu) = \frac{1}{4\pi} [G^{(d)}(z) - D \partial_z G^{(d)}(z) \mu] \quad (4.198)$$

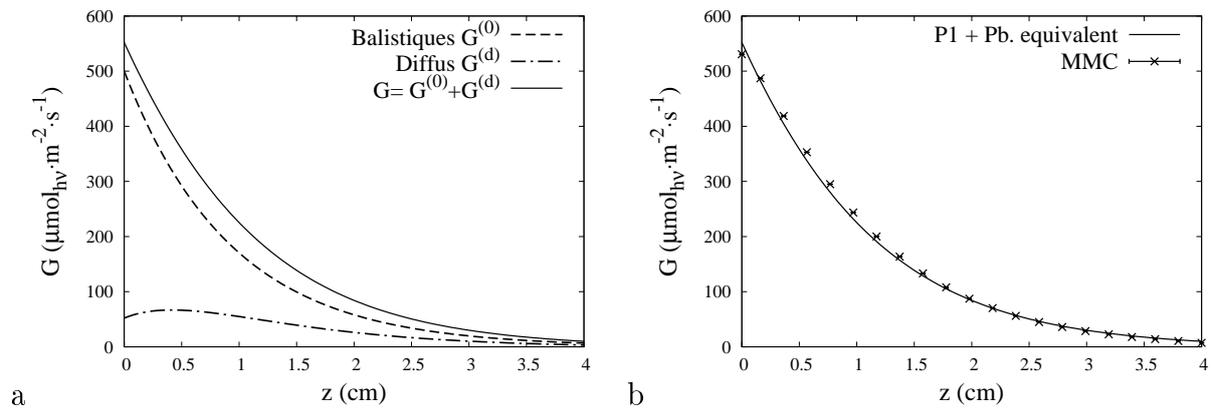


FIGURE 4.18: Champ d'irradiance \hat{G} dans le photobioréacteur Fig. 4.1; $\rho^{\mathcal{R}} = 0$; incidence collimatée normale. Résultats du problème de transport équivalent pour l'approximation P1. a : Photons balistiques et diffus. b : Comparaison avec la solution de référence (MMC).

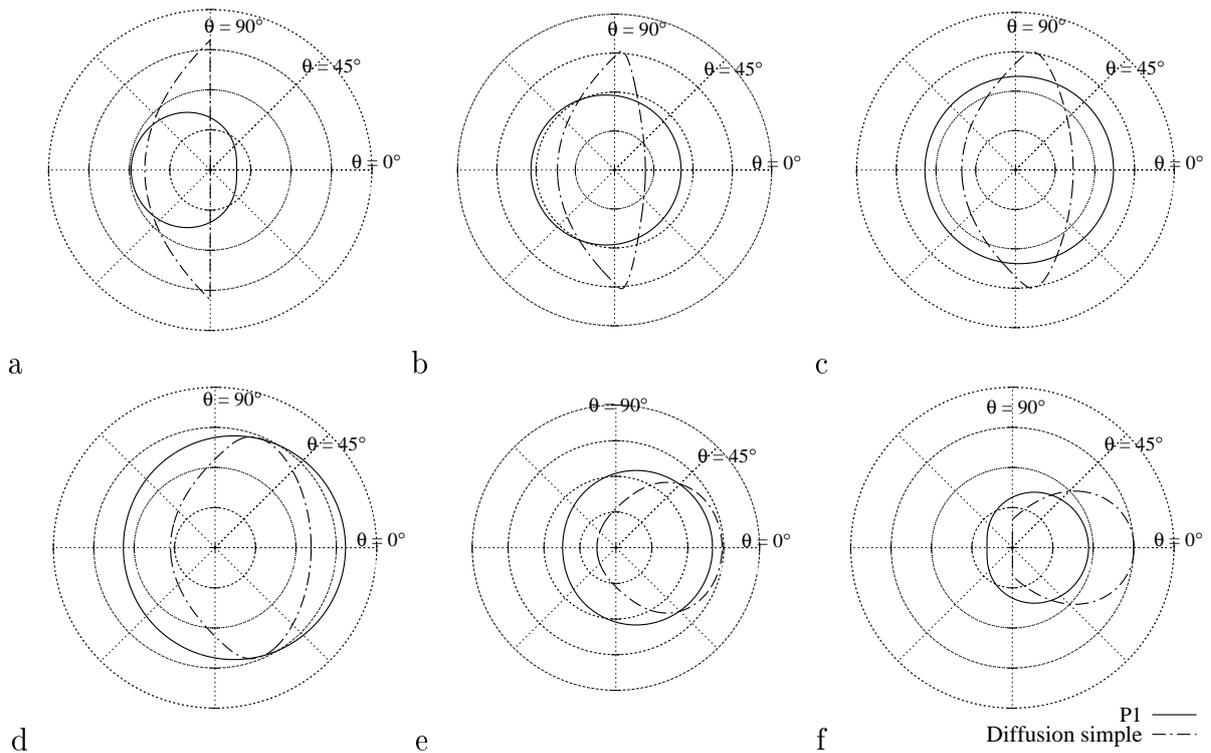


FIGURE 4.19: Distributions angulaires de la luminance diffuse $\hat{L}^{(d)}(z_0, \theta)$ pour différents z_0 dans le photobioréacteur Fig. 4.1; $\rho^{\mathcal{R}} = 0$; incidence collimatée normale. Résultats du problème de transport équivalent. Comparaison entre l'approximation P1 et l'approximation de la diffusion simple (qui suppose $\hat{L}^{(d)} \simeq \hat{L}^{(1)}$, voir Sec. 4.4). a : $z_0 = 0$. b : $z_0 = 2.5 \text{ mm}$. c : $z_0 = 5 \text{ mm}$. d : $z_0 = 1 \text{ cm}$. e : $z_0 = 2.5 \text{ cm}$. f : $z_0 = 4 \text{ cm}$.

où $\mu = \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{e}_z$. La luminance totale \hat{L} est la somme de $\hat{L}^{(d)}$ et d'un Dirac dans la direction d'incidence pour la contribution des photons balistiques. Le champ d'irradiance $\hat{G}(z)$ est obtenu en sommant l'irradiance balistique et l'irradiance diffuse :

$$\hat{G}(z) = \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \left[\exp\left(-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right) + C_0 \exp(\xi z) + C_1 \exp(-\xi z) - \frac{\xi^2 - k_{ext}^*/D}{\xi^2 - (k_{ext}^*/\mu_i)^2} \left(\exp\left[-k_{ext}^* \frac{z}{\mu_i}\right] - \exp[-\xi z] \right) \right] \quad (4.199)$$

Les figures 4.18 et 4.19 représentent respectivement le champ d'irradiance et la distribution angulaire de la luminance diffuse obtenus par l'approximation P1 dans le problème de transport équivalent. La figure 4.18.b montre la comparaison avec la solution de référence (problème direct avec fonction de phase de *Chlamydomonas reinhardtii*) obtenue par la méthode de Monte Carlo. Comme nous l'avions anticipé au paragraphe précédent, l'accord est ici significativement amélioré en comparaison avec la figure 4.17 car la luminance diffuse du problème de transport équivalent étant relativement proche de l'isotropie, la description est maintenant compatible avec les restrictions de l'approximation P1. Les distributions angulaires de la luminance diffuse sont comparées aux résultats obtenus dans le cadre de l'approximation mésoscopique de la diffusion simple. Nous comparons ici P1 à l'approximation de la diffusion simple car ce sont les deux solutions que nous avons obtenues dans le problème de transport équivalent, mais il ne s'agit en aucun cas d'une référence. Cependant, on constate que l'approximation de la diffusion simple est plus à même de décrire les phénomènes aux parois car elle rend compte des discontinuités de la distribution angulaire de la luminance, alors que l'approximation P1 postule un développement en harmonique sphérique. Dans le champs, les deux approximations donnent une luminance diffuse proche de l'isotropie.

Nous retiendrons que l'approximation P1 permet de modéliser finement les profils d'irradiance dans les configurations de type photobioréacteur qui ont été étudiées dans cette section, même dans le cas d'une incidence collimatée. Pourtant, on pourrait penser que le domaine de validité de l'approximation P1 est associé aux fortes épaisseurs optiques (et à une faible absorption) car ce critère assure une situation proche de l'équilibre. Cependant, l'hypothèse P1 ne correspond pas à supposer $e_d^* \gg 1$. Elle postule seulement une forme de la luminance qui est en cosinus autour d'une valeur moyenne. En exploitant ce critère de validité (dans le cas présent, par l'utilisation du problème de transport équivalent), l'approximation P1 peut être très pertinente, même dans l'étude de photobioréacteurs correspondant à des épaisseurs intermédiaires $e_d^* \sim 1$ (voire même dans des situations en l'absence de diffusion).

4.6 Approximation à 2-Flux

L'approximation à 2-Flux n'est pas détaillée dans ce mémoire. Il s'agit d'un outil d'analyse largement utilisé dans la communauté des photobioréacteurs. Son utilisation et ses performances dans le cadre de l'étude du procédé sont largement détaillées dans [2, 4, 5, 6, 7, 1, 22, 32, 24, 16]. En outre, une approche de l'approximation à 2-Flux basée sur une séparation des photons balistiques et diffus en présence d'une source collimatée (comme cela est pratiqué dans les sections précédentes) est détaillée dans [120]. L'approximation à 2-Flux peut être qualifiée d'approximation macroscopique dans le sens où elle est une modélisation de l'irradiance et du flux. Son avantage, en comparaison avec les autres approximations macroscopiques, est qu'elle ne nécessite pas complètement l'hypothèse du proche équilibre. Comme dans le cas de l'approximation P1, la forme de la distribution angulaire de la luminance est postulée a priori. L'approximation à 2-Flux est construite en supposant une distribution isotrope par hémisphère, ou collimatée sur un hémisphère et isotrope sur l'autre (voir Fig. 4.20). En utilisant les figures 4.16 et 4.19, on constate que cette hypothèse est éventuellement justifiée aux frontières (la luminance aux parois est discontinue à la jonction entre les hémisphères) mais elle n'est vérifiée dans le champ que pour les milieux minces $e_d^* \ll 1$, ou de manière équivalente, pour les positions très proches des parois du photobioréacteur torique. Nous nous contentons ici de rappeler la solution analytique donnée dans [16] pour la configuration du photobioréacteur torique Fig. 4.1 éclairé par une source collimatée, avec $\rho^{\mathcal{R}} = 0$:

$$\hat{G}(z) = \frac{q_{\Omega}}{\mu_i} 2 \frac{(1 + \alpha) \exp[-\delta L (z/E - 1)] - (1 - \alpha) \exp[\delta L (z/E - 1)]}{(1 + \alpha)^2 \exp[\delta L] - (1 - \alpha)^2 \exp[-\delta L]} \quad (4.200)$$

où

$$\alpha = \sqrt{\frac{\sigma_a}{\sigma_a + 2b\sigma_d}} \quad (4.201)$$

$$\delta L = \frac{\alpha}{\mu_i} Cx (\sigma_a + 2b\sigma_d) E \quad (4.202)$$

avec μ_i le cosinus de l'angle d'incidence θ_i , b le coefficient de rétrodiffusion (b est égal à 0.008 pour *Chlamydomonas reinhardtii* dans la configuration étudiée), toutes les autres notations étant définies à la figure 4.1.

Le champ d'irradiance donné par l'approximation à 2-Flux dans la configuration étudiée est comparé à la solution de référence obtenue par la méthode de Monte Carlo à la figure 4.21.

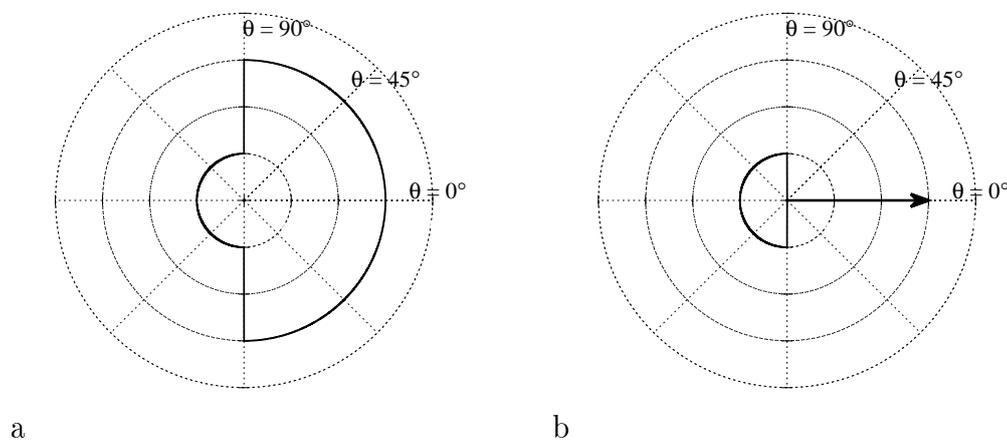


FIGURE 4.20: Représentation schématique de la distribution angulaire de la luminance dans le cadre de l'approximation à 2-Flux. a : Distribution isotrope par hémisphère. b : Distribution collimatée sur un hémisphère et isotrope sur l'autre.

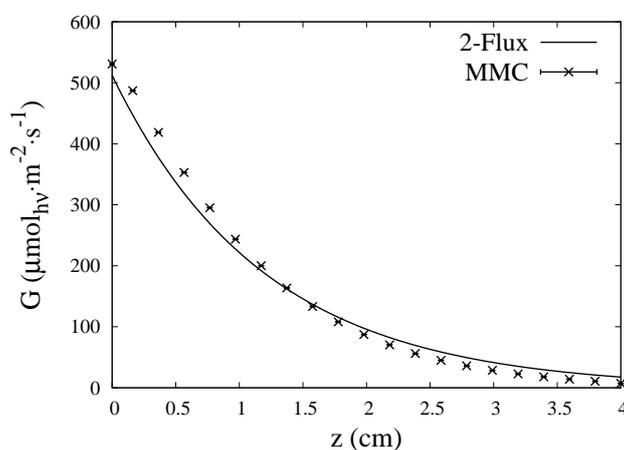


FIGURE 4.21: Champ d'irradiance \hat{G} dans le photobioréacteur Fig. 4.1; $\rho^{\mathcal{R}} = 0$; incidence collimatée normale. Comparaison entre la solution de référence (MMC) et le résultat de l'approximation à 2-Flux Eq. 4.200 pour $b = 0.008$.

4.7 Etude de l'influence de la modélisation de la diffusion multiple sur la productivité du photobioréacteur torique

Cette section rassemble les résultats obtenus avec les différents modèles radiatifs présentés dans ce chapitre. Nous nous plaçons dans la configuration du photobioréacteur torique Fig. 4.1 avec $q_{\Gamma} = 500 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ et deux angles d'incidence θ_i d'une source collimatée sont considérés. Pour chacun de ces angles, la concentration est ajustée afin d'assurer une fraction volumique éclairée $\gamma = 1$ pour la solution donnée par la méthode de Monte Carlo dans le cas d'une réflectivité $\rho^{\mathcal{R}} = 0.54$:

- (1) pour $\theta_i = 0$ alors $Cx = 0.55 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$,
- (2) pour $\theta_i = 69^\circ$ alors $Cx = 0.33 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

La réflectivité $\rho^{\mathcal{R}}$ est par la suite négligée, y compris dans la solution de référence donnée par la méthode de Monte Carlo. Les productivités sont calculées en utilisant la loi de couplage de *Chlamydomonas reinhardtii* qui a été introduite au chapitre 1 et dont les paramètres sont donnés à l'annexe B. Les propriétés radiatives utilisées sont celles données à la figure 4.1, en ajoutant le coefficient de rétrodiffusion $b = 0.008$ pour l'approximation à 2-Flux et la section efficace $\sigma_{a,pig} = 230 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$ du modèle d'absorption pure par une solution de pigments⁶.

Les figures 4.22 et 4.23 représentent respectivement les champs de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} et de la productivité volumique locale r_x obtenus pour les situations (1) et (2) ci-dessus. Les résultats de la fraction volumique éclairée γ et de la productivité volumique moyenne $\langle r_x \rangle$ du photobioréacteur dans ces deux situations sont rassemblés à la table 4.1. Aucune conclusion générale quant à la validité des approximations ne peut être tirée de cette comparaison sur un modèle gris, pour un micro-organisme particulier et une configuration radiative donnée. A titre d'exemple, la même étude menée avec le micro-organisme *Arthrospira platensis* (la loi de couplage et les propriétés radiatives correspondantes étant différentes de celles de *Chlamydomonas reinhardtii*) donne une erreur relative de 30% entre les résultats de $\langle r_x \rangle$ obtenus avec l'approximation à 2-Flux et la méthode de Monte Carlo, pour un angle d'incidence $\theta_i = 0$. Toutefois, cette étude

6. $\sigma_{a,pig}$ a été obtenu à partir de la méthode présentée au chapitre 1 et les teneurs en pigments de la configuration " $q_{\Gamma} = 500 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, $\gamma \simeq 1$ " données dans l'annexe B. La valeur retenue est la moyenne sur la gamme spectrale du PAR. Le modèle d'absorption pure est :

$$\mathcal{A}(z) = \sigma_{a,pig} \frac{q_{\Gamma}}{\mu_i} \exp\left(-C_x \sigma_{a,pig} \frac{z}{\mu_i}\right)$$

montre l'influence du modèle de transfert radiatif sur les champs de productivité locale et l'effet de l'angle d'incidence sur le fonctionnement du réacteur. Nous travaillons ici à flux solaire capté constant, quel que soit l'angle d'incidence. Pour une technologie de type panneau photovoltaïque, les performances sont totalement déterminées par la valeur de ce flux, indépendamment de l'angle d'incidence. Pour les photobioréacteurs à captation directe, les résultats obtenus indiquent une chute de l'ordre de 40% pour la productivité entre une incidence normale et $\theta_i = 69^\circ$. Ce phénomène est exclusivement dû à la répartition des champs de rayonnement dans le volume réactionnel. Si l'on ajoute à cela la chute du flux solaire capté avec l'augmentation de l'angle d'incidence, on aboutit à une influence considérable de l'orientation du photobioréacteur par rapport à la position du soleil (voir [109] pour une analyse fine de cet effet).

	$\theta_i = 0, Cx = 0.55 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$				$\theta_i = 69^\circ, Cx = 0.33 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$			
	γ	$\epsilon\%$	$\langle r_x \rangle$	$\epsilon\%$	γ	$\epsilon\%$	$\langle r_x \rangle$	$\epsilon\%$
MMC	0.92	-	36.56	-	0.90	-	22.76	-
P1	0.95	3	35.79	-2	0.86	-4	22.97	<1
2-Flux	>1	>9	38.15	4	0.85	-5	24.20	6
Diffusion Simple	0.93	1	34.13	-7	0.77	-14	21.24	-7
Abs. Pigments	0.73	-20	24.22	-34	0.56	-38	14.57	-36

TABLE 4.1: Fraction volumique éclairée γ et productivité volumique moyenne $\langle r_x \rangle$ du photobioréacteur torique pour une culture de *Chlamydomonas reinhardtii*. Valeurs obtenues pour une densité surfacique de flux constante $q_\Gamma = 500 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ quelque soit l'angle d'incidence θ_i . $\langle r_x \rangle$ est exprimé en $g_x \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$. ϵ est l'erreur relative entre les différents modèles et la référence obtenue par la Méthode de Monte Carlo (MMC).

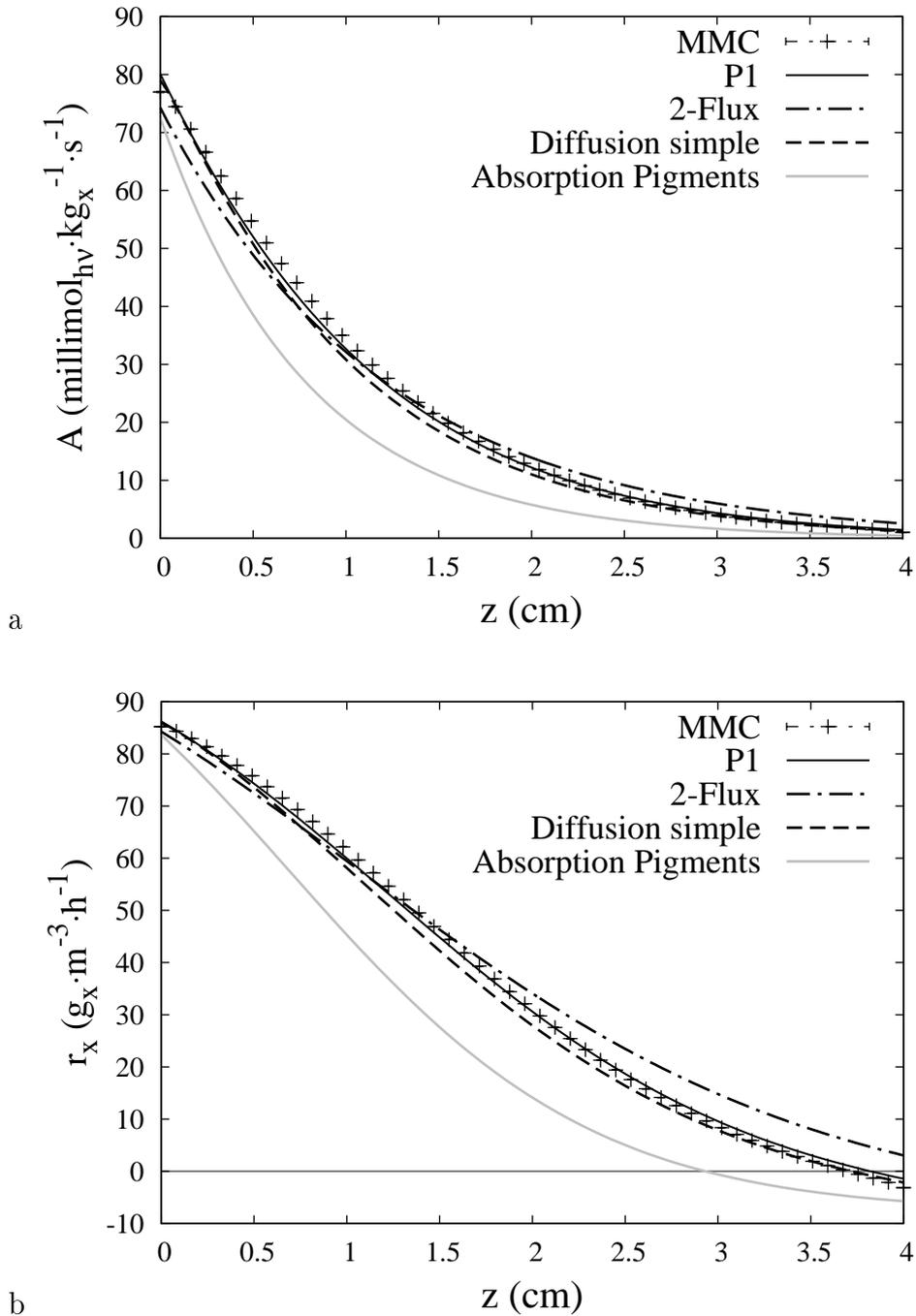


FIGURE 4.22: Champs dans la configuration du photobioréacteur torique où : $q_{\Omega} = 500 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, $\rho^{\mathcal{R}} = 0$, $\theta_i = 0$, $Cx = 0.55 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$. a : Vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} . b : Productivité volumique locale r_x .

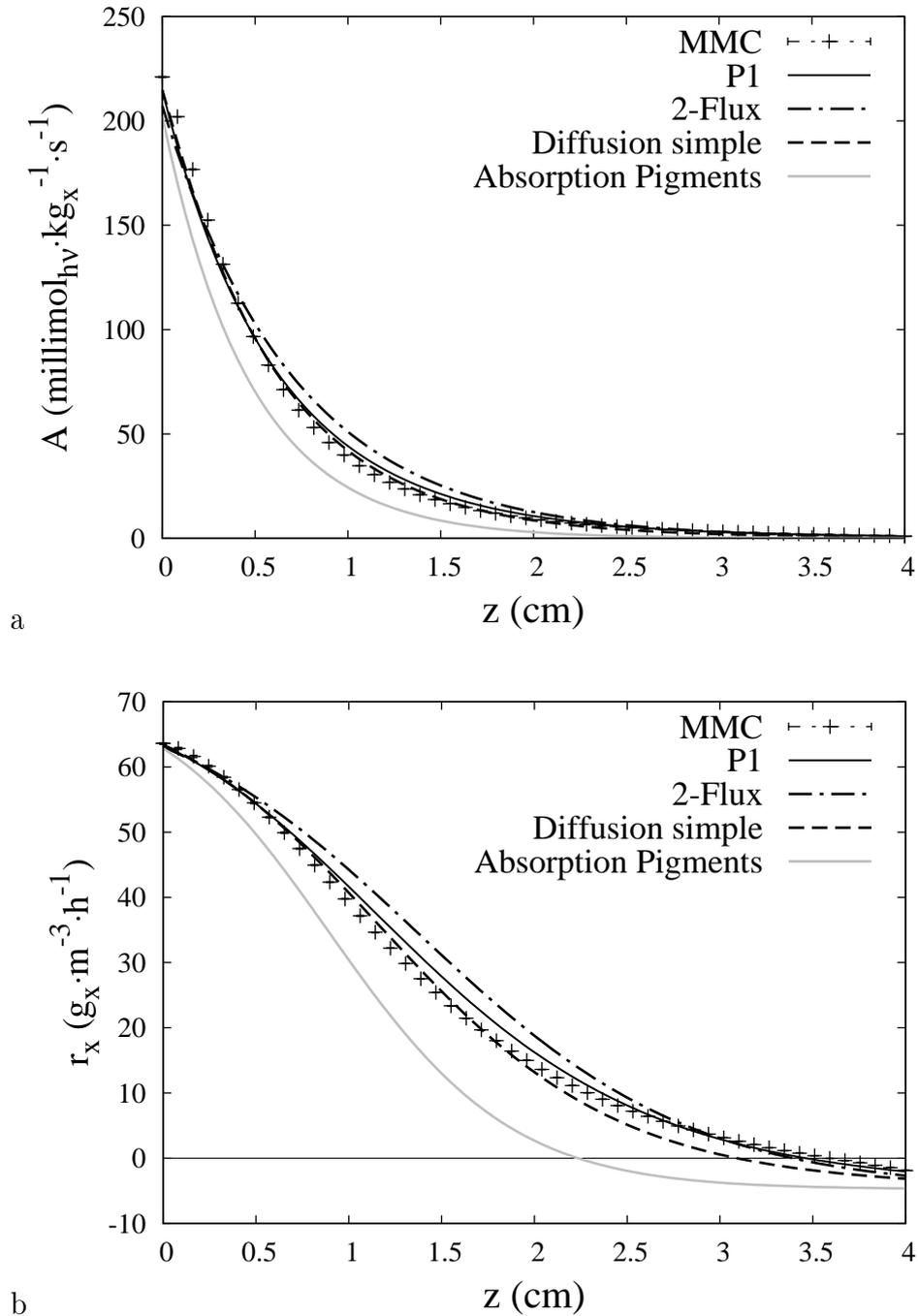


FIGURE 4.23: Champs dans la configuration du photobioréacteur torique où : $q_{\Omega} = 500 \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, $\rho^{\mathcal{R}} = 0$, $\theta_i = 69^\circ$, $Cx = 0.33 \text{ Kg} \cdot \text{m}^{-3}$. a : Vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} . b : Productivité volumique locale r_x .

4.8 Conclusion

Au terme du présent chapitre, les principaux concepts du transfert radiatif que nous manipulons (dans notre pratique quotidienne) pour l'analyse des transferts en diffusion multiple au sein des photobioréacteurs sont explicités. Nous avons tâché de faire en sorte que cette présentation, même si elle concerne un ensemble de concepts bien connus des spécialistes du transfert radiatif, serve la suite du raisonnement, en utilisant des notations propres à notre étude et en proposant surtout des éléments de compréhension phénoménologiques pour chaque modèle physique ainsi que sa formulation mathématique. A ce stade, fort des images du transport que nous apportons en association avec l'introduction au formalisme intégral et à son écriture compacte sous forme récursive, nous espérons notamment que le lecteur est préparé à envisager la résolution des transferts de rayonnement par la méthode de Monte Carlo, ce qui fait l'objet des chapitres suivants.

Une contribution importante du présent chapitre à la communauté du génie des procédés est la mise en œuvre des approximations P1, de la diffusion simple, et dans une moindre mesure de l'approximation à deux flux, dans le contexte de l'étude des photobioréacteurs. L'évaluation des résultats ainsi obtenus, vis-à-vis de la solution de référence donnée par la méthode de Monte Carlo, montre que même dans le cas du réacteur torique où une description monodimensionnelle peut convenir, le choix du modèle radiatif pour évaluer la vitesse spécifique locale d'absorption des photons n'est pas anodin. On observe que la précision du calcul de la vitesse de production en biomasse et de la fraction volumique éclairée γ du réacteur varient significativement en fonction de l'approximation retenue. Néanmoins, les configurations de validation qui sont ici traitées restent trop peu nombreuses pour pouvoir tirer des conclusions arrêtées quant au modèle qu'il convient de choisir en fonction de la situation ou du phénomène étudié. Plutôt qu'une étude quantitative de la précision de ces approximations, nous avons ici privilégié leurs images physiques et leur pouvoir d'analyse, en ayant soin de bien expliciter les démarches, leur sens, leurs difficultés et parfois les idées préconçues qui peuvent exister à leur sujet. A ce titre, le présent chapitre apporte aussi une contribution originale à la communauté du transfert radiatif et les modèles qui y sont développés seront utilisés au chapitre suivant pour servir des considérations avancées sur l'optimisation de la convergence des algorithmes de Monte Carlo pour l'étude des photobioréacteurs dans toute leur complexité.

Chapitre 5

Mise en œuvre de la méthode de Monte Carlo pour l'étude des photobioréacteurs

Résumé :

Dans le présent chapitre, l'équation de transfert radiatif est résolue de manière rigoureuse, pour les propriétés spectrales du volume réactionnel (diffusion anisotrope et absorption, voir Chap. 2) au sein de la géométrie relativement complexe du prototype DiCoFluV, en incluant les propriétés de réflexion des surfaces (cette configuration radiative est détaillée à la section 5.2). Nous nous concentrons ici sur l'évaluation du champ de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} (nombre de photons absorbés par unité de temps et par unité de biomasse sèche, voir Chap. 1), le couplage aux cinétiques locales de la photosynthèse étant traité au chapitre 6. La méthode de Monte Carlo est reconnue pour être appropriée à la résolution numérique de problèmes de transfert radiatif tels que le nôtre, où il faut traiter la diffusion et la réflexion multiple en géométrie complexe (voir Sec. 5.1). De plus, des développements méthodologiques conséquents ont été reportés durant les quinze dernières années dans le domaine de la simulation du transport linéaire (et plus particulièrement du transfert radiatif) par la méthode de Monte Carlo. Parmi ces développements, nous portons notre attention sur la formulation intégrale, les algorithmes à zéro-variance et le calcul de sensibilité, ainsi que sur la question de la mise en œuvre pratique des méthodes numériques correspondantes, en allant de la conception des algorithmes jusqu'à leur implémentation informatique. Ces techniques (résolution des problèmes de transfert radiatif par la méthode de Monte Carlo, formulation intégrale, zéro-variance, calcul de sensibilité) sont maintenant largement maîtrisées sur le plan académique (à l'exception du calcul de sensibilité géométrique, voir Chap. 7). Cependant, la question à laquelle s'attache le présent chapitre, à

savoir leur mise en œuvre pour l'étude de procédés complexes tels que le prototype DiCoFluV (incluant intégration spectrale, diffusion multiple, géométrie complexe, etc), est encore ouverte et les expériences de mise en œuvre que nous rapportons ici s'adressent donc à la fois aux spécialistes de la méthode de Monte Carlo (en permettant l'identification d'éventuels points bloquants) et à la communauté des systèmes photoréactifs, à travers une illustration des possibilités méthodologiques actuelles. Afin de mener à bien cette exploration, nous proposons dans un premier temps de construire un algorithme pour l'évaluation de \mathcal{A} en nous appuyant sur des images physiques intuitives telles que l'émission, la diffusion, l'absorption et la réflexion des photons (Sec. 5.3), puis d'en détailler l'implémentation pratique au sein de l'environnement de développement EDStar (Sec. 5.4). Dans un second temps, cet algorithme servira de base pour la mise en œuvre de méthodologies plus avancées dans la section 5.5. Cette dernière section correspond à un article publié dans *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, dans lequel nous argumentons que même pour des situations non-académiques du niveau de complexité des photobioréacteurs, on tire un bénéfice conséquent de la traduction de tout algorithme de Monte Carlo en une formulation intégrale rigoureusement équivalente. Nous construirons tout d'abord cette formulation intégrale en reprenant la description algorithmique (celle de la section 5.3) et en traduisant chacune des procédures d'échantillonnage en une expression mathématique rigoureusement équivalente (section 2 de l'article). Nous montrerons ensuite que la manipulation de cette formulation intégrale permet d'une part, de facilement modifier l'algorithme initial afin d'estimer simultanément \mathcal{A} et ses sensibilités (section 3 de l'article, voir aussi Chap. 7 pour le cas particulier des sensibilités géométriques), et d'autre part, d'améliorer sa convergence grâce à un acte de modélisation d'un ensemble de grandeurs physiques bien identifiées. Ce dernier point renvoie aux images physiques que nous avons développées au chapitre 4 : on adopte une posture consistant à rechercher les conditions d'obtention d'un algorithme idéal à variance nulle (un algorithme dit à *zéro-variance* [121, 122] qui évaluerait la grandeur recherchée, de façon exacte, à l'aide d'une seule réalisation statistique), puis on se sert des approximations P1 et de la diffusion simple pour s'approcher au mieux de cet algorithme idéal.

5.1 Principe de base de la méthode de Monte Carlo dans le contexte du transfert radiatif

Nous proposons dans cette section une rapide introduction intuitive à la méthode de Monte Carlo. Il ne s'agit là que de quelques images simples et des discussions plus avancées sont par exemple disponibles dans [123, 124].

La méthode de Monte Carlo est une méthode de résolution numérique de l'équation de transfert radiatif comme les autres (au même titre que la méthode des ordonnées discrètes DOM). Cependant, elle est généralement considérée comme étant *la méthode de référence* car elle est la seule à donner systématiquement, en plus du résultat obtenu, l'erreur numérique commise. En outre, l'avantage principal généralement accordé à la méthode de Monte Carlo est que la construction des algorithmes est très intuitive, même dans les situations de diffusion multiple en géométrie complexe que nous étudions dans le présent chapitre. En transfert radiatif, les codes de Monte Carlo standards s'interprètent en effet comme des reproductions fidèles d'images physiques bien établies telles que l'émission, la diffusion, l'absorption, la réflexion et la réfraction des photons. En pratique, un algorithme de Monte Carlo consiste à simuler la statistique du transport corpusculaire (qui a été introduite à la section 4.2.3) afin de générer un ensemble de chemins optiques représentatifs des événements vécus par les photons du système. Un algorithme standard consiste donc en une procédure de suivi d'un photon qui, se propageant dans le volume réactionnel, va être diffusé par les micro-organismes, réfléchi aux parois, jusqu'à son absorption. On parle d'échantillonnage d'un chemin optique et la procédure algorithmique correspondante ressemble par exemple à la suivante (ces procédures seront par la suite précisément détaillées, il ne s'agit là que d'une illustration) :

- (1) Le photon suivi se propage en ligne droite dans le volume réactionnel. On génère aléatoirement sa prochaine position d'interaction, qui peut être soit dans le volume réactionnel (une interaction avec un micro-organisme), soit à la surface du réacteur. L'algorithme suit une des branches suivantes en fonction de la nature de l'interaction :
 - dans le cas d'une interaction avec une surface réfléchissante de réflectivité ρ ($0 \leq \rho \leq 1$), le photon a une probabilité ρ d'être réfléchi et une probabilité $1 - \rho$ d'être absorbé par la surface. On génère aléatoirement cet événement et :
 - (a) si le photon est absorbé, l'échantillonnage du chemin optique est terminé,
 - (b) si le photon est réfléchi, il continue sa propagation selon la direction de réflexion.
 - dans le cas d'une interaction avec un micro-organisme, le photon a une probabilité α_s d'être diffusé et une probabilité $1 - \alpha_s$ d'être absorbé, où α_s est l'albédo de diffusion simple ($0 \leq \alpha_s \leq 1$). On génère aléatoirement cet événement et :
 - (a) si le photon est absorbé, l'échantillonnage du chemin optique est terminé,
 - (b) si le photon est diffusé, il continue sa propagation dans le milieu avec une nouvelle direction qui est générée aléatoirement selon la fonction de phase des micro-organismes.

(2) A ce stade, si la procédure d'échantillonnage n'est pas terminée, l'algorithme boucle à l'étape (1), et ainsi de suite jusqu'à ce qu'une absorption se produise.

Cette procédure d'échantillonnage est répétée pour un grand nombre de photons et à chaque chemin ainsi généré est associé un poids qui représente sa contribution à la grandeur physique qu'on cherche à évaluer, ici la vitesse locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ (qui est le nombre de photons absorbés au point \mathbf{x}_0 du volume réactionnel, par unité de temps et par unité de biomasse sèche, voir Chap. 1). \mathcal{A} est estimé comme la moyenne des poids et l'erreur numérique est donnée par l'écart-type de l'ensemble des poids. Cette pratique de codage est très proche d'un acte de modélisation car on peut directement choisir quels phénomènes physiques sont pris en compte, c'est-à-dire quels événements on choisit de faire vivre aux photons au sein de la simulation. Ainsi, il n'y a pas de problème conceptuel lié au traitement de la diffusion multiple ou des conditions aux limites : il suffit de suivre un photon qui se propage en ligne droite dans le milieu, rencontre un micro-organisme qui le diffuse et change donc sa direction de propagation, puis rencontre une paroi qui le réfléchit, et ainsi de suite.

Les algorithmes de Monte Carlo que nous venons de décrire sont dits *analogues* car il sont basés sur l'analogie avec le suivi d'un photons qui se propage dans le système. Nous avons vu au chapitre 4, section 4.2.3, que ces images en terme de chemins optiques sont en fait bien plus riches et qu'elle permettent de penser le transfert radiatif de manière plus subtile. Par exemple, nous avons vu que lors de la construction mentale d'un chemin optique, on peut se concentrer exclusivement sur les phénomènes de diffusion (et ici de réflexion) et ne prendre en compte l'absorption que dans la contribution de ce chemin, qui inclut alors une atténuation exponentielle $\exp[-k_a d]$, où k_a est le coefficient d'absorption du milieu et d est la longueur du chemin optique. Bien sûr, il en est de même lors de la construction numérique d'un chemin optique au sein d'un algorithme de Monte Carlo. On génère alors des chemins de diffusion et réflexion multiple, sans considérer l'absorption par les micro-organismes et par les parois, mais la contribution de ces chemins est pondérée par la transmission par absorption le long du chemin : $T_a = [\rho]^n \exp[-k_a d]$, où n est le nombre de réflexions à la surface de réflectivité ρ . La procédure d'échantillonnage des chemins optiques devient alors (toujours dans le cadre d'une illustration simple non-détaillée) :

- (1) Le photon suivi se propage en ligne droite dans le volume réactionnel. On génère aléatoirement sa prochaine position d'interaction :
 - dans le cas d'une interaction avec une surface réfléchissante, le photon est réfléchi et sa nouvelle direction de propagation est la direction de réflexion. Le poids de ce chemin est multiplié par la réflectivité ρ .
 - dans le cas d'une interaction avec un micro-organisme, le photon est diffusé et sa nouvelle direction de propagation est générée aléatoirement selon la fonction de phase

des micro-organismes.

(2) A ce stade, l'algorithme boucle à l'étape (1), et ainsi de suite.

Au terme de l'échantillonnage du chemin optique, le poids est multiplié par l'atténuation exponentielle $\exp[-k_a d]$ par absorption dans le volume réactionnel le long du chemin. Les deux visions (arrêt de la procédure d'échantillonnage par une absorption / pondération de la contribution du chemin par absorption) sont strictement équivalentes et les algorithmes de Monte Carlo mélangent souvent les deux points de vue. Par exemple, dans le cas de l'étude du photobioréacteur DiCoFluV, il y a deux types de surface réfléchissante : la surface externe du réacteur, qui est en acier inoxydable, et la surface des fibres optiques à éclairage latéral (voir Fig. 5.1). A la section 5.3, nous traiterons la réflexion à la surface des fibres avec la première approche (les chemins optiques pourront s'interrompre par absorption à la surface des fibres), et nous traiterons la réflexion à la surface externe du réacteur avec la seconde approche (les chemins optiques seront toujours réfléchis et leur contribution sera pondérée par la réflectivité).

De la même manière, la réciprocité des chemins optiques, qui a été introduite à la section 4.2.3 dans le cadre de la construction mentale des chemins optiques, est couramment employée pour leur échantillonnage numérique. Nous utiliserons cette image dans la section 5.3, où nous construirons un algorithme de Monte Carlo *réciproque* consistant en l'échantillonnage de chemins optiques partant de la position \mathbf{x}_0 à laquelle nous souhaitons évaluer \mathcal{A} , jusqu'à leur "absorption" à la surface émettrice des fibres. Ces chemins optiques réciproques sont échantillonnés selon la même physique que celle des chemins directs (mêmes propriétés de diffusion, d'absorption, de réflexion, etc), ce qui rend la vision réciproque très intuitive. Cependant, nous soulignons que les difficultés classiquement rencontrées lors de l'écriture des conditions aux limites d'une formulation réciproque d'un problème de transfert radiatif sont ici généralement reportées dans l'écriture des poids.

5.2 Configuration radiative utilisée pour la modélisation du photobioréacteur DiCoFluv

Géométrie. Le photobioréacteur DiCoFluV (voir Chap. 1 et [7]) correspond à une géométrie relativement complexe. Il s'agit d'un réacteur cylindrique en acier inoxydable contenant un millier de fibres optiques à éclairage latéral assurant une densité surfacique de flux émis quasi-homogène sur la totalité de leur surface (voir Fig. 5.1.a). La cuve externe du réacteur est notée \mathcal{R} et les fibres à éclairage latéral sont notées \mathcal{F} . Ces dernières sont immergées dans

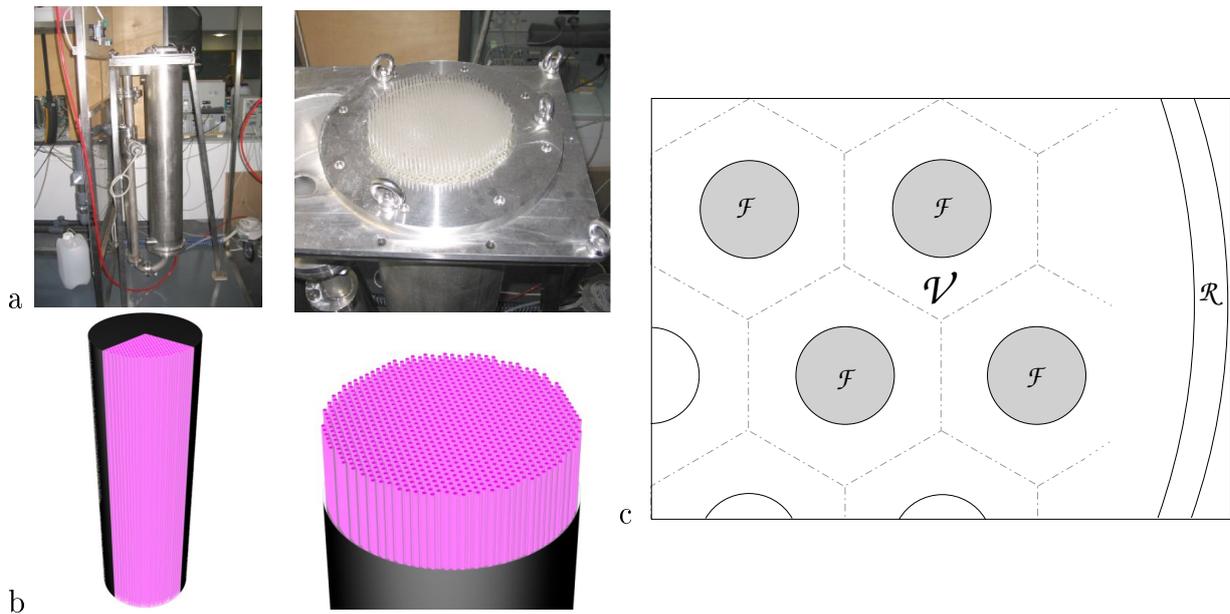


FIGURE 5.1: Prototype DiCoFluV de photobioréacteur à éclairage interne [7]. a : Cuve externe \mathcal{R} du réacteur et entrée des fibres \mathcal{F} dans le réacteur. b : Géométrie modélisée dans l'environnement EDStar (voir Sec. 5.4) : le réacteur \mathcal{R} et les 979 fibres \mathcal{F} sont des cylindres de 1 mètre de hauteur ; diamètre du réacteur 16.5 cm ; distance entre les axes de deux fibres plus proches voisines 4.8 mm ; rayon des fibres 1.2 mm. \mathcal{R} et \mathcal{F} sont réfléchissantes diffuses ; leur réflectivité respective $\rho^{\mathcal{R}}$ et $\rho^{\mathcal{F}}$ est homogène. \mathcal{F} émet un rayonnement lambertien de densité surfacique de flux homogène q_{ν} . c : Représentation schématique d'une coupe perpendiculaire à l'axe du réacteur. Disposition périodique des fibres dans le volume réactionnel \mathcal{V} selon un réseau hexagonal bidimensionnel dont les mailles sont tracées en pointillés.

le volume réactionnel \mathcal{V} , le tout étant contenu dans \mathcal{R} . Les fibres et le réacteur sont ici modélisés comme des cylindres dont les axes sont alignés. En d'autres termes, la modélisation consiste en un millier de petits cylindres \mathcal{F} contenus dans un cylindre \mathcal{R} plus grand, fermé par deux disques à ses extrémités (voir Fig. 5.1.b). Les fibres sont disposées périodiquement dans le volume réactionnel, selon un réseau hexagonal dans le plan perpendiculaire à leur axe (voir Fig. 5.1.c).

Propriétés radiatives du volume réactionnel \mathcal{V} . Nous considérons dans ce chapitre une culture de la micro-algue *Chlamydomonas reinhardtii* dont les propriétés radiatives ont été obtenues à partir de la méthodologie du chapitre 2. Les sections efficaces massiques d'absorption $\sigma_{a,\nu}$ et de diffusion $\sigma_{d,\nu}$, ainsi que le paramètre d'asymétrie g_{ν} de la fonction

de phase sont données à la figure 5.2 sur la gamme spectrale $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ étudiée (domaine correspondant au PAR, Photosynthetically Active Radiation). La densité de biomasse sèche C_x (c'est-à-dire la densité de micro-organismes) est homogène dans le volume réactionnel \mathcal{V} , sous l'hypothèse d'un mélange parfait, de sorte que les propriétés radiatives du volume sont : le coefficient d'absorption $k_{a,\nu} = C_x \sigma_{a,\nu}$, le coefficient de diffusion $k_{d,\nu} = C_x \sigma_{d,\nu}$ et la fonction de phase $p_{\Omega,\nu}^{\mathcal{V}}(\omega|\omega')$ de *Chlamydomonas reinhardtii* (nous n'utilisons pas seulement le paramètre d'asymétrie mais bien la fonction de phase obtenue au chapitre 2). Il n'y a par ailleurs pas d'émission dans le volume.

Propriétés des surfaces. La surface \mathcal{R} réfléchit le rayonnement de manière diffuse, c'est-à-dire que les directions de réflexion ω sont distribuées selon

$$p_{\Omega}^{\mathcal{R}}(\omega) = \frac{\omega \cdot \mathbf{n}_1}{\pi} \quad (5.1)$$

où \mathbf{n} est la normale à la position $\mathbf{x} \in \mathcal{R}$. Sa réflectivité est homogène sur la surface et est notée $\rho^{\mathcal{R}}$. La surface \mathcal{F} des fibres réfléchit aussi le rayonnement de manière diffuse ($p_{\Omega}^{\mathcal{F}}(\omega) = \frac{\omega \cdot \mathbf{n}_1}{\pi}$) et sa réflectivité $\rho^{\mathcal{F}}$ est homogène. De plus, \mathcal{F} émet un rayonnement lambertien de densité surfacique de flux homogène q_{ν} (dans notre étude, q_{ν} est exprimé en nombre de photons par unité de temps, de fréquence, et de surface).

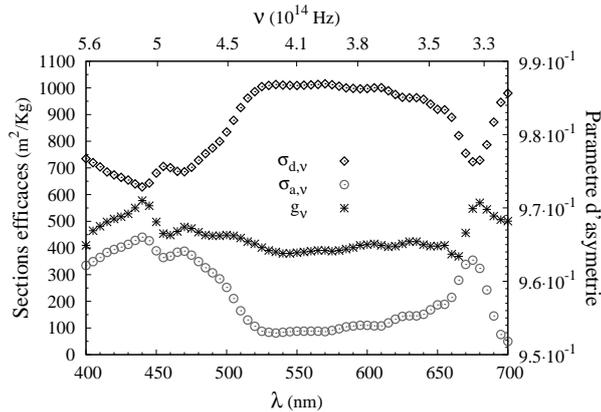


FIGURE 5.2: Propriétés radiatives de *Chlamydomonas reinhardtii* (voir, Chap. 2) dans la gamme spectrale du PAR (Photosynthetically Active Radiation) : sections efficaces massiques d'absorption $\sigma_{a,\nu}$ et de diffusion $\sigma_{d,\nu}$, paramètre d'asymétrie g_{ν} de la fonction de phase. Ces données sont disponibles à l'adresse www.starwest.ups-tlse.fr/monte-carlo-concentrated-solar-examples, y compris la tabulation angulaire des fonctions de phase.

5.3 Présentation d'un algorithme de Monte Carlo pour l'évaluation du champ de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons au sein du photobioréacteur DiCoFluV

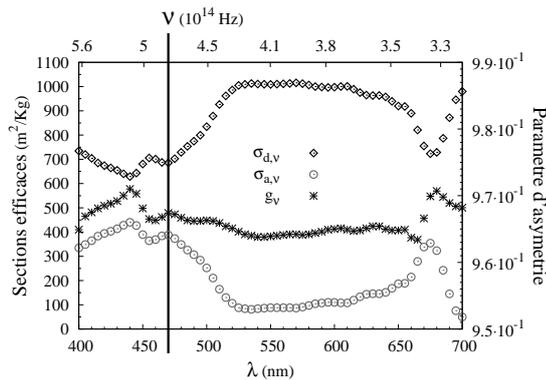
Dans cette section, nous allons construire un algorithme de Monte Carlo pour l'évaluation de la vitesse locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ en n'importe quel point \mathbf{x}_0 du volume réactionnel du prototype DiCoFluV. On rappelle l'expression de \mathcal{A} :

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}_0 \sigma_{a,\nu} \hat{L}_\nu(\mathbf{x}_0, -\boldsymbol{\omega}_0) \quad (5.2)$$

où $\hat{L}_\nu(\mathbf{x}_0, -\boldsymbol{\omega}_0)$ est la luminance en \mathbf{x}_0 dans la direction $-\boldsymbol{\omega}_0$ à la fréquence ν , et 4π est l'angle solide total. Nous adoptons dans la suite une organisation d'écriture dans laquelle chaque étape de l'algorithme est décrite et illustrée par une figure.

L'algorithme qui suit consiste en l'échantillonnage, pour toutes les fréquences appartenant à la gamme $[\nu_{min}, \nu_{max}]$, des chemins optiques réciproques partant de la position \mathbf{x}_0 dans toutes les directions $\boldsymbol{\omega}_0$, jusqu'à leur "absorption" à la surface émettrice \mathcal{F} :

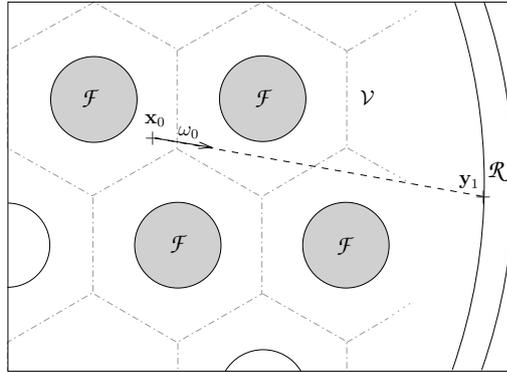
- (1) Premièrement une fréquence ν est générée aléatoirement sur $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ suivant une densité de probabilité uniforme $p_\nu(\nu) = \frac{1}{\nu_{max} - \nu_{min}}$. Cette fréquence détermine l'ensemble des propriétés spectrales pour le chemin optique échantillonné : les propriétés radiatives du volume réactionnel et la densité de flux q_ν émise par les fibres \mathcal{F} .



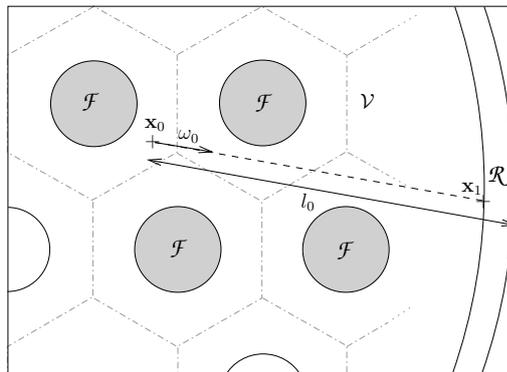
- (2) Puis, partant de la position \mathbf{x}_0 , une première direction $\boldsymbol{\omega}_0$ est générée sur l'angle solide total suivant une densité de probabilité isotrope $p_{\Omega_0}^V(\boldsymbol{\omega}_0) = \frac{1}{4\pi}$, et une première longueur de diffusion l_0 est générée sur $[0, \infty]$ en accord avec la loi d'extinction exponentielle par diffusion, c'est-à-dire que la densité de probabilité de l_0 est $p_{L_0,\nu}(l_0; k_{d,\nu}) = k_{d,\nu} \exp(-k_{d,\nu} l_0)$.

(3) Maintenant que $\{\mathbf{x}_0, \omega_0, l_0\}$ a été généré, la première position d'interaction $\mathbf{x}_1 \equiv \mathbf{x}_1(\mathbf{x}_0, \omega_0, l_0)$ est déterminée.

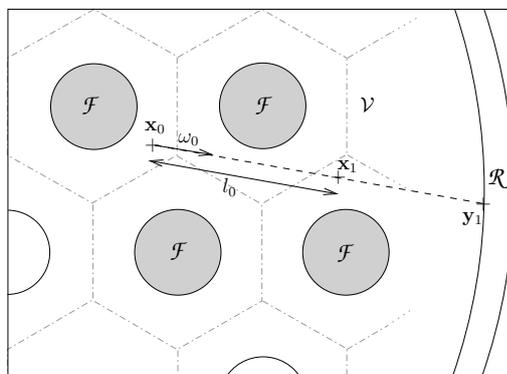
- Tout d'abord, la position $\mathbf{y}_1 \equiv \mathbf{y}_1(\mathbf{x}_0, \omega_0)$ correspondant à la première fois que la demi-droite partant de \mathbf{x}_0 dans la direction ω_0 intersecte la frontière du système $\mathcal{R} \cup \mathcal{F}$ est déterminée :



- Si la distance $\|\mathbf{y}_1 - \mathbf{x}_0\|$ entre le point \mathbf{x}_0 et la surface $\mathcal{R} \cup \mathcal{F}$ est plus petite que la longueur de diffusion, le chemin optique interagit avec une surface, c'est-à-dire $\mathbf{x}_1 = \mathbf{y}_1$ (la figure illustre le cas d'une interaction avec \mathcal{R}) :

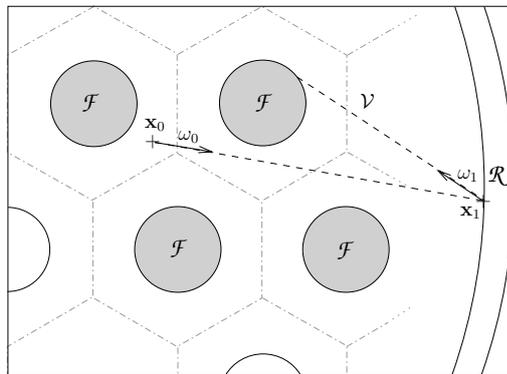


- Si la distance $\|\mathbf{y}_1 - \mathbf{x}_0\|$ entre le point \mathbf{x}_0 et la surface $\mathcal{R} \cup \mathcal{F}$ est plus grande que la longueur de diffusion, le chemin optique interagit avec le volume réactionnel, c'est-à-dire $\mathbf{x}_1 = \mathbf{x}_0 + l_0 \omega_0$:

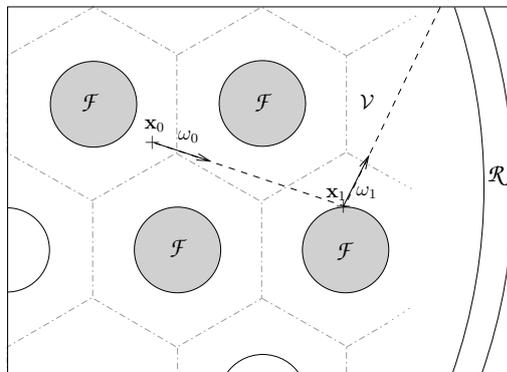


Puis, l'algorithme suit une des branches suivantes en fonction de la nature de l'interaction :

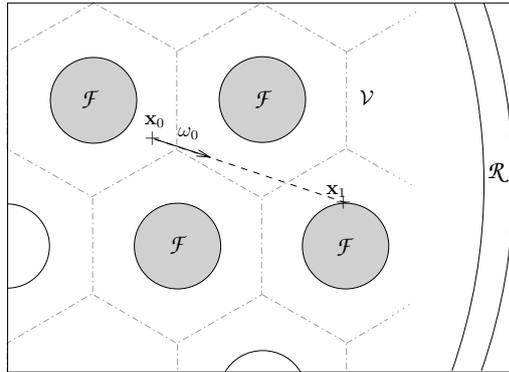
- Dans le cas d'une interaction avec la surface extérieure \mathcal{R} du réacteur, une direction de réflexion ω_1 est générée suivant la distribution angulaire diffuse $p_{\Omega_1}^{\mathcal{R}}(\omega_1) = \frac{\omega_1 \cdot \mathbf{n}_1}{\pi}$ (\mathbf{n}_1 étant la normale à la position \mathbf{x}_1), le poids \hat{w} est multiplié par la réflectivité du réacteur $\rho^{\mathcal{R}}$ (voir l'expression de \hat{w} à l'équation 5.3), et une nouvelle longueur de diffusion l_1 est générée suivant la même loi d'extinction que pour l_0 ($p_{L_1, \nu} \equiv p_{L_0, \nu}$) :



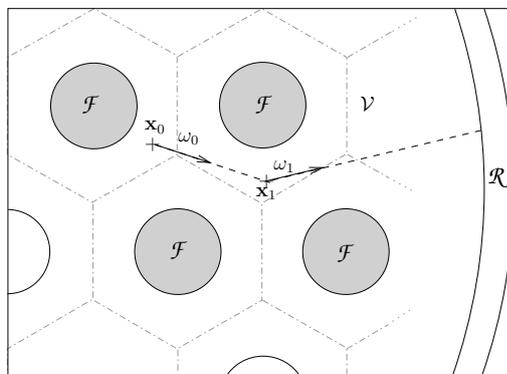
- Dans le cas d'une interaction avec les fibres \mathcal{F} , une roulette russe est mise en œuvre. Un nombre r_1 est généré aléatoirement entre 0 et 1 suivant une densité de probabilité uniforme $p_{R_1} = 1$.
 - Si r_1 est plus petit que la réflectivité des fibres $\rho^{\mathcal{F}}$, alors le chemin optique est réfléchi. Une direction ω_1 et une longueur de diffusion l_1 sont générées aléatoirement comme cela est décrit plus haut ($p_{\Omega_1}^{\mathcal{F}} \equiv p_{\Omega_1}^{\mathcal{R}}$) :



- Sinon, la procédure d'échantillonnage du chemin optique est terminée et le poids est calculé suivant Eq. 5.3 :



- Finalement, si \mathbf{x}_1 appartient au volume de culture \mathcal{V} , une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ est générée aléatoirement suivant la fonction de phase $p_{\Omega_1, \nu}^{\mathcal{V}}(\boldsymbol{\omega}_1 | \boldsymbol{\omega}_0)$ des micro-organismes et l_1 est générée aléatoirement tel que décrit plus haut :



- (4) A ce stade, si la procédure d'échantillonnage n'est pas terminée, l'algorithme boucle à l'étape (3) en considérant la prochaine position d'interaction (les indices étant incrémentés), et ainsi de suite jusqu'à ce qu'une absorption à une fibre ait lieu.

Au final, un chemin optique est échantillonné (comme dans l'exemple de la figure 5.3) et il sert à l'évaluation d'un poids selon la fonction de poids \hat{w}_j (Eq. 5.3) qui correspond à la luminance émise à la surface des fibres \mathcal{F} (ce sont les seules surfaces émettrices et tous les chemins finissent par une absorption sur \mathcal{F}) atténuée exponentiellement par absorption le long du chemin (c'est-à-dire entre le point \mathbf{x}_0 et la position d'absorption sur \mathcal{F}). La procédure est répétée un grand nombre de fois et $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ est estimé comme la moyenne de l'ensemble des poids obtenus et l'erreur numérique est estimée par l'écart-type.

$$\hat{w}_j = (\nu_{max} - \nu_{min}) 4\pi \sigma_{a,\nu} \frac{q_\nu}{\pi(1-\rho^{\mathcal{F}})} [\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} e^{-k_{a,\nu} d_j} \quad (5.3)$$

où

- $\frac{q_\nu}{\pi(1-\rho^{\mathcal{F}})}$ est la luminance corps noir équivalente émise à la surface des fibres. L'émission étant lambertienne, la densité de flux émise est $q_\nu = \pi \varepsilon \hat{L}^0$, avec \hat{L}^0 la luminance du corps noir équivalent et ε son émissivité. Ici, compte tenu de la propriété de réflexion de la surface, $\varepsilon = 1 - \rho^{\mathcal{F}}$.
- $[\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} e^{-k_{a,\nu} d_j}$ est la transmission par absorption le long du chemin, avec
- $n_j^{\mathcal{R}}$ le nombre d'interactions avec \mathcal{R} avant la j -ème interaction (l'interaction qui mène à une absorption à la fibre) :

$$n_j^{\mathcal{R}} = \sum_{q=0}^{j-1} [1 \times H(\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}) + 0 \times H(\mathbf{x}_q \in \mathcal{F} \cup \mathcal{V})] \quad (5.4)$$

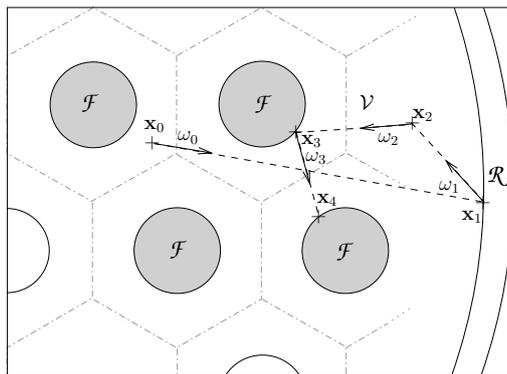


FIGURE 5.3: Exemple de chemin optique échantillonné par l'algorithme de Monte Carlo que nous utilisons pour l'estimation de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ au point \mathbf{x}_0 du volume réactionnel du prototype DiCoFluV. Chemin particulier : $j = 4$ et $n_j^{\mathcal{R}} = 1$.

$H()$ étant la fonction échelon qui prend la valeur 1 si la condition entre parenthèses est satisfaite, 0 sinon.

- d_j est la longueur totale du chemin échantillonné :

$$d_j = \sum_{q=0}^{j-1} \|\mathbf{x}_{q+1} - \mathbf{x}_q\| \quad (5.5)$$

On remarque que le facteur $(\nu_{max} - \nu_{min}) = 1/p_\nu(\nu)$ est introduit dans l'expression du poids car nous souhaitons calculer l'intégrale de la densité fréquentielle \mathcal{A}_ν sur $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ et non pas sa moyenne (voir Eq. 5.2), et de manière identique, $4\pi = 1/p_{\Omega_0}^\nu$ est introduit car nous souhaitons prendre en compte l'ensemble des contributions des photons qui arrivent en \mathbf{x}_0 dans toutes les directions (c'est-à-dire $\hat{L}(\mathbf{x}_0, -\boldsymbol{\omega}_0)$ intégré sur l'angle solide total et non pas la moyenne angulaire).

Les résultats de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ obtenus avec l'algorithme ci-dessus sont présentés à la figure 3 de la section 5.5.

5.4 Mise en œuvre pratique au sein de l'environnement de développement EDStar

Dans cette section, nous faisons part d'une expérience particulière de la mise en œuvre des algorithmes de Monte Carlo. Elle s'articule autour de l'environnement de développement EDStar [21], qui a été utilisé pour l'obtention de l'ensemble des résultats présentés dans ce chapitre, ainsi que ceux du chapitre 6. L'environnement de développement EDStar rassemble de manière cohérente un ensemble de bibliothèques de calcul scientifique et de bases de données qui apportent une aide significative aux physiciens du transfert radiatif lors de l'implémentation de leurs propres algorithmes. EDStar n'est pas un logiciel contenant un ensemble de codes préétablis et figés, mais est un environnement privilégié pour la construction et la mise en œuvre numérique d'algorithmes, notamment d'algorithmes de Monte Carlo. Les outils mis à disposition qui sont directement en lien avec notre étude sont :

- les bases de données de propriétés radiatives, ici les propriétés radiatives des micro-organismes photosynthétiques obtenues avec la méthodologie du chapitre 2,
- les bibliothèques de calcul scientifique pour le calcul parallèle,
- les bibliothèques de calcul scientifique issues de la communauté de la synthèse d'image pour la modélisation de géométries complexes (voir Fig. 5.1) et pour l'accélération du suivi de rayon dans ces géométries.

Avant de rentrer plus en détail dans la présentation de l'environnement EDStar, nous soulignons dans ce paragraphe deux caractéristiques générales de la méthode de Monte Carlo (caractéristiques indépendantes de l'utilisation d'un outil numérique particulier) qui ont une forte influence sur la gestion pratique de leur mise en œuvre. Premièrement, la méthode de Monte Carlo est particulièrement adaptée à la parallélisation puisque l'algorithme consiste à répéter un grand nombre de fois, et de manière indépendante, la même procédure d'échantillonnage d'un chemin optique (l'échantillonnage d'un chemin est indépendant des autres chemins). Lors de la parallélisation, le besoin de communication entre les processus est ainsi limité : il suffit de rassembler l'ensemble des poids obtenus, une fois tous les chemins générés indépendamment, afin de calculer leur moyenne et leur écart-type. La principale difficulté de la parallélisation des algorithmes de Monte Carlo consiste à assurer l'indépendance des générations aléatoires. Deuxièmement, nous avons vu à la section 5.3, lors de la présentation de notre algorithme, que la gestion numérique de la géométrie complexe est ici exclusivement limitée au calcul de la première intersection entre une demi-droite et un grand nombre de surfaces. Nous pouvons donc nous concentrer sur un problème de géométrie bien identifié (le calcul d'intersection) qui est complètement indépendant de la physique du transfert radiatif, et qui fait par ailleurs l'objet d'études spécifiques dans le domaine des mathématiques. Cette question géométrique étant commune à tous les algorithmes de Monte Carlo en transfert radiatif (en absence d'effets réfractifs courbant les chemins), les solutions apportées dans ce domaine sont directement bénéfiques à l'ensemble de la communauté.

Ces deux spécificités (indépendance des procédures d'échantillonnage et calcul d'intersection) sont depuis longtemps identifiées, et la communauté de la synthèse d'image s'est largement investie autour de la question de leur signification en terme d'optimisation numérique, notamment dans le cadre de l'application aux jeux vidéo et aux films d'animation (voir par exemple [125]). L'objectif de ces travaux est de disposer d'un rendu d'images de qualité (basé sur une modélisation pertinente du transfert radiatif aux fréquences visibles), pour des temps de calcul compatibles avec l'obtention d'un grand nombre de ces images (films d'animation), voire la nécessité d'une animation en temps réel (jeux vidéo). La problématique est donc double : il faut d'abord être capable de *modéliser les scènes*, c'est-à-dire de décrire des géométries composées de millions de facettes et d'en définir les propriétés de surface¹, puis, il faut gérer efficacement le suivi de rayon au sein d'une scène complexe (il est ici inimaginable de tester une à une les intersections avec chaque facette, à chaque changement de direction

1. Les propriétés des milieux semi-transparents sont bien sûr traités en synthèse d'image, mais à l'heure actuelle, leur modélisation n'est pas satisfaisante pour une application au contexte de la physique du transfert radiatif.

du rayon provoqué par une interaction avec la scène). La principale contribution de cette communauté est le développement d'une conceptualisation permettant d'embrasser l'ensemble de ces problématiques, en adoptant une pensée du problème qui est à la fois adaptée au besoin d'une représentation fidèle du transfert radiatif et à la finalité de la construction d'un programme informatique. Les concepts d'*abstraction géométrique* correspondants (*primitive, shape, material*) sont autant d'outils pour penser les intersections et les interactions en accord avec la physique du rayonnement, tout en étant cohérents avec la dimension informatique (numérique et matérielle) de l'acte de codage. Ces abstractions sont alors manipulés au sein de structures accélératrices (voxélisation, kd-tree, etc), aboutissant à des outils numériques cohérents et optimisés (voir [125] et les références qui y sont citées).

Ce savoir-faire de la communauté de la synthèse d'image est aujourd'hui assez mûr pour être utilisé dans le contexte de la recherche en transfert radiatif, mais bien que l'intérêt de ces outils soit clairement identifié, l'appropriation des concepts et des techniques mis en jeu, ainsi que leur adaptation à notre pratique, constituent une problématique de recherche à part entière. Depuis plusieurs années, les équipes des laboratoires LAPLACE et RAPSODEE travaillent en collaboration avec des chercheurs spécialistes du rendu en image de synthèse (laboratoire IRIT, équipe Vortex) afin de rendre l'utilisation de ces outils cohérente avec les attentes des physiciens du transfert radiatif [126, 127] : gestion rigoureuse de l'indépendance des générations aléatoires lors de calculs parallèles, intégration simple des outils d'accélération du suivi de rayon au sein des algorithmes de transfert radiatif, calcul de la moyenne et de l'écart-type des poids, ainsi que de leurs covariances lorsque plusieurs grandeurs sont évalués à l'aide des mêmes chemins, notamment dans le cas des calculs de sensibilités. Au terme de ce travail, nous disposons maintenant d'une librairie flexible (Mcm3D [127]) que nous distribuons librement au sein de EDStar [21]. Elle nous permet de développer, au cas par cas, des algorithmes dans un environnement où :

- la parallélisation utilise la librairie MPI (Message Passing Interface [128]), avec une attention toute particulière à l'indépendance des générations aléatoires (un processus étant dédié à cette tâche),
- la GSL (GNU Scientific Library [129]) est utilisée pour la génération uniforme de nombres aléatoires contenus dans l'intervalle $[0, 1]$, avec la possibilité d'employer différents générateurs aléatoires (parmi les mieux validés et les mieux documentés),
- le suivi de rayon utilise les outils issus de la recherche en synthèse d'image dans le cadre du projet Physically Based Rendering Techniques (pbrt [125]). Ces outils assurent la représentation géométrique des surfaces, la définition des rayons (en tant que demi-droites caractérisées par leur origine et leur direction, les effets de courbure liés à des variations continues d'indice de réfraction étant exclus), le calcul rapide de l'intersec-

tion entre un rayon et la première surface rencontrée, ainsi que l'accès aux propriétés de la surface au point d'impact.

En pratique, lorsque l'on développe un algorithme de Monte Carlo dans EDStar, on code chaque aspect de la simulation au sein d'un fichier bien distinct (ce découpage est en lien avec la conceptualisation du problème qui a été évoquée plus haut) et la parallélisation du code est "automatique". Les plus importants de ces fichiers sont présentés ci-dessous et un exemple commenté, correspondant à l'implémentation d'un algorithme très similaire à celui de la section 5.3, est disponible à l'adresse www.starwest.ups-tlse.fr/monte-carlo-concentrated-solar-examples :

- (1) Le fichier dédié à la définition de la géométrie et à la définition des propriétés de surface (la *scène* dans le vocabulaire de la synthèse d'image). Dans le cas de l'algorithme présenté à la section 5.3, nous avons nommé ce fichier `pilot.pbrt`. Il contient la définition du millier de cylindres composant la géométrie du photobioréacteur DiCoFluV, ainsi que la caractérisation de leurs propriétés d'émission et de réflexion.
- (2) Un ensemble de fichiers d'entrées/sorties : le fichier `mcm.in` dans lequel on spécifie le nombre de réalisations de l'algorithme de suivi de rayon et les paramètres de la génération des nombres aléatoires (germes, cycles, etc), les fichiers `mcmVariables.h` et `mcmEntrees.h` dans lesquels on code toutes les procédures de lecture de données antérieures à la génération aléatoire des chemins (dans notre exemple, ces fichiers sont utilisés pour le chargement des propriétés radiatives du volume réactionnel), le fichier `mcm.out` dans lequel les résultats sont disponibles au terme de la simulation et le fichier `mcmSorties.h` dans lequel on code d'éventuelles procédures de post-traitement des résultats.
- (3) Le fichier `mcmAlgo.h` qui est dédié au codage de la procédure d'échantillonnage d'un chemin optique. Au sein de ce fichier, on bénéficie notamment
 - de l'objet `Ray`, qui définit un rayon,
 - des fonctions correspondant au calcul rapide d'intersection : voir la fonction `OrientedIntersect()` dans l'exemple fourni (ou `Intersect()` dans [125]), qui prend en entrée un rayon et renvoie un objet `Intersection`, c'est-à-dire un point de l'espace et les propriétés de la surface intersectée à ce point,
 - des fonctions facilitant la gestion des propriétés de surfaces : échantillonnage uniforme sur l'ensemble des surfaces émettrices définies dans le fichier (1), échantillonnage des directions d'émissions et de réflexion en fonction des distributions angulaires définies dans le fichier (1) (pour la position considérée).
- (4) Le fichier `mcmMethodes.h` dans lequel on code nos propres fonctions, auxquelles nous pouvons ensuite faire appel depuis le fichier `mcmAlgo.h`.

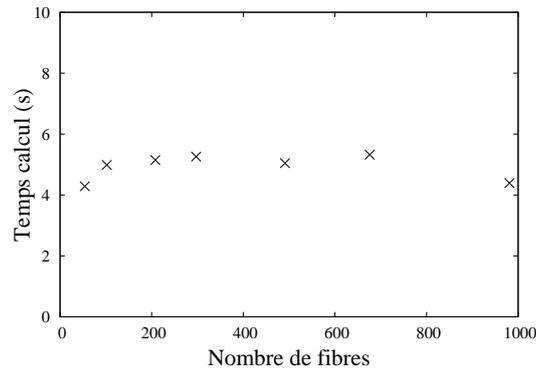


FIGURE 5.4: Temps de calcul pour l'évaluation de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} au sein du volume réactionnel du photobioréacteur DiCoFluV à partir de l'algorithme de la section 5.3 implémenté dans l'environnement de développement EDStar. Temps observés en fonction du nombre de fibres optiques à éclairage latéral dans le réacteur (voir la définition de la géométrie du réacteur à la figure 5.1).

Cette distinction des actes de codage (qui est le reflet des abstractions issues de la recherche en synthèse d'image) donne beaucoup de souplesse à la charnière entre l'acte de modélisation (géométrique et radiative) et la mise en œuvre algorithmique : construction de la configuration radiative dans le fichier (1) (géométrie et conditions aux limites) et dans les fichiers (2) (pour les propriétés du volume²), puis échantillonnage des chemin optiques et calcul des poids dans le fichier `mcmAlgo.h`. Une conséquence pratique directe est que le fichier `mcmAlgo.h` est totalement indépendant de la géométrie du système étudié. En modifiant seulement le fichier (1), on peut ainsi répéter le même calcul de transfert radiatif pour différentes géométries, en faisant par exemple varier le nombre, le diamètre ou l'espacement des fibres du photobioréacteur DiCoFluV, voire en revenant à la géométrie torique des chapitres 1 et 4. De plus, grâce à cette organisation, nous observons à la figure 5.4 des temps de calcul quasi-indépendants de la complexité géométrique du système, ce qui serait impossible sans l'édifice conceptuel mis à notre disposition par la communauté informatique.

2. La définition des volumes et de leurs propriétés devrait à terme être incluse au fichier (1).

5.5 Calcul de sensibilité et guidage de l'échantillonnage par importance grâce à l'approximation P1, ou à l'approximation de la diffusion simple : utilisation du concept de zéro-variance.

Cette section correspond à un article publié dans *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* [130]. Nous préférons ici une édition différente de [130] mais le texte n'a en rien été modifié.

Jusqu'à présent, la méthode de Monte Carlo a été décrite comme une simple simulation de la statistique du transport corpusculaire. Nous allons maintenant changer de regard et appréhender la méthode de Monte Carlo de manière beaucoup plus subtile en nous appuyant sur la *formulation intégrale*. Cela va nous permettre de modifier l'algorithme de la section 5.3 afin d'estimer simultanément \mathcal{A} et ses sensibilités à la réflectivité des fibres optiques, aux propriétés spectrales d'absorption des micro-organismes photosynthétiques et à la concentration en biomasse dans le réacteur, ce qui autorisera une analyse plus fine du procédé, étayée par des résultats qui ne se limitent plus à la seule information sur le champ de \mathcal{A} mais aussi sur les champs de ses sensibilités (section 3 de l'article). Nous notons que cette pratique sera étendue au calcul des sensibilités de la productivité moyenne du photobioréacteur DiCoFluV au chapitre 6. Dans la section 4 de l'article, nous améliorerons la convergence de l'algorithme présenté à la section 5.3 en pilotant les procédures d'échantillonnage des fréquences et des directions de départ, afin d'orienter l'algorithme vers un échantillonnage préférentiel des chemins optiques qui ont une forte contribution à \mathcal{A} . Nous adopterons pour cela une posture consistant à chercher la procédure d'échantillonnage idéale, assurant l'obtention d'un algorithme à variance nulle qui évaluerait \mathcal{A} de façon exacte à l'aide d'une seule réalisation statistique (c'est-à-dire l'obtention d'un algorithme à *zéro-variance* [121, 122]). Puis, nous nous appuierons sur notre compréhension physique des photobioréacteurs afin de nous approcher au mieux de cet algorithme idéal. En pratique, cela reviendra à construire des procédures d'échantillonnages optimisées, à partir des approximations P1 et de la diffusion simple (voir Secs. 4.4 et 4.5) dont nous avons montré au chapitre 4 qu'elles permettent une analyse fine du phénomène de diffusion multiple dans les photobioréacteurs. Ceci nous permettra de capter les événements statistiques à privilégier et d'améliorer ainsi la convergence de notre algorithme.

A tout algorithme Monte Carlo correspond une formulation intégrale qui s'avère, en pratique, être un outil formel extrêmement précieux [123, 124, 127]. Dans le cas du transfert

radiatif, cette expression mathématique formalise l'intégration, par l'algorithme, des contributions de tous les chemins optiques à la grandeur estimée (cette intégrale étant approchée par la somme des poids, c'est-à-dire la somme des contributions des chemins générés par la procédure d'échantillonnage). Comme nous l'avons vu à la section 4.2.3, la formulation intégrale de l'équation de transfert radiatif est directement interprétable en terme de chemin optique, et réciproquement, la construction mentale des chemins optiques peut être associée à la construction d'une formulation intégrale. Le principe est ici le même, à la différence que la construction des chemins optiques est algorithmique (plutôt que mentale). Lorsque l'on construit ou que l'on modifie un algorithme de Monte Carlo, le fait de disposer systématiquement de la formulation intégrale correspondante est alors très utile, et notre pratique de la méthode de Monte Carlo est fondamentalement basée sur l'utilisation de cet outil formel : nous avons pour l'instant présenté notre algorithme (voir section 5.3) sans jamais faire appel explicitement à une quelconque formulation intégrale, mais ce n'est pas un reflet fidèle de notre pratique. Les allers-retours entre algorithmique et formulation ont au contraire été permanents, sans jamais perdre l'avantage de la manipulation des images physiques intuitives développées à la section 5.3, et la représentation de la structure de l'algorithme est finalement devenue, à nos yeux, beaucoup plus explicite dans la formulation intégrale qui est donnée aux équations (8) et (9) de l'article, plutôt que l'énumération des procédures algorithmiques qui est donnée à la section 5.3. Dans le présent manuscrit, nous avons essayé d'adopter une organisation d'écriture permettant au lecteur non-spécialiste de s'approprier autant que possible notre travail. A ce titre, bien que les chapitres 5, 6 et 7 soient le résultat d'une pratique fondamentalement basée sur la formulation intégrale, nous ferons le choix (dans la mesure du possible) de l'écarter des discussions.

Mais le travail que nous présentons dans l'article qui suit, sur le calcul de sensibilité et l'utilisation du concept de zéro-variance, ne peut être abordé sans elle. Le lecteur intéressé trouvera dans la section 2 de l'article, une construction didactique que nous espérons être une introduction à la pratique des écritures intégrales.

Cette construction part de la description algorithmique de la section 5.3 et chacune des procédures d'échantillonnage est traduite en une expression mathématique rigoureusement équivalente. Nous tenons à souligner que, même si nous avons fait en sorte que le lecteur puisse choisir de se rendre directement aux chapitres suivants, la lecture de l'article qui suit peut aussi (indépendamment de son objectif premier) être utile à un approfondissement des discussions des chapitres 6 et 7. Notons également que contrairement à la notation choisie dans ce manuscrit, la concentration en biomasse sèche C_x est notée η dans l'article qui suit. De plus, l'indice d , qui fait référence aux propriétés de diffusion (dans la notation du

coefficient de diffusion k_d par exemple), devient ici s . Nous rappelons par ailleurs la définition de la luminance \hat{L}_ν exprimée en nombre de photons à partir de la luminance L_ν exprimée dans une unité énergétique (voir Chap. 4) :

$$\hat{L}_\nu = \frac{L_\nu}{h\nu} \quad (5.6)$$

où h est la constante de Planck. De la même manière, la densité surfacique de flux q_ν exprimée en nombre de photons est reliée à φ_ν par

$$q_\nu = \frac{\varphi_\nu}{h\nu} \quad (5.7)$$

Nous signalons ici que les modèles approchés utilisés à la section 4 de l'article pour l'amélioration de la convergence de l'algorithme (simplification de la géométrie du prototype DiCoFluV et mise en œuvre des approximations P1 et de la diffusion simple) ont été introduites au chapitre 4 paragraphes 4.4 et 4.5 et sont détaillées en annexe D du présent manuscrit.

The practice of recent radiative transfer Monte Carlo advances and its contribution to the field of microorganisms cultivation in photobioreactors

Jérémi Dauchet^{1,2,3}, Stéphane Blanco², Jean-François Cornet¹,
Mouna El Hafi³, Vincent Eymet³, and Richard Fournier²

¹ Clermont Université, ENSCCF, Institut Pascal - UMR 6602, BP 10448, F-63000 Clermont-Ferrand, France

² Université Paul Sabatier, UMR 5213 - Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (LAPLACE), Bt. 3R1, 118 route de Narbonne, F-31062 Toulouse cedex 9, France

³ Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, Campus Jarlard, FRE CNRS 3213 - Centre de Recherche d'Albi en génie des Procédés des Solides Divisés, de l'Energie et de l'Environnement (RAPSODEE), F-81013 Albi CT cedex 09, France

E-mail: jeremi.dauchet@laplace.univ-tlse.fr

Abstract. The present text illustrates the practice of integral formulation, zero-variance approaches and sensitivity evaluations in the field of radiative transfer Monte Carlo simulation, as well as the practical implementation of the corresponding algorithms, for such realistic systems as photobioreactors involving spectral integration, multiple scattering and complex geometries. We try to argue that even in such non-academic contexts, strong benefits can be expected from the effort of translating the considered Monte Carlo algorithm into a rigorously equivalent integral formulation. Modifying the initial algorithm to simultaneously compute sensitivities is then straightforward (except for domain deformation sensitivities) and the question of enhancing convergence is turned into that of modeling a set of well identified physical quantities.

1. Introduction

During the last 15 years, significant methodological advances have been reported in the field of Monte Carlo simulation of linear transport phenomena, in particular as far as radiative transfer is concerned [1, 2, 3]. Among them, attention is here devoted to integral formulation, zero-variance approaches [4, 5] and sensitivity evaluations [6], as well as to the question of implementing practically the corresponding algorithms when thinking of realistic systems involving spectral integration, multiple scattering and complex geometries. Such techniques all rely on the premise that Monte Carlo algorithms can be designed in more subtle ways than making direct analogies with the statistics of corpuscular transport. But along this line a main advantage of Monte Carlo practice seems to be lost. The fact that standard radiative transfer Monte Carlo codes can be pictured as close translations of well established physical pictures of photon emission, diffusion, scattering, reflection and absorption implies indeed that such codes are easy to design and easy to upgrade toward the representation of additional (or further accurate) physical phenomena. If the use of advanced Monte Carlo techniques implies that these physical pictures

are hidden behind complex algorithmic tricks, or that the corresponding codes become so complex that implementation and upgrading are sources of strong practical difficulties, then radiative transfer specialists will be reluctant to make an effective use of these techniques, whatever their expected benefits. We try to argue here (and illustrate with a photobioreactor example) that these drawbacks vanish as soon as a strict relationship is made, in an explicit manner, between the considered linear transport Monte Carlo algorithm and the corresponding integral transport formulation. Provided that the relationship is made systematically, whatever the complexity of the problem, the whole reasoning can be made in terms of radiative transfer formulations, keeping all the immediate benefits of available physical pictures. This also implies that the technical aspects that have no direct relation with physical reasoning, in particular the statistical treatments, parallelization, pure geometrical considerations, etc, can all be translated into scientific computation libraries and can be used in quite straightforward manners.

Photobioreactors are processes of biomass production in which photosynthesis is catalyzed by photosynthetic microorganisms in aqueous suspensions constituting non-gray absorbing and anisotropically scattering media. Careful radiation transfer analysis of photobioreactors is identified as the clue for efficient design and efficient operation [7, 8, 9, 10, 11]. Monte Carlo methods seem to be appropriate for such analysis since they allow to tackle the intermediate optical depths and quite complex geometries that are encountered in this context. The present work focuses on a cylindrical reactor prototype (cultivating the micro-algae *Chlamydomonas reinhardtii*) in which the incident solar light flux density is diluted in the volume of culture thanks to a thousand of light-diffusing optical fibers emitting a quasi homogeneous density flux on the totality of their surface. All details and the corresponding notations are provided in Fig. 1 and Fig. 2 (the microorganism density η is uniform within the culture volume \mathcal{V} , emission is negligible, $k_{a,\nu} = \eta \sigma_{a,\nu}$ and $k_{s,\nu} = \eta \sigma_{s,\nu}$ are the absorption and scattering coefficients). The following methodological discussions address the estimation of the specific number of photons $A(\mathbf{x}_0)$ absorbed in the photosynthetically active radiation domain $[\nu_{min}, \nu_{max}]$, at a location \mathbf{x}_0 within the microorganism suspension:

$$A(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{\eta} \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \int_{4\pi} d\omega_0 k_{a,\nu} \frac{L_\nu(\mathbf{x}_0, -\omega_0)}{h\nu} = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} d\nu \int_{4\pi} d\omega_0 \sigma_{a,\nu} \frac{L_\nu(\mathbf{x}_0, -\omega_0)}{h\nu} \quad (1)$$

where $L_\nu(\mathbf{x}_0, -\omega_0)$ is the intensity at \mathbf{x}_0 in the direction $-\omega_0$ at frequency ν , and h is the Planck's constant.

$A(\mathbf{x}_0)$ locally determines the kinetics of production within the culture volume since it represents the energy that enters the photosynthesis [7]. The surface productivity of photobioreactors is directly linked to their energetic efficiency which estimation implies to calculate $A(\mathbf{x}_0)$ for more than 10^6 different locations in order to evaluate the production rates integrated over the whole reactor volume (which can not be done inside the presented Monte Carlo algorithm since the local production rates are non-linear functions of $A(\mathbf{x}_0)$). This calculation is then repeated for several sets of operational and design parameters, as part of design/operation optimization procedures. Therefore, the reduction of the calculation times and the opportunity to estimate sensitivities of $A(\mathbf{x}_0)$ at low calculation costs (in order to accelerate the optimization procedures, thinking for example of a method of steepest descent) both constitute important practical concerns. For these reasons, the simulations presented hereafter are parallelized and make use of computation tools developed by the computer graphics research community for the acceleration of photon tracking in complex geometries (using the scientific computation libraries available within the EDStar development environment, see www.starwest.ups-tlse.fr/edstar and [3]). But we keep these technical aspects aside and we concentrate in acceleration potentials related to sensitivity evaluation, in Sec. 3, and importance sampling in conjunction with the zero-variance methodology, in Sec. 4. Both require that a complete integral formulation be constructed, strictly reflecting the retained Monte Carlo algorithm. This is the objective of Sec. 2.

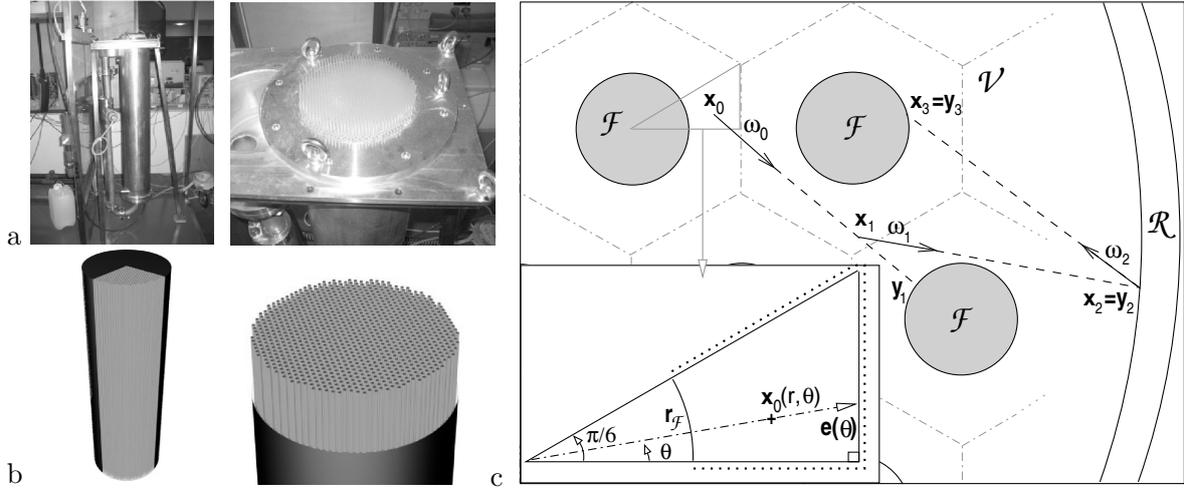


Figure 1. a: Prototype of solar volumetrically lightened photobioreactor [8]. b: EDStar geometry: both the reactor (\mathcal{R}) and the 979 light-diffusing optical fibers (\mathcal{F}) are cylinders of height $1m$; reactor diameter is $16.5cm$; distance between two fiber axis is $d_{\mathcal{F}} = 4.8mm$; fiber radius is $r_{\mathcal{F}} = 1.2mm$. \mathcal{R} and \mathcal{F} are diffuse-reflective with uniform reflectivities $\rho^{\mathcal{R}}$ and $\rho^{\mathcal{F}}$ respectively. \mathcal{F} is Lambertian emitting with a uniform surface flux density φ_{ν} . c: 2d hexagonal lattice fiber arrangement; an optical path example within the culture medium \mathcal{V} ; at the bottom left, description of how the location of \mathbf{x}_0 is defined around a given fiber ($e(\theta) = \frac{d_{\mathcal{F}}}{2} \frac{1}{\cos(\theta)}$).

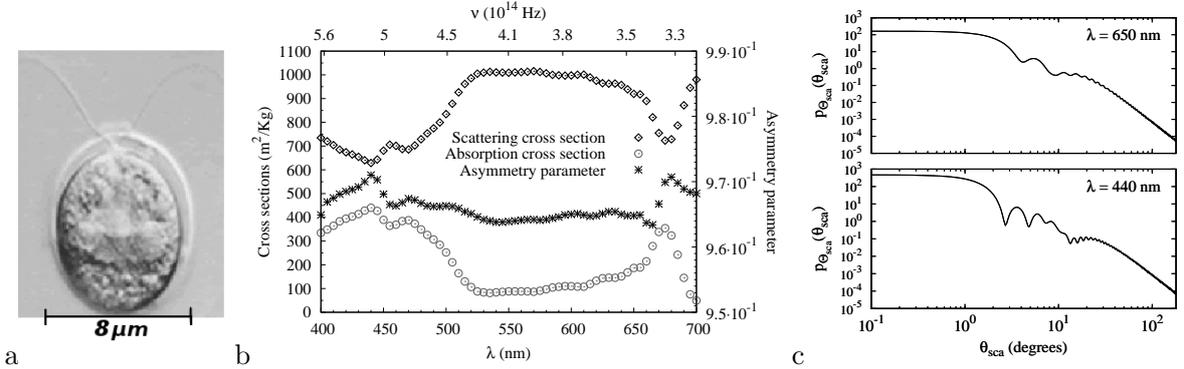


Figure 2. a: *Chlamydomonas reinhardtii*. b: Radiative properties; the absorption cross-section $\sigma_{a, \nu}$, the scattering cross-section $\sigma_{s, \nu}$ and the asymmetry parameter of the single scattering phase function $p_{\Omega, \nu}^{\mathcal{V}}(\omega|\omega')$ over the photosynthetically active radiation domain (data available at [12]). c: $p_{\Omega, \nu}^{\mathcal{V}}(\omega|\omega')$ for two wavelengths, where θ_{sca} is the angle between ω and ω' .

2. Description of the initial algorithm and construction of the corresponding integral formulation

We will now design a *reverse* Monte Carlo algorithm consisting in the sampling of optical paths starting from \mathbf{x}_0 until they are "absorbed" at the emitting surface \mathcal{F} (see Fig. 1.c), in order to evaluate the number of photons $A(\mathbf{x}_0)$ locally absorbed at \mathbf{x}_0 . Each of the corresponding sampling procedures will be detailed hereafter and will be translated into an integral motif. The combination of all these integral motifs will gradually lead us to an integral formulation that is the rigorous formal translation of the proposed algorithm.

(1) First, a frequency is sampled over $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ according to a uniform probability density function $p_\nu(\nu) = \frac{1}{\nu_{max} - \nu_{min}}$:

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} p_\nu(\nu) d\nu \dots \quad (2)$$

This frequency determines the volume and surfaces radiative properties as well as the surface flux density φ_ν emitted by the fibers \mathcal{F} for the current optical path.

(2) Then, starting from the location \mathbf{x}_0 , a first direction ω_0 is sampled over the total solid angle (noted 4π hereafter) according to an isotropic probability density function $p_{\Omega_0}^\nu(\omega_0) = \frac{1}{4\pi}$, and a first scattering length l_0 is sampled over $[0, +\infty]$ according to the Beer extinction law $p_{L_0, \nu}(l_0; k_{s, \nu}) = k_{s, \nu} \exp(-k_{s, \nu} l_0)$:

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} p_\nu(\nu) d\nu \times \int_{4\pi} p_{\Omega_0}^\nu(\omega_0) d\omega_0 \times \int_0^\infty p_{L_0, \nu}(l_0; k_{s, \nu}) dl_0 \dots \quad (3)$$

(3) Now that $\{\mathbf{x}_0, \omega_0, l_0\}$ has been sampled, the first interaction location $\mathbf{x}_1 \equiv \mathbf{x}_1(\mathbf{x}_0, \omega_0, l_0)$ is determined. As previously mentioned pure geometrical considerations are easily translated into scientific computation libraries that we can here avoid to describe. For a given couple $\{\mathbf{x}_0, \omega_0\}$, such libraries provide us with the location $\mathbf{y} \equiv \mathbf{y}(\mathbf{x}_0, \omega_0)$ of the first time the half line starting at \mathbf{x}_0 in the direction ω_0 intersects the total bounding surface $\mathcal{R} \cup \mathcal{F}$. If the distance to the bounding surface $\|\mathbf{y} - \mathbf{x}_0\|$ is smaller than the scattering length, the optical path interacts with a surface, otherwise scattering occurs inside the volume of culture:

$$\mathbf{x}_1 = \begin{cases} \mathbf{y} & , \text{ if } \|\mathbf{y} - \mathbf{x}_0\| < l_0 \\ \mathbf{x}_0 + l_0 \omega_0 & , \text{ otherwise} \end{cases}$$

Then, a branching test is performed depending on the nature of the interaction:

- In case of an interaction with the stainless steel surface of the reactor \mathcal{R} , a reflection direction ω_1 is sampled according to the diffuse angular distribution $p_{\Omega_1}^{\mathcal{R}}(\omega_1) = \frac{\omega_j \cdot \mathbf{n}_j}{\pi}$ (\mathbf{n}_j being the normal at the location \mathbf{x}_j), the weight \hat{w} is multiplied by the reactor reflectivity $\rho^{\mathcal{R}}$ (see the expression of \hat{w} in Eq. 7), and a new scattering length l_1 is sampled according to the same extinction law as for l_0 ($p_{L_1, \nu} \equiv p_{L_0, \nu}$):

$$\dots \times H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}) \int_{2\pi} p_{\Omega_1}^{\mathcal{R}}(\omega_1) d\omega_1 \int_0^\infty p_{L_1, \nu}(l_1; k_{s, \nu}) dl_1 \dots \quad (4)$$

where $H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R})$ takes the value 1 when the condition $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}$ is satisfied, and 0 otherwise.

- In case of an interaction with the fibers \mathcal{F} , a Russian roulette is performed. A random number r_1 is sampled over the unit interval according to a uniform density probability function $p_{R_1}(r_1) = 1$. If r_1 is lower than the fibers reflectivity $\rho^{\mathcal{F}}$, then the optical path is reflected, thus the reflection direction ω_1 and l_1 are sampled as described above ($p_{\Omega_1}^{\mathcal{F}} \equiv p_{\Omega_1}^{\mathcal{R}}$). Otherwise, the optical path sampling procedure is terminated and the weight \hat{w}_1 is calculated according to Eq. 7. The corresponding integral translation is:

$$\dots \times H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{F}) \int_0^1 p_{R_1}(r_1) dr_1 \left\{ \begin{array}{l} H(r_1 \leq \rho^{\mathcal{F}}) \int_{2\pi} p_{\Omega_1}^{\mathcal{F}}(\omega_1) d\omega_1 \int_0^\infty p_{L_1, \nu; k_{s, \nu}}(l_1) dl_1 \dots \\ + H(r_1 > \rho^{\mathcal{F}}) \hat{w}_1 \end{array} \right\} \quad (5)$$

- Finally, if \mathbf{x}_1 is within the volume of culture \mathcal{V} , a scattering direction ω_1 is sampled according to the single scattering phase function $p_{\Omega_1, \nu}^\nu(\omega_1 | \omega_0)$ of *Chlamydomonas* (see Fig. 2), and l_1 is sampled as described above:

$$\dots \times H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}) \int_{4\pi} p_{\Omega_1, \nu}^\nu(\omega_1 | \omega_0) d\omega_1 \int_0^\infty p_{L_1, \nu}(l_1; k_{s, \nu}) dl_1 \dots \quad (6)$$

(4) At this stage, if the path sampling procedure is not terminated, the algorithm loops to (3) considering the next interaction position (the index 1 being incremented to 2), and so on until absorption occurs at the fibers.

Altogether, each sampled optical path leads to the evaluation of a weight according to the following weight function \hat{w}_j , and $A(\mathbf{x}_0)$ is estimated as the average of all weights.

$$\hat{w}_j = (\nu_{max} - \nu_{min}) 4\pi \sigma_{a,\nu} \frac{\frac{\varphi_\nu}{h\nu}}{\pi(1-\rho^{\mathcal{F}})} \left[\rho^{\mathcal{R}} \right]^{n_j^{\mathcal{R}}} e^{-k_{a,\nu} d_j} \quad (7)$$

where $\frac{\varphi_\nu}{\pi(1-\rho^{\mathcal{F}})}$ is the equivalent blackbody intensity emitted at the fibers surface, and $\left[\rho^{\mathcal{R}} \right]^{n_j^{\mathcal{R}}} e^{-k_{a,\nu} d_j}$ is the absorption transmittivity along the optical path, with $n_j^{\mathcal{R}}$ the number of interactions with \mathcal{R} before the j^{th} interaction (the interaction that led to an absorption at \mathcal{F}) $n_j^{\mathcal{R}} = \sum_{q=0}^{j-1} [1 \times H(\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}) + 0 \times H(\mathbf{x}_q \in \mathcal{F} \cup \mathcal{V})]$, and $d_j = \sum_{q=0}^{j-1} \|\mathbf{x}_{q+1} - \mathbf{x}_q\|$ representing the total length of the sampled optical path.

The corresponding integral formulation is obtained by gathering all the successive integral motifs of Eqs. 2, 3, 4, 5 and 6:

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} p_\nu(\nu) d\nu \int_{4\pi} p_{\Omega_0}^{\mathcal{V}}(\omega_0) d\omega_0 \int_0^\infty p_{L_0,\nu}(l_0) dl_0 \times \left\{ \begin{array}{l} H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}) \int_{2\pi} p_{\Omega_1}^{\mathcal{R}}(\omega_1) d\omega_1 \int_0^\infty p_{L_1,\nu}(l_1) dl_1 \mathcal{A}_1 + \\ H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{F}) \int_0^1 p_{R_1}(r_1) dr_1 \left\{ \begin{array}{l} H(r_1 \leq \rho^{\mathcal{F}}) \int_{2\pi} p_{\Omega_1}^{\mathcal{F}}(\omega_1) d\omega_1 \int_0^\infty p_{L_1,\nu}(l_1) dl_1 \mathcal{A}_1 + \\ H(r_1 > \rho^{\mathcal{F}}) \hat{w}_1 \end{array} \right\} + \\ H(\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}) \int_{4\pi} p_{\Omega_1,\nu}^{\mathcal{V}}(\omega_1|\omega_0) d\omega_1 \int_0^\infty p_{L_1,\nu}(l_1) dl_1 \mathcal{A}_1 \end{array} \right\} \quad (8)$$

where \mathcal{A}_j is recursively defined as

$$\mathcal{A}_j = \left\{ \begin{array}{l} H(\mathbf{x}_{j+1} \in \mathcal{R}) \int_{2\pi} p_{\Omega_{j+1}}^{\mathcal{R}}(\omega_{j+1}) d\omega_{j+1} \int_0^\infty p_{L_{j+1},\nu}(l_{j+1}) dl_{j+1} \mathcal{A}_{j+1} + \\ H(\mathbf{x}_{j+1} \in \mathcal{F}) \int_0^1 p_{R_{j+1}}(r_{j+1}) dr_{j+1} \times \\ \left\{ \begin{array}{l} H(r_{j+1} \leq \rho^{\mathcal{F}}) \int_{2\pi} p_{\Omega_{j+1}}^{\mathcal{F}}(\omega_{j+1}) d\omega_{j+1} \int_0^\infty p_{L_{j+1},\nu}(l_{j+1}) dl_{j+1} \mathcal{A}_{j+1} + \\ H(r_{j+1} > \rho^{\mathcal{F}}) \hat{w}_{j+1} \end{array} \right\} + \\ H(\mathbf{x}_{j+1} \in \mathcal{V}) \int_{4\pi} p_{\Omega_{j+1},\nu}^{\mathcal{V}}(\omega_{j+1}|\omega_j) d\omega_{j+1} \int_0^\infty p_{L_{j+1},\nu}(l_{j+1}) dl_{j+1} \mathcal{A}_{j+1} \end{array} \right\} \quad (9)$$

In Sec. 4, we will see that modifying this integral formulation is a powerful mean to enhance the convergence of Monte Carlo algorithms. But first, let us illustrate the quite straightforward benefit of integral formulation efforts in the context of sensitivity analysis.

3. Sensitivity analysis

When a Monte Carlo algorithm is used for the estimation of a physical quantity A , a simple and fast additional procedure can be implemented that simultaneously estimates the partial derivatives of A with respect to any parameter. Such sensitivities of A to a parameter π are noted $\partial_\pi A$ hereafter. The general methodology consists in deriving the integral formulation of

A with respect to π and reorganizing it in order to get an integral formulation of $\partial_\pi A$ that is identical to that of A , replacing only \hat{w}_j with a new weight $\hat{w}_{\pi,j}$. Both integral formulations being identical, the sampling events needed for the evaluation of A and $\partial_\pi A$ are the same. The required integral formulation tasks range from trivial to very tedious depending on the studied parameter π (see [3] for a general overview and [6] for the very specific case of *domain deformation sensitivities*). Three classically encountered cases are illustrated in this section:

Case 1: sensitivity to a parameter that only appears in the expression of the weight \hat{w} . In the context of photobioreactors study, this can be illustrated through the sensitivity to the absorption properties of the microorganisms. For this purpose, let us introduce the dry mass fraction of pigment p inside the microorganism ($p = 0.038$ for *Chlamydomonas*). As a first approximation, it can be considered that $\sigma_{a,\nu} = p E_{a,\nu}$ where $E_{a,\nu}$ is an effective absorption cross-section of the pigments, and the effect of pigment concentration on the scattering properties can be neglected. Thus deriving the integral formulation of $A(\mathbf{x}_0)$ with respect to p , an integral formulation for $\partial_p A(\mathbf{x}_0)$ is obtained that is identical to that of $A(\mathbf{x}_0)$ in Eqs. 8 and 9, replacing only \hat{w}_j with $\hat{w}_{p,j}$:

$$\hat{w}_{p,j} = \partial_p \hat{w}_j = \hat{w}_j \frac{1 - k_{a,\nu} d_j}{p} \quad (10)$$

Case 2: sensitivity to a parameter entering the expression of the sampling probability density functions. In the present context, this can be illustrated with the sensitivity to the biomass density η , which appears both in \hat{w} and $p_{L_j,\nu}(l_j)$. When deriving Eqs. 8 and 9 with respect to η , the term corresponding to the derivative of \hat{w} is treated as in case 1. When deriving $p_{L_j,\nu}(l_j)$, the general form of Eqs. 8 and 9 is temporarily lost. But the obtained expression can be reorganized by multiplying and dividing it by $p_{L_j,\nu}(l_j)$, and reporting the terms $\frac{\partial_\eta p_{L_j,\nu}(l_j)}{p_{L_j,\nu}(l_j)} = \frac{1 - k_{s,\nu} l_j}{\eta}$ in the final weight function expression. An illustration of this simple reformulation trick is provided hereafter:

$$\begin{aligned} \partial_\eta [\int_0^\infty p_{L_0}(l_0) dl_0 \int_0^\infty p_{L_1}(l_1) dl_1 \hat{w}] &= \int_0^\infty p_{L_0}(l_0) dl_0 \int_0^\infty p_{L_1}(l_1) dl_1 \hat{w} \left[\frac{\partial_\eta p_{L_0}(l_0)}{p_{L_0}(l_0)} + \frac{\partial_\eta p_{L_1}(l_1)}{p_{L_1}(l_1)} \right] \\ &\quad + \int_0^\infty p_{L_0}(l_0) dl_0 \int_0^\infty p_{L_1}(l_1) dl_1 \partial_\eta \hat{w} \\ &= \int_0^\infty p_{L_0}(l_0) dl_0 \int_0^\infty p_{L_1}(l_1) dl_1 \hat{w} \left[\frac{1 - k_{s,\nu} l_0}{\eta} + \frac{1 - k_{s,\nu} l_1}{\eta} - \sigma_{a,\nu} d_1 \right] \end{aligned} \quad (11)$$

In the general case of j interaction locations, this leads to:

$$\hat{w}_{\eta,j} = \hat{w}_j \left[\sum_{q=0}^{j-1} \frac{1 - k_{s,\nu} l_q}{\eta} - \sigma_{a,\nu} d_j \right] \quad (12)$$

Case 3: sensitivity to a parameter appearing in an algorithmic test. Most of the time it corresponds to situations where very little can be done to the date (see [3]), but sometimes an integral reformulation can reduce this complex case to the trivial situation of case 1. In the present study, this can be illustrated considering the sensitivity to the fibers reflectivity $\rho^{\mathcal{F}}$ which appears both in \hat{w} and in the algorithmic test associated with the Russian roulette (reflection vs. absorption at the fibers). In Eqs. 8 and 9, the integrals involving r_j and $\rho^{\mathcal{F}}$ (that correspond to the Russian roulette) have trivial analytical expressions: $\int_0^1 p_{R_j}(r_j) dr_j H(r_j \leq \rho^{\mathcal{F}}) = \rho^{\mathcal{F}}$ and $\int_0^1 p_{R_j}(r_j) dr_j H(r_j > \rho^{\mathcal{F}}) = 1 - \rho^{\mathcal{F}}$. Substituting those expressions into Eqs. 8 and 9, an alternative (but equivalent) integral formulation is obtained (in which the product of all $\rho^{\mathcal{F}}$ is reported in the new weight function expression \hat{w}^{alt}):

$$\dots \times H(\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}) \left\{ \int_{2\pi} p_{\Omega_j}^{\mathcal{F}}(\omega_j) d\omega_j \int_0^\infty p_{L_j,\nu}(l_j) dl_j \dots \right\} + \hat{w}_j^{alt} \quad (13)$$

where $\hat{w}_j^{alt} = [\rho^{\mathcal{F}}]^{n_j^{\mathcal{F}}} (1 - \rho^{\mathcal{F}}) \hat{w}_j$, with $n_j^{\mathcal{F}}$ the number of interactions with \mathcal{F} before the interaction at \mathbf{x}_j : $n_j^{\mathcal{F}} = \sum_{q=0}^{j-1} [1 \times H(\mathbf{x}_q \in \mathcal{F}) + 0 \times H(\mathbf{x}_q \in \mathcal{R} \cup \mathcal{V})]$ (note the similarity with the treatment of the reflectivity at the surface \mathcal{R} in Eq. 7). Deriving the above expression with respect to $\rho^{\mathcal{F}}$, we are back to case 1 with $\hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}},j}^{alt} = \partial_{\rho^{\mathcal{F}}} [\hat{w}_j^{alt}] = \hat{w}_j^{alt} \frac{n_j^{\mathcal{F}}}{\rho^{\mathcal{F}}}$. And we can finally revert the integral transformation to get back to the initial expression that involves a Russian roulette, with:

$$\hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}},j} = \hat{w}_j \frac{n_j^{\mathcal{F}}}{\rho^{\mathcal{F}}} \quad (14)$$

Fig. 3 displays the simulation results corresponding to $A(\mathbf{x}_0)$, $\partial_p A(\mathbf{x}_0)$, $\partial_\eta A(\mathbf{x}_0)$, and $\partial_{\rho^{\mathcal{F}}} A(\mathbf{x}_0)$ as function of the location \mathbf{x}_0 inside the reactor, for 10^5 realizations (relative standard deviation $\simeq 1\%$ for all quantities at all locations). The corresponding code is available on demand, and a very similar version is already available at [12]. We distinguish three different zones of the reactor volume [7]: the regions of null production rates (*i.e.* that the rate of photosynthesis exactly matches the rate of respiration) where $A = A_c$ (with the compensation point $A_c \simeq 0.5 \text{ mmol.s}^{-1}.\text{kg}^{-1}$), the regions of positive production rates (photosynthesis) where $A > A_c$, and the regions of negative production rates (respiration) where $A < A_c$. The studied prototype is designed to approach the maximum efficiency of photosynthesis (at the expense of its volume productivity, see [8, 9, 10]) which is ideally achieved when the whole reactor volume corresponds to low productions rates (*i.e.* $A(\mathbf{x}_0)$ uniform at a value close to A_c). Nevertheless, the results of $A(\mathbf{x}_0)$ indicate high production rates near by the fibers (*cf.* a and b) and respiration regions between the edge fibers and the outside surface of the reactor (*cf.* c). The microorganisms density η is the main operational parameter, but the field of $\partial_\eta A(\mathbf{x}_0)$ indicates a weak influence of η within the respiration zones, suggesting a design optimization consisting in a reduction of the distance between the edge fibers and the reactor. The field of $\partial_{\rho^{\mathcal{F}}} A(\mathbf{x}_0)$ suggests another design optimization consisting in the choice of reflecting fiber materials limiting the losses and thus allowing an operation at higher densities η (*i.e.* an intensification). Finally, the field $\partial_p A(\mathbf{x}_0)$ indicates, as pointed out by the genetic engineering community [11], that a diminution of the pigment content of microorganisms leads to an homogenization of $A(\mathbf{x}_0)$, but the overall energy absorbed by the culture decreases and losses at the fibers and the reactor surface increase.

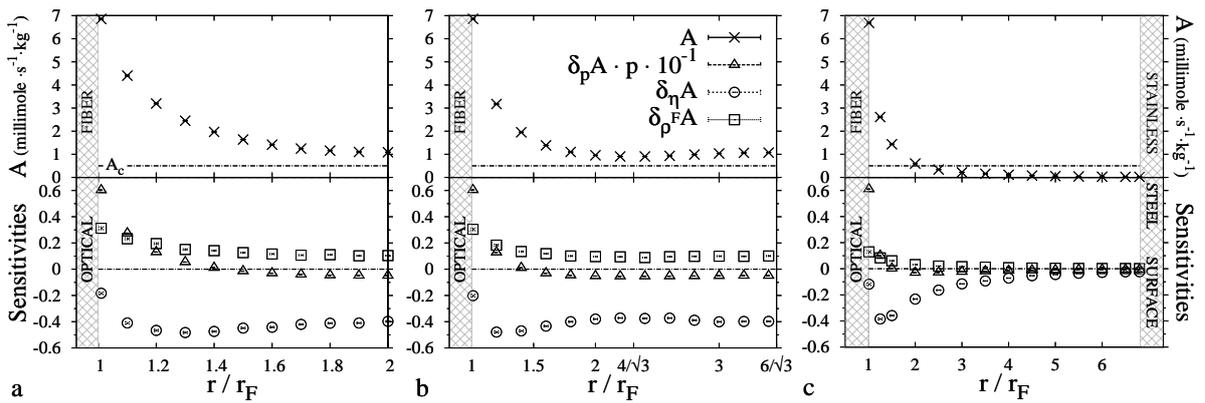


Figure 3. Simulation results for $A(\mathbf{x}_0)$ and its sensitivities $\partial_p A$, $\partial_\eta A$ and $\partial_{\rho^{\mathcal{F}}} A$ as defined in Eqs. 8 and 9, with $\varphi_\nu = 10^{-7} \frac{2\pi\nu^2}{c^2} \exp\left[-\left(\frac{h\nu}{K_B 6000} - 1\right)\right]$ (\propto Planck's law at 6000K), $\rho^{\mathcal{F}} = 0.1$, $\rho^{\mathcal{R}} = 0.5$, $\eta = 4 \text{ kg.m}^{-3}$. \mathbf{x}_0 referred with (r, θ) as defined in Fig. 1. In a & b the fiber is at the center of the reactor and in c the fiber is at the edge of the reactor. a: $\theta = 0$; b: $\theta = \frac{\pi}{6}$; c: $\theta = 0$.

4. Convergence enhancement

Various techniques are available in order to reduce the standard deviation of the set of sampled weights, for a fixed number of realizations. Most such convergence enhancement tasks actually consist in the injection of our physical understanding of the system into the Monte Carlo algorithm, in order to privilege the events (or informations) that are important with respect to the estimated quantity (see [1, 2, 3]). Two of those techniques will be illustrated in the following (thanks to some of the recent integral formulation and zero-variance perspectives): importance sampling, and integral reformulation.

Importance sampling consists in working on the sampling procedures. Let us consider the first two sampling procedures, corresponding to p_ν and $p_{\Omega_0}^\nu$ in the integral formulation of Eqs 8 and 9. A modification of these sampling procedures is very easy to implement: p_ν and $p_{\Omega_0}^\nu$ are replaced with better optimized probability density functions $p_{\nu,opt}$ and $p_{\Omega_0,opt}^\nu$ and the weight function is replaced by a new expression $\hat{w}_{opt} = \hat{w} \frac{p_\nu}{p_{\nu,opt}} \frac{p_{\Omega_0}^\nu}{p_{\Omega_0,opt}^\nu}$ that insures the evaluation of the same exact solution. However, the choice of new probability density functions that would lead to a convergence enhancement is commonly very subtle, and we argue here that the concept of zero-variance is an efficient way to orient this choice. Zero-variance algorithms are such that for each event the weight value is strictly identical to $A(\mathbf{x}_0)$ itself. This means that the sampling procedures have been chosen such that only one single event is required to get a perfect estimator. Let us illustrate this concept, as developed in [4, 5], on the sampling procedure of ν . The integral formulation of Eqs. 8, 9 and 7 can be rewritten in the compact form:

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} p_{\nu,opt}(\nu) d\nu A(\mathbf{x}_0, \nu) \frac{1}{p_{\nu,opt}(\nu)} \quad (15)$$

where $A(\mathbf{x}_0, \nu) \frac{1}{p_{\nu,opt}(\nu)}$ represents the rest of the integral formulation, with $A(\mathbf{x}_0, \nu)$ having a simple physical meaning that is obvious from Eq 1: $A(\mathbf{x}_0, \nu)$ is the specific number of photon absorbed per unit frequency *i.e.* $A(\mathbf{x}_0, \nu) = \frac{\sigma_{a,\nu}}{h\nu} \int_{4\pi} L_\nu(\mathbf{x}_0, -\omega_0) d\omega_0$, where $\int_{4\pi} L_\nu(\mathbf{x}_0, -\omega_0) d\omega_0$ is the local monochromatic irradiance $G_\nu(\mathbf{x}_0)$. Zero-variance algorithm on the integration of ν is thus achieved for:

$$p_{\nu,opt}(\nu) = \frac{A(\mathbf{x}_0, \nu)}{\int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} A(\mathbf{x}_0, \nu) d\nu} \quad (16)$$

Indeed, in this case, whatever the sampled frequency value, the weight $A(\mathbf{x}_0, \nu) \frac{1}{p_{\nu,opt}(\nu)} = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} A(\mathbf{x}_0, \nu) d\nu = A(\mathbf{x}_0)$. We therefore see that the design of a zero-variance algorithm for the estimation of $A(\mathbf{x}_0)$ requires an a priori perfect knowledge of $A(\mathbf{x}_0, \nu)$ for all ν , and of its integral over ν , that is to say of $A(\mathbf{x}_0)$ itself. This means that such an ideal algorithm can only be practically implemented when it is useless (when $A(\mathbf{x}_0)$ is known). Nevertheless, zero-variance helps us to understand the physical information required to ideally optimize a given sampling procedure, here the irradiance $G_\nu(\mathbf{x}_0)$, and if this information is accessible under any approximate form, an enhanced version of the algorithm can be designed in a straightforward manner. The idea here is not to get a "good approximation" of $G_\nu(\mathbf{x}_0)$ but only a model that grasps the variations of G with respect to ν in order to drive the sampling procedure. Let us make a first simple attempt in which the probability density function is obtained by replacing $A(\mathbf{x}_0, \nu)$ in Eq. 16 using the spectral dependence of $G_\nu(\mathbf{x}_0)$ provided by the P1 approximation. Fig. 4.a indicates that the corresponding convergence enhancement is not significant. The reason can either be that:

- (i) The frequency dependence is well grasped by the P1 approximation but frequency sampling is not a significant source of variance (in which case further investigations can for instance concentrate on the next sampling procedure, as illustrated later in this text).

- (ii) The P1 approximation was too rough to provide enough information concerning the frequency dependence of $A(\mathbf{x}_0, \nu)$.

If we assume the second reason to be meaningful, then either we look for a better irradiance model, or we try to make use of integral reformulation.

Integral reformulation consists in transforming the integral formulation in such a way that the quantity highlighted by the zero-variance approach (which is to be closely studied in order to design a better optimized probability density function) has a clear physical meaning and can be easily modeled. One of the simplest way to perform this task (when applicable) is to report the studied integration (here the integration over ν) at a rank of the integral formulation such that the remaining physics (*i.e.* the following integrations) is easier to handle. As a very ideal example, we report hereafter the spectral integration at the end of the integral formulation (*i.e.* $p_\nu(\nu)$ becomes the last sampling procedure). Importance sampling can then be implemented without the need of any multiple-scattering model. This is immediately possible as soon as *Chlamydomonas* is approximated as having gray scattering properties (*i.e.* $p_{\Omega_{j>0},\nu}^\nu \simeq p_{\Omega_j,eq}^\nu$ and $p_{L_j,\nu} \simeq p_{L_j,eq}(l_j)$), spectral absorption properties remaining unchanged. This way, all dependences to ν are in the weight and the integral formulation of Eqs. 8 and 9 is easily reformulated as:

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{4\pi} p_{\Omega_0}^\nu(\omega_0) d\omega_0 \int_0^\infty p_{L_0,eq}(l_0) dl_0 \dots \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} p_\nu(\nu) d\nu \hat{w}_j \quad (17)$$

with $\hat{w}_j \propto \frac{\varphi_\nu}{h\nu} \sigma_{a,\nu} e^{-k_{a,\nu} d_j}$ (see Eq. 7). The ideally optimized probability density function is then $p_\nu^I(\nu) = \frac{\frac{\varphi_\nu}{h\nu} \sigma_{a,\nu} e^{-k_{a,\nu} d_j}}{\int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} \frac{\varphi_\nu}{h\nu} \sigma_{a,\nu} e^{-k_{a,\nu} d_j} d\nu}$. Although less straightforward, the same approach can be used accounting for the spectral scattering properties: the multiple scattering/reflection optical path is sampled using any gray reference scattering coefficient and phase function, the weight expression being corrected, once frequency is finally sampled, by the product of the ratios of the exact scattering probability density function to the reference one. Fig. 4.b shows that even in the case of an ideal optimization of the frequency sampling procedure, the convergence is only little enhanced. We now know precisely that we are in the first of the two above identified cases: frequency is not a significant source of variance.

We therefore further investigate the convergence enhancement opportunities by considering the next sampling procedure: the sampling of the first direction $p_{\Omega_0}^\nu$. The same zero-variance technique as in Eqs. 15 and 16 leads here to:

$$A(\mathbf{x}_0) = \int_{\nu_{min}}^{\nu_{max}} p_{\nu,opt}(\nu) d\nu \int_{4\pi} p_{\Omega_0,opt}^\nu(\omega_0) d\omega_0 A(\mathbf{x}_0, \nu, \omega_0) \frac{1}{p_{\nu,opt}(\nu) p_{\Omega_0,opt}^\nu(\omega_0)} \quad (18)$$

with

$$p_{\Omega_0,opt}^\nu(\omega_0) = \frac{A(\mathbf{x}_0, \nu, \omega_0)}{\int_{4\pi} A(\mathbf{x}_0, \nu, \omega_0) d\omega_0} = \frac{A(\mathbf{x}_0, \nu, \omega_0)}{A(\mathbf{x}_0, \nu)} \quad (19)$$

where $A(\mathbf{x}_0, \nu, \omega_0)$ is the specific number of photons absorbed at \mathbf{x}_0 , per unit frequency and (now) per unit solid angle in the direction ω_0 *i.e.* $A(\mathbf{x}_0, \nu, \omega_0) = \frac{\sigma_{a,\nu}}{h\nu} L_\nu(\mathbf{x}_0, -\omega_0)$ (see Eq 1). It is now an angular dependence, for a given frequency, that we try to grasp using an approximate model. In our first frequency optimization attempt, we made use of the P1 approximation. This was weakly justified considering our intermediate optical thicknesses but we needed to deal with an angular integrated quantity and P1 was the best approach we could think of. Here we can do much better using the single scattering approximation. Fig. 4.a shows that the corresponding convergence enhancement leads to a reduction of the weight standard deviation of a factor $\frac{2}{3}$, which divides by $\left(\frac{3}{2}\right)^2 \simeq 2$ the number N of required samples (to achieve the same convergence) by comparison with our first algorithm (the standard deviation of a Monte Carlo algorithm being proportional to $\frac{1}{\sqrt{N}}$).

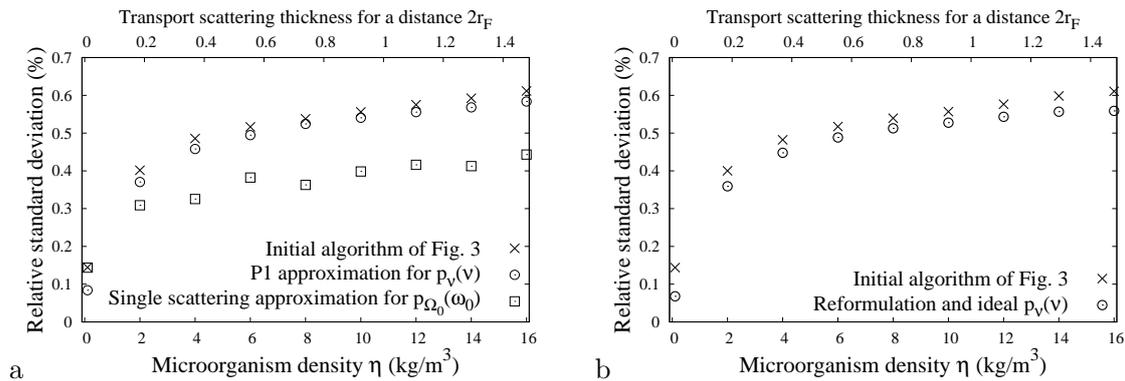


Figure 4. Convergence of the $A(\mathbf{x}_0)$ estimator for 10^5 realizations at the center of the reactor ($r = 1.2 r_F$, $\theta = \frac{\pi}{12}$). a: Importance sampling for ν and Ω_0 . b: Integral reformulation and ideal importance sampling for ν using gray scattering properties (properties of Fig. 2 at $4.5 \cdot 10^{14} Hz$).

Note that the P1 and single scattering models [13] have been built considering an infinite periodic fiber arrangement (see the elementary configuration of Fig. 1.c in which the surfaces noted $\dots\dots$ are perfect specular mirrors). The geometry is even further simplified using an equivalent 1d cylindrical geometry for the P1 approximation and an equivalent slab for the single scattering approximation. Altogether, the zero-variance approach incites us to elaborate gradually simplified models at various description scales, and this is in this sense that such a practice leads to useful physical pictures, although the initial objective was only acceleration.

5. Conclusion

The integral formulation tasks presented here illustrate our practice of radiative transfer Monte Carlo methods. Along this line, we laid the foundations of a subsequent energetic analysis of photobioreactors (which will necessitate the use of volume integrated growth kinetics models). This approach already allows us to accurately estimate the absorption field and its sensitivities (except for domain deformation sensitivities) within a geometrically complex volume of culture. Direction sampling appears as the source of variance that is worth the closest attention. Using only a rough one-dimensional simplification of the geometry in order to implement importance sampling, convergence was significantly enhanced, indicating that higher speedups can be expected by precomputing and tabulating the angular dependences as function of optical thickness and fibers lattice features.

References

- [1] Howell J.R. 1998 *Journal of Heat Transfer* **120(3)** 547-560
- [2] Modest M.F. 2003 *Radiative Heat Transfer* Second ed. Academic Press pp. 644-679
- [3] De la Torre J. and al. Submitted to *Solar Energy*
- [4] Assaraf R. and Caffarel M. 1999 *Physical Review Letters* **83(23)** 4682-4685
- [5] Hoogenboom J.E. 2008 *Nuclear Science and Engineering* **160(1)** 1-22
- [6] Roger M., Blanco S., El Hafi M. and Fournier R. 2005 *Physical Review Letters* **95** 180601
- [7] Cornet J.F. and Dussap C.G. 2009 *Biotechnology progress* **25(2)** 424-35
- [8] Cornet J.F. 2010 *Chemical Engineering Science* **65(2)** 985-998
- [9] Csogor Z., Herrenbauer M., Schmidt K. and Posten C. 2001 *Journal of Applied Phycology* **13** 325-333
- [10] Suh I.S. and Lee S.B. 2003 *Biotechnology and Bioengineering* **82** 180-189
- [11] Pilon L., Berberoglu H. and Kandilian R. 2011 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **112** 2639-2660
- [12] www.starwest.ups-tlse.fr/monte-carlo-concentrated-solar-examples
- [13] Case K.M. and Zweifel P.F. 1967 *Linear Transport Theory* Addison-Wesley, Reading, Mass

Chapitre 6

Intégration volumique d'une loi de couplage non-linéaire pour le calcul de la productivité d'un photobioréacteur par la méthode de Monte Carlo

Résumé :

Le couplage du transfert radiatif à d'autres phénomènes de transfert (diffusion, écoulement) ou à des cinétiques locales (cinétiques chimiques, combustion) est une source récurrente de difficultés dans le contexte général des sciences pour l'ingénieur. Ici, le traitement de la non-linéarité des lois de couplage cinétique de la photosynthèse correspond à un point bloquant vis-à-vis du calcul de la productivité intégrée des photobioréacteurs. Ce chapitre propose une démarche de reformulation intégrale qui permet l'utilisation de la méthode de Monte Carlo lors de l'estimation de la productivité du prototype DiCoFluV pour la loi de couplage cinétique du micro-organisme *Chlamydomonas reinhardtii*. Cette démarche originale est potentiellement transposable à des problématiques très différentes. Elle a notamment été utilisée au chapitre 3, Sec. 3.4, pour la résolution d'un problème d'électromagnétisme, permettant d'accélérer significativement les intégrations sur les tailles et les orientations des particules lors du calcul des fonctions de phase des micro-organismes.

6.1 Problématique

A la section 5.5 du chapitre 5, nous nous sommes concentrés sur le calcul de la productivité locale $r_x(\mathbf{x}_0)$ (à travers l'évaluation de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$, exprimée ici en $\mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{kg}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$), c'est-à-dire la vitesse de croissance volumique des micro-organismes autour d'un point \mathbf{x}_0 situé au sein du réacteur ($[r_x] = g_x \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$). Bien que cette échelle de description soit très intéressante pour la compréhension des mécanismes mis en jeu dans l'optimisation des photobioréacteurs, la grandeur que l'on cherche à optimiser à l'échelle du procédé est bien sûr la productivité totale du photobioréacteur. Cette productivité est l'intégrale de $r_x(\mathbf{x}_0)$ sur l'ensemble du volume réactionnel contenu dans le réacteur. On la divise communément par le volume du milieu réactionnel (où par le volume total du réacteur) afin de raisonner avec une productivité volumique, ce qui revient à considérer la productivité moyenne $\langle r_x \rangle$:

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 \frac{1}{V} r_x(\mathbf{x}_0) \quad (6.1)$$

où V est ici le volume du domaine réactionnel \mathcal{V} (en fonction du type d'optimisation, V peut aussi être pris comme le volume total du réacteur). Le temps de calcul que nous avons obtenu à la section 5.5 avec la plus performante de nos stratégies d'optimisation, sur un processeur Quad-Core Intel Xeon de 2.66 GHz , était de l'ordre de 5 secondes et décroissait linéairement avec le nombre de processeurs. Ce temps de calcul est tout à fait acceptable dans un contexte d'ingénierie des procédés, mais il s'agissait du temps nécessaire au calcul de $r_x(\mathbf{x}_0)$ en un seul point, et ce calcul était à répéter environ 10^5 fois afin d'obtenir une évaluation fiable de la productivité totale du prototype DiCoFluV. En pratique, le calcul de la productivité totale correspondait à des journées de calcul et restait donc très contraignant. Or, il s'agit de la grandeur que le concepteur cherche à maximiser, et toute approximation de la géométrie serait extrêmement regrettable compte tenu de la place centrale du design géométrique dans les performances du prototype DiCoFluV, en comparaison avec les photobioréacteurs usuels plans ou de type bassin. Cette difficulté numérique est donc un verrou capital pour l'étude radiative des photobioréacteurs. Dans une première partie de ce chapitre (Sec. 6.2) nous allons analyser les raisons théoriques de ce blocage. Alors que nous savons calculer $r_x(\mathbf{x}_0)$ par la méthode de Monte Carlo (voir Chap. 5, Sec. 5.5) et que l'intégration volumique n'est en elle-même source d'aucune difficulté particulière (un algorithme de Monte Carlo serait facile à mettre en œuvre si $r_x(\mathbf{x}_0)$ était connu en tout point), nous constatons que la difficulté résulte de la nécessité d'intégrer par Monte Carlo (intégration volumique) une fonction non-linéaire (la loi de couplage) d'une grandeur elle-même intégrée par Monte Carlo ($\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$

est obtenue par une intégration sur l'espace des chemins optiques). En d'autres termes, la question est d'*intégrer par la méthode de Monte Carlo une fonction non-linéaire du résultat d'un algorithme de Monte Carlo*.

A notre connaissance, cette question théorique n'a jamais été abordée dans la littérature. Elle est pourtant déterminante dans le présent contexte. En commençant par les fonctions quadratiques, puis les puissances entières, et en généralisant finalement aux fonctions développables en série de Taylor (fonctions analytiques), nous proposons à la section 6.3 une solution pratique qui résout parfaitement notre difficulté initiale. Nous passons du facteur 10^5 précédent, à un facteur 40 : le calcul de la productivité moyenne $\langle r_x \rangle$ n'est que 40 fois plus coûteux que la calcul de $r_x(\mathbf{x}_0)$ en un point (voir Sec 6.5). Cela signifie d'abord que l'intégration géométrique est statistiquement couverte par l'ensemble des réalisations requises par l'intégration la plus délicate, ici l'intégration sur l'espace des chemins de diffusions multiples (ce qui est usuel dans la pratique de la méthode de Monte Carlo). Mais cela signifie aussi que la technique que nous introduisons pour gérer la non-linéarité n'introduit pas non plus d'augmentation significative des temps de calculs. Au terme de cette thèse, nous disposons donc d'un outil flexible permettant de calculer rapidement (de une à dix minutes sur un ordinateur de bureau) $\langle r_x \rangle$ et ses sensibilités, ce qui nous place en mesure de répéter ces calculs dans une démarche de recherche d'optimum. Nous illustrons ces possibilités à la section 6.5.

6.2 Formalisation

Au terme du chapitre 5, nous disposons des champs de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ dans le volume réactionnel du photobioréacteur DiCoFluV, ce qui permet de calculer les champs de productivité locale en biomasse $r_x(\mathbf{x}_0)$ à partir de la loi de couplage cinétique (voir chapitre 1 et annexe B) :

$$r_x(\mathbf{x}_0) = C_x \left[\alpha \frac{K \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)}{K + \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)} - \beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)} \right] \quad (6.2)$$

où les valeurs de α , K , β , K_r sont données à l'annexe B. C'est donc cette expression que nous devons intégrer pour obtenir la productivité moyenne $\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 \frac{1}{V} r_x(\mathbf{x}_0)$, sachant que $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ est lui-même une intégrale. Un avantage de la méthode de Monte Carlo vis-à-vis des intégrations multiples est que la convergence de l'algorithme est en principe pilotée par l'intégration correspondant à la plus grande source de variance, et non par le nombre d'intégration. Ainsi, l'ajout d'une intégration supplémentaire n'entraîne pas d'augmentation

significative des temps de calculs si celle-ci ne correspond ni à des difficultés de convergence particulières ni à des difficultés numériques liées à son échantillonnage¹. L'intégration volumique ne pose aucun de ces problèmes et nous pourrions donc espérer retrouver des temps de convergence comparables à ceux de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$. Cependant, nous ne pouvons pas en l'état profiter de cet avantage à cause de la non-linéarité de la loi de couplage cinétique Eq. 6.2. En effet, le formalisme de la méthode de Monte Carlo (comme tous les développements statistiques qui en découlent) est basé sur l'écriture d'une succession d'intégrations du type (voir Chap. 5)

$$I = \int_{\mathcal{D}_{Y_0}} dy_0 p_{Y_0}(y_0) \int_{\mathcal{D}_{Y_1}(y_0)} dy_1 p_{Y_1}(y_1; y_0) \dots \times \int_{\mathcal{D}_{Y_n}(y_0, \dots, y_{n-1})} dy_n p_{Y_n}(y_n; y_0, \dots, y_{n-1}) \hat{w}(y_0, y_1, \dots, y_n) \quad (6.3)$$

que l'on peut toujours réécrire comme

$$I = \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{Y}}} d\mathbf{y} p_{\mathbf{Y}}(\mathbf{y}) \hat{w}(\mathbf{y}) \quad (6.4)$$

où \mathbf{Y} est le vecteur aléatoire dont les composantes sont les variables aléatoires Y_j :

$$\mathbf{Y} = \begin{cases} Y_0 \\ Y_1 \\ \dots \\ Y_n \end{cases} \quad (6.5)$$

Ainsi, la formulation intégrale de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$, qui a été présentée au chapitre 5, peut s'écrire :

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) = \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\boldsymbol{\gamma} p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\boldsymbol{\gamma}) \hat{w}(\boldsymbol{\gamma}) \quad (6.6)$$

où $\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)$ est le vecteur aléatoire dont les composantes sont les variables aléatoires définissant un chemin optique reliant la position \mathbf{x}_0 à la surface des fibres du DiCoFluV pour une certaine

1. Ce point a déjà été évoqué au chapitre 3, lors de la résolution numérique des propriétés radiatives par méthode de Monte Carlo, où les prises de moyennes sur les orientations et les tailles de particules ne modifient pas significativement les temps de calcul par rapport à une particule de taille et d'orientation fixe.

fréquence du rayonnement :

$$\mathbf{\Gamma} = \begin{cases} \nu \\ \Omega_0 \\ l_0 \\ \Omega_1 \\ \dots \end{cases} \quad (6.7)$$

Le domaine de définition $\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}}$ et sa densité de probabilité $p_{\mathbf{\Gamma}}$ dépendent de la position \mathbf{x}_0 .

Encart 1 FORMALISME INTÉGRAL UTILISÉ

Le formalisme de l'équation 6.6 n'est pas totalement rigoureux d'un point de vue mathématique car la dimension du vecteur aléatoire $\mathbf{\Gamma}$ est indéterminée. En effet, cette dimension dépend du nombre de diffusions et est donc différente d'un chemin optique à l'autre. Cependant, ce manque de rigueur mathématique n'a ici aucun impact sur les dérivations qui suivent car cette notation ne nous sert qu'à représenter de manière compacte la formulation intégrale de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ définie au chapitre 5. A tout moment, on pourra remplacer cette notation compacte par la formulation intégrale récursive du chapitre 5.

Avec ces notations, l'expression intégrale de $\langle r_x \rangle$ peut s'écrire :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) C_x \left[\alpha \frac{K \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \hat{w}(\gamma)}{K + \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \hat{w}(\gamma)} - \beta \frac{K_r}{K_r + \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \hat{w}(\gamma)} \right] \quad (6.8)$$

avec $p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{\mathcal{V}}$. De par la non-linéarité de la loi de couplage, il est impossible (sous cette forme) de rassembler les intégrations en début d'expression afin de retrouver la forme de l'équation 6.3 (où indifféremment Eq. 6.4). En l'état, si l'on veut réaliser l'intégration volumique par la méthode de Monte Carlo, l'algorithme s'énonce de la manière suivante et ne rentre pas dans le cadre théorique que nous avons défini au chapitre 5 :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant la densité de probabilité $p_{\mathbf{x}_0}$,
- (2) pour cette position, l'algorithme de Monte Carlo du chapitre 5 pour l'évaluation de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ est lancé jusqu'à convergence,
- (3) l'estimation de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ ainsi obtenue est utilisée pour calculer $r_x(\mathbf{x}_0)$ qui devient ici le poids,
- (4) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

Cet algorithme correspond en fait à *un Monte Carlo pour l'intégration d'une fonction non-linéaire du résultat d'un autre Monte Carlo*. En effet, $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ est évalué par un algorithme de Monte Carlo qui doit suffisamment converger pour que son estimation ait un sens, et cela pour chaque position \mathbf{x}_0 échantillonnée au sein du volume. En pratique, dans le cas du DiCoFluV nous avons constaté que cela correspond à $\sim 10^5$ réalisations pour l'intégration volumique et $\sim 10^5$ réalisations pour l'estimation de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à chaque position, soit un total de $\sim 10^{10}$ échantillonnages des chemins optiques présentés au chapitre 5. Le temps de calcul est ici à peu près multiplié par 10^5 en comparaison avec l'estimation de \mathcal{A} pour une seule position, ce qui correspond à plusieurs journées de calcul sur un processeur Quad-Core Intel Xeon de 2.66 GHz . De plus, l'information sur la précision numérique d'un tel algorithme n'est pas simplement accessible. Quelle information tirer des estimations des écarts-types sur l'évaluation de \mathcal{A} à chaque position? Nous avons clairement perdu le formalisme de la méthode de Monte Carlo et tous les développements statistiques qui en découlent. Quitte à multiplier les temps de calcul et à perdre l'estimation rigoureuse des incertitudes numériques, on peut envisager de n'utiliser la méthode de Monte Carlo que localement pour l'estimation de \mathcal{A} , et de réaliser l'intégration volumique sur un maillage du domaine réactionnel. En utilisant les symétries du DiCoFluV, on estime à $\sim 10^5$ le nombre de mailles nécessaires². Nous nous retrouvons donc dans la même situation que précédemment : il faudrait appeler 10^5 fois le calcul de \mathcal{A} et multiplier d'autant les temps de calcul (voir Sec. 5.5).

Nous proposons dans ce chapitre de retravailler l'expression de la loi de couplage cinétique Eq. 6.8 afin de retrouver le formalisme de la méthode de Monte Carlo et de permettre ainsi l'estimation de la productivité globale du réacteur de manière rigoureuse à partir d'un seul et même algorithme de Monte Carlo (une seule procédure d'échantillonnage), bénéficiant donc de tous les atouts de la méthode : information sur l'erreur numérique, calcul de sensibilité, raisonnements théoriques de type zéro-variance pour l'accélération de convergence, etc.

6.3 Principe de la reformulation intégrale proposée

En notant la loi de couplage cinétique

$$r_x(\mathbf{x}_0) = f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) \quad (6.9)$$

2. Nous envisageons ici un maillage du volume réactionnel contenu entre les 1000 fibres du photobioréacteur DiCoFluV qui consisterait grossièrement en 10 mailles autour de chaque fibre et 10 mailles selon la hauteur du réacteur, soit $10 \times 10 \times 1000$ mailles.

la productivité globale du réacteur s'écrit :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) f \left(\int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \hat{w}(\gamma) \right) \quad (6.10)$$

Si la loi de couplage est linéaire, il vient

$$f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) = \Lambda (\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) - \mathcal{A}_0) \quad (6.11)$$

où Λ et \mathcal{A}_0 sont des constantes, et l'expression intégrale de $\langle r_x \rangle$ correspond directement au formalisme de la méthode de Monte Carlo :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \Lambda (\hat{w}(\gamma) - \mathcal{A}_0) \quad (6.12)$$

où on a utilisé la normalisation de $p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma)$ pour écrire $\int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \Lambda \mathcal{A}_0 = \Lambda \mathcal{A}_0$, tandis que $\int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) \Lambda \hat{w}(\gamma) = \Lambda \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$. L'algorithme de Monte Carlo évaluant $\langle r_x \rangle$ pour cette loi de couplage linéaire s'énonce de la manière suivante :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant $p_{\mathbf{x}_0}$,
- (2) partant de cette position, un chemin γ de multidiffusion et réflexion associé à une certaine fréquence du rayonnement est généré suivant $p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}$, c'est-à-dire suivant la procédure d'échantillonnage présentée dans le chapitre 5,
- (3) le poids est calculé suivant la fonction de poids $\hat{w}^{prod} = \Lambda (\hat{w}(\gamma) - \mathcal{A}_0)$, où $\hat{w}(\gamma)$ est la fonction de poids du chapitre 5,
- (4) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

Le travail d'écriture qui est proposé dans la suite a pour but de ramener l'étude des lois de couplage non-linéaire à cette situation triviale. Afin d'en illustrer simplement le principe, prenons une loi de couplage quadratique (puis en puissance entière) :

$$\begin{aligned} f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) &= \Lambda (\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) - \mathcal{A}_0)^2 \\ &= \Lambda \left[\int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)}(\gamma) (\hat{w}(\gamma) - \mathcal{A}_0) \right]^2 \end{aligned} \quad (6.13)$$

Cas quadratique ou en puissance entière : Nous proposons d'introduire deux variables indépendantes Γ_1 et Γ_2 , parentes de Γ et l'expression de $f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0))$ peut alors s'écrire :

$$f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) = \Lambda \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) (\hat{w}(\gamma_1) - \mathcal{A}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_2 p_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}(\gamma_2) (\hat{w}(\gamma_2) - \mathcal{A}_0) \quad (6.14)$$

Cette écriture est rigoureuse. Deux variables aléatoires sont parentes lorsqu'elles ont le même domaine de définition (ici $\mathcal{D}_{\Gamma_1} \equiv \mathcal{D}_{\Gamma_2} \equiv \mathcal{D}_{\Gamma}$) et la même densité de probabilité (ici $p_{\Gamma_1} \equiv p_{\Gamma_2} \equiv p_{\Gamma}$). Ce qui assure bien :

$$\left[\int_{\mathcal{D}_{\Gamma(\mathbf{x}_0)}} d\gamma p_{\Gamma(\mathbf{x}_0)}(\gamma) (\hat{w}(\gamma) - \mathcal{A}_0) \right]^2 = \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) (\hat{w}(\gamma_1) - \mathcal{A}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_2 p_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}(\gamma_2) (\hat{w}(\gamma_2) - \mathcal{A}_0) \quad (6.15)$$

Du fait de l'indépendance de Γ_1 et Γ_2 , l'expression de $\langle r_x \rangle$ est alors ramenée au formalisme usuel de la méthode de Monte Carlo :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_2 p_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}(\gamma_2) \hat{w}^{prod}(\gamma_1, \gamma_2) \quad (6.16)$$

avec

$$\hat{w}^{prod}(\gamma_1, \gamma_2) = \Lambda (\hat{w}(\gamma_1) - \mathcal{A}_0) (\hat{w}(\gamma_2) - \mathcal{A}_0) \quad (6.17)$$

où $\hat{w}(\gamma_1)$ et $\hat{w}(\gamma_2)$ sont respectivement les valeurs de la fonction de poids du chapitre 5 pour les chemins optiques γ_1 et γ_2 . L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant $p_{\mathbf{x}_0}$,
 - (2) partant de \mathbf{x}_0 , un premier chemin optique γ_1 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
 - (3) partant de \mathbf{x}_0 , un second chemin optique γ_2 est échantillonné indépendamment de γ_1 suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
 - (4) le poids est calculé suivant la fonction de poids \hat{w}^{prod} de l'équation 6.17,
 - (5) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.
- Il s'agit exactement de la méthode employée au chapitre 3 pour l'estimation du module carré de l'amplitude de diffusion dans le cadre du calcul de la section efficace différentielle

de diffusion des micro-organismes photosynthétiques.

Cette méthode permet de traiter n'importe quel ordre entier positif de la loi de couplage

$$f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) = \Lambda (\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) - \mathcal{A}_0)^n \quad (6.18)$$

où $n \in \mathbb{N}$. A l'ordre n , l'algorithme est identique à celui présenté ci-dessus, avec n chemins optiques lancés pour chaque position \mathbf{x}_0 échantillonnée (dans le cas précédent $n = 2$) :

$$\begin{aligned} \langle r_x \rangle = & \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_2 p_{\Gamma_2(\mathbf{x}_0)}(\gamma_2) \\ & \dots \times \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_n(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_n p_{\Gamma_n(\mathbf{x}_0)}(\gamma_n) \hat{w}^{prod} \end{aligned} \quad (6.19)$$

avec

$$\hat{w}^{prod} = \Lambda \prod_{q=1}^n (\hat{w}(\gamma_q) - \mathcal{A}_0) \quad (6.20)$$

Le temps de calcul (qui est piloté par le nombre de chemins optiques à échantillonner) est ici environ n fois plus élevé que celui associé à l'évaluation de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$, alors que si nous n'utilisons pas cette reformulation, l'intégration volumique de cette loi de couplage correspondrait à une multiplication par 10^5 du temps de calcul (voir Sec. 6.2). Cependant, cette méthode ne permet pas directement de traiter une fonction non-linéaire quelconque, notamment la loi de couplage que nous souhaitons utiliser (qui ne se résume pas à des puissances entières).

Généralisation par développement de Taylor : Pour généraliser l'approche aux fonctions non-linéaires analytiques (infiniment dérivables), nous proposons ici d'écrire la loi de couplage cinétique comme son développement en série de Taylor autour d'une valeur donnée \mathcal{A}_0 (qui est pour l'instant arbitraire) :

$$f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) = \Lambda_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \Lambda_n (\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) - \mathcal{A}_0)^n \quad (6.21)$$

où

$$\begin{aligned} \Lambda_0 &= f(\mathcal{A}_0) \\ \Lambda_n &= \frac{f^{(n)}(\mathcal{A}_0)}{n!} \end{aligned} \quad (6.22)$$

avec $f^{(n)}(\mathcal{A}_0)$ la dérivée n^{ime} de f prise en \mathcal{A}_0 . L'égalité entre f et son développement en série de Taylor est vérifiée si $(\mathcal{A} - \mathcal{A}_0)$ est contenue dans le rayon de convergence du

développement. \mathcal{A}_0 doit donc être choisi afin de satisfaire à cette condition (ce qui n'est pas immédiat car \mathcal{A} prend des valeurs différentes en chaque point du volume, voir Sec. 6.4). En appliquant la méthode précédente (Eqs. 6.18 - 6.20) à chaque ordre n du développement, on obtient :

$$\langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\mathbf{\Gamma}_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_2(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_2 p_{\mathbf{\Gamma}_2(\mathbf{x}_0)}(\gamma_2) \dots \hat{w}^{prod} \quad (6.23)$$

avec

$$\hat{w}^{prod} = \Lambda_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \Lambda_n \prod_{q=1}^n (\hat{w}(\gamma_q) - \mathcal{A}_0) \quad (6.24)$$

Cette intégrale comporte une infinité d'intégrations $\int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j)$ et afin de pouvoir l'évaluer numériquement, il nous faut introduire un critère d'arrêt. En effet, l'algorithme de Monte Carlo final ne peut pas consister en la génération d'une infinité de chemins optiques pour chacune de ses réalisations. Nous proposons d'introduire un test de Bernoulli afin de stopper la génération successive des chemins optiques $\mathbf{\Gamma}_j$ sans apporter de biais, ni tronquer le développement de Taylor de $f(\mathcal{A})$. Les tests de Bernoulli sont couramment utilisés lors de l'estimation de sommes par la méthode de Monte Carlo et nous ne développons pas ici les interprétations statistiques auxquelles ils sont associés. Cependant, on peut aisément s'assurer de la rigueur mathématique de leur introduction dans notre formulation intégrale en remarquant que

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j) \hat{w}^d(\gamma_j) = \\ \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j) \int_0^1 dr_j p_{R_j}(r_j) H(r_j < \mathcal{P}_j) \frac{\hat{w}^d(\gamma_j)}{\mathcal{P}_j} \end{aligned} \quad (6.25)$$

où \hat{w}^d est une fonction de poids quelconque, $p_{R_j}(r_j) = 1$ et \mathcal{P}_j est une probabilité ($\mathcal{P}_j \in]0, 1]$). On obtient ainsi la formulation intégrale de l'algorithme de Monte Carlo estimant de manière exacte $\langle r_x \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle r_x \rangle = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\mathbf{\Gamma}_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_0^1 dr_1 p_{R_1}(r_1) \\ \times \left\{ H(r_1 > \mathcal{P}_1) \hat{w}_1^{prod} + H(r_1 < \mathcal{P}_1) \mathcal{I}_1 \right\} \end{aligned} \quad (6.26)$$

avec \mathcal{I}_j défini de manière récursive comme

$$\mathcal{I}_{j-1} = \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j) \int_0^1 dr_j p_{R_j}(r_j) \left\{ H(r_j > \mathcal{P}_j) \hat{w}_j^{prod} + H(r_j < \mathcal{P}_j) \mathcal{I}_j \right\} \quad (6.27)$$

et où $p_{R_j}(r_j) = 1$, \mathcal{P}_j est n'importe quelle probabilité non-nulle, et enfin

$$\begin{aligned} \hat{w}_1^{prod} &= \Lambda_0 \\ \hat{w}_{j>1}^{prod} &= \Lambda_0 + \sum_{n=1}^{j-1} \Lambda_n \prod_{q=1}^n \frac{\hat{w}(\gamma_q) - \mathcal{A}_0}{\mathcal{P}_q} \end{aligned} \quad (6.28)$$

L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant $p_{\mathbf{x}_0}$,
- (2) partant de \mathbf{x}_0 , un chemin optique γ_1 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
- (3) une roulette russe est mise en œuvre : un nombre aléatoire r_1 est généré uniformément entre 0 et 1 suivant la densité de probabilité p_{R_1} ,
 - (a) si $r_1 > \mathcal{P}_1$, la génération successive des chemins optiques est stoppée, le poids est calculé suivant la fonction de poids \hat{w}_1^{prod} et l'algorithme va à l'étape (4),
 - (b) si $r_1 < \mathcal{P}_1$, l'algorithme boucle à l'étape (2) en incrémentant l'indice 1 à 2 (et ainsi de suite),
- (4) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

6.4 Mise en œuvre pour la loi de couplage de *Chlamydomonas reinhardtii*

Dans cette section, nous nous concentrons sur l'estimation de la productivité du Di-CoFluV, ainsi que ses sensibilités paramétriques, pour la loi de couplage de *Chlamydomonas reinhardtii* présentée en annexe B.

6.4.1 Estimation de la productivité du réacteur

Pour la loi de couplage de *Chlamydomonas reinhardtii* Eq. 6.2, en reprenant les notations de la section précédente, on obtient les coefficients suivants pour le développement en série

de Taylor de la fonction f (voir Eq. 6.22) :

$$\begin{aligned}\Lambda_0 &= C_x \left[\alpha \frac{K \mathcal{A}_0}{K + \mathcal{A}_0} - \beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}_0} \right] \\ \Lambda_n &= (-1)^{n+1} C_x \left[\alpha \frac{K^2}{K + \mathcal{A}_0} \left(\frac{\mathcal{A}_0}{K + \mathcal{A}_0} \right)^n + \beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}_0} \left(\frac{\mathcal{A}_0}{K + \mathcal{A}_0} \right)^n \right] \frac{1}{\mathcal{A}_0^n}, \quad n \in \mathbb{N}^*\end{aligned}\quad (6.29)$$

En injectant ces coefficients dans l'expression Eq. 6.28 on obtient la fonction de poids

$$\begin{aligned}\hat{w}_1^{prod} &= \Lambda_0 \\ \hat{w}_{j>1}^{prod} &= \Lambda_0 - \sum_{n=1}^{j-1} \tilde{\Lambda}_n \prod_{q=1}^n \frac{1}{\mathcal{P}_q} \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_q)}{\mathcal{A}_0}\end{aligned}\quad (6.30)$$

avec

$$\tilde{\Lambda}_n = C_x \left[\alpha \frac{K^2}{K + \mathcal{A}_0} \left(\frac{\mathcal{A}_0}{K + \mathcal{A}_0} \right)^n + \beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}_0} \left(\frac{\mathcal{A}_0}{K + \mathcal{A}_0} \right)^n \right] \quad (6.31)$$

Nous allons maintenant nous intéresser au choix de la valeur $\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0)$ autour de laquelle f est développée localement. \mathcal{A}_0 est bien potentiellement une fonction de \mathbf{x}_0 puisque \mathcal{A} est une fonction de l'espace : nous verrons que nous aurons tout intérêt à éviter que $\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0)$ soit trop éloigné de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ et on appellera donc dans la suite $\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0)$ le *champ estimateur* de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$. Comme nous l'avons vu dans la section précédente, $\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0)$ doit se situer dans le rayon de convergence du développement de Taylor de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$. Cela correspond ici à (voir l'encart 2 en fin de section) :

$$\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0) > \frac{\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) - \min\{K, K_r\}}{2} \quad (6.32)$$

où $\min\{K, K_r\}$ désigne la valeur du plus petit des paramètres K et K_r , ici K_r . On propose de choisir le champ estimateur comme étant un majorant des valeurs que prend localement la fonction de poids \hat{w} liée à l'estimation de $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$:

$$\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0) > \max\{\hat{w}[\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)]\} \quad (6.33)$$

où on rappelle que $\mathbf{\Gamma}(\mathbf{x}_0)$ est la variable aléatoire correspondant aux chemins optiques partant de la position \mathbf{x}_0 , dont γ est une réalisation. Ce choix entraîne d'une part que \mathcal{A}_0 est un majorant du champ \mathcal{A} , ce qui assure la validité du développement en série de Taylor puisque $\mathcal{A}_0(\mathbf{x}_0) > \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ est toujours dans le rayon de convergence Eq. 6.32, et d'autre part cela entraîne que $\frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \in]0, 1]$, $\forall j$. Cette seconde conséquence nous permet de choisir la

probabilité des tests de Bernoulli comme étant

$$\mathcal{P}_j = \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \quad (6.34)$$

ce qui simplifie l'expression de la fonction de poids Eq. 6.30, qui devient :

$$\begin{aligned} \hat{w}_1^{prod} &= \Lambda_0 \\ \hat{w}_{j>1}^{prod} &= \Lambda_0 - \sum_{n=1}^{j-1} \tilde{\Lambda}_n \end{aligned} \quad (6.35)$$

On observe que le chemin γ_j n'apparaît plus dans l'expression des poids. Pour autant, il ne s'agit pas d'un algorithme à variance nulle puisque la probabilité du test de Bernoulli définissant le nombre de termes dans la somme $\sum_{n=1}^{j-1} \tilde{\Lambda}_n$ dépend des $\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_j$. Reste que l'algorithme s'en trouve simplifié et que les qualités numériques sont satisfaisantes³ (voir Sec. 6.5). Dans nos tests nous avons finalement retenu un champ estimateur \mathcal{A}_0 uniforme pris à la valeur majorante sur l'ensemble du volume réactionnel :

$$\mathcal{A}_0 \geq \max \{ \hat{w}[\Gamma(\mathbf{x}_0)] \} \quad , \forall \mathbf{x}_0 \quad (6.36)$$

Dans le cas du DiCoFluv et avec les notations du chapitre 5 cela peut être obtenu avec :

$$\mathcal{A}_0 = (\nu_{max} - \nu_{min}) 4\pi \frac{(\sigma_{a,\nu} \frac{\varphi\nu}{h\nu})_{max}}{\pi(1 - \rho^{\mathcal{F}})} \quad (6.37)$$

où $(\sigma_{a,\nu} \frac{\varphi\nu}{h\nu})_{max}$ désigne la valeur maximale de $\sigma_{a,\nu} \frac{\varphi\nu}{h\nu}$ sur la gamme spectrale $[\nu_{min}, \nu_{max}]$ étudiée. On obtient ainsi la formulation intégrale de l'algorithme de Monte Carlo estimant de manière exacte $\langle r_x \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle r_x \rangle &= \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_0^1 dr_1 p_{R_1}(r_1) \\ &\times \left\{ H \left[r_1 > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0} \right] \hat{w}_1^{prod} + H \left[r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0} \right] \mathcal{I}_1 \right\} \end{aligned} \quad (6.38)$$

3. Si la convergence d'un tel algorithme s'avérait problématique dans d'autres contextes, il serait pertinent de mettre en œuvre la méthodologie de zéro-variance afin de réduire la variance des poids \hat{w}_j^{prod} . Cependant, la minimisation de cette variance ne suffirait pas à assurer une optimisation des performances numériques. Il s'agirait plutôt de trouver un compromis entre la convergence de l'algorithme et le temps de calcul nécessaire à chacune de ses réalisations; ce temps de calcul étant directement lié au nombre de chemins optiques à échantillonner pour chaque réalisation (l'ordre du développement auquel la réalisation s'arrête) [131].

avec \mathcal{I}_j défini de manière récursive comme

$$\begin{aligned} \mathcal{I}_{j-1} = & \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j) \int_0^1 dr_j p_{R_j}(r_j) \\ & \times \left\{ H \left[r_j > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \right] \hat{w}_j^{prod} + H \left[r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \right] \mathcal{I}_j \right\} \end{aligned} \quad (6.39)$$

et où $p_{\mathbf{x}_0} = \frac{1}{V}$, $p_{R_j} = 1$, $p_{\mathbf{\Gamma}_j(\mathbf{x}_0)}$ représentent la procédure d'échantillonnage des chemins optiques partant de \mathbf{x}_0 (voir Chap. 5), $\hat{w}(\gamma_j)$ est la fonction de poids pour l'estimation de \mathcal{A} (voir Chap. 5), \mathcal{A}_0 est défini à Eq. 6.37 et enfin la fonction de poids \hat{w}_j^{prod} est définie à l'équation 6.35.

L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant $p_{\mathbf{x}_0}$,
- (2) partant de \mathbf{x}_0 , un chemin optique γ_1 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
- (3) une roulette russe est mise en œuvre : un nombre aléatoire r_1 est généré uniformément entre 0 et 1 suivant la densité de probabilité p_{R_1} ,
 - (a) si $r_1 > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0}$, la génération successive des chemins optiques est stoppée, le poids est calculé suivant la fonction de poids \hat{w}_1^{prod} et l'algorithme va à l'étape (4),
 - (b) si $r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0}$, l'algorithme boucle à l'étape (2) en incrémentant l'indice 1 à 2 (et ainsi de suite),
- (4) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

Les résultats donnés par cet algorithme sont présentés à la section 6.5.

Encart 2 RAYONS DE CONVERGENCE

On démontre ici les rayons de convergence des développements de Taylor utilisés dans les sections 6.4.1 et 6.4.2. On se place dans le cas de la loi de couplage de Chlamydomonas reinhardtii Eq. 6.2. Le développement de Taylor de f autour de \mathcal{A}_0 est :

$$f(\mathcal{A}) = f(\mathcal{A}_0) - C_x \sum_{n=1}^{\infty} \left[\alpha \frac{K^2}{K + \mathcal{A}_0} \left(\frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K} \right)^n + \beta \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}_0} \left(\frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K_r} \right)^n \right] \quad (6.40)$$

où K et K_r sont positifs. D'après la règle de Cauchy, cette série est absolument convergente

si

$$\left| \frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K} \right| < 1 \quad \text{et} \quad \left| \frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K_r} \right| < 1 \quad (6.41)$$

On se restreint aux \mathcal{A}_0 positifs. Lorsque $\mathcal{A}_0 > \mathcal{A}$, la série est convergente puisque $|\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}| < |\mathcal{A}_0 + K|$ et $|\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}| < |\mathcal{A}_0 + K_r|$ (K et K_r étant positifs). Lorsque $\mathcal{A}_0 < \mathcal{A}$, la série est convergente si

$$\mathcal{A}_0 > \frac{\mathcal{A} - K}{2} \quad \text{et} \quad \mathcal{A}_0 > \frac{\mathcal{A} - K_r}{2} \quad (6.42)$$

c'est-à-dire lorsque

$$\mathcal{A}_0 > \frac{\mathcal{A} - \min\{K, K_r\}}{2} \quad (6.43)$$

où $\min\{K, K_r\}$ désigne la valeur du plus petit des paramètres K et K_r , ici K_r .

En dérivant l'expression Eq. 6.40 par rapport à \mathcal{A} , on obtient le développement de Taylor de f' autour de \mathcal{A}_0 :

$$f'(\mathcal{A}) = C_x \sum_{n=1}^{\infty} \left[\alpha \frac{K^2}{(K + \mathcal{A}_0)^2} n \left(\frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K} \right)^{n-1} + \beta \frac{K_r}{(K_r + \mathcal{A}_0)^2} n \left(\frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K_r} \right)^{n-1} \right] \quad (6.44)$$

que l'on réécrit

$$f'(\mathcal{A}) = C_x \alpha \frac{K^2}{(K + \mathcal{A}_0)^2} \sum_{n=1}^{\infty} A_n + C_x \beta \frac{K_r}{(K_r + \mathcal{A}_0)^2} \sum_{n=1}^{\infty} B_n \quad (6.45)$$

avec

$$A_n = n \left(\frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K} \right)^{n-1} \quad (6.46)$$

et

$$B_n = n \left(\frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K_r} \right)^{n-1} \quad (6.47)$$

D'après la règle de d'Alembert, cette série est absolument convergente si

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \left| \frac{A_{n+1}}{A_n} \right| = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{n+1}{n} \left| \frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K} \right| < 1$$

et

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \left| \frac{B_{n+1}}{B_n} \right| = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{n+1}{n} \left| \frac{\mathcal{A}_0 - \mathcal{A}}{\mathcal{A}_0 + K_r} \right| < 1 \quad (6.48)$$

Cette condition est équivalente à la condition Eq. 6.41. Les développements de f et f' ont donc le même rayon de convergence Eq. 6.43.

6.4.2 Analyse de sensibilité

Encart 3 PRÉCISION DES NOTATIONS

Jusqu'ici la fonction f ne dépendait que de \mathcal{A} et \mathcal{A} ne dépendait que de \mathbf{x}_0 . Dans ce paragraphe dédié aux sensibilités, nous ferons apparaître de façon explicite la dépendance éventuelle à un paramètre π en notant : $f(\mathcal{A}; \pi)$ et $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$. Lorsque ces fonctions deviendront ainsi des fonctions à deux variables et que nous aurons besoin des dérivées partielles par rapport au paramètre π , nous écrirons $\partial_\pi f(\mathcal{A}; \pi)$ et $\partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$. Quand nous aurons besoin de la dérivée partielle de f par rapport à \mathcal{A} , nous écrirons $\partial_1 f(\mathcal{A}; \pi)$ pour désigner la dépendance à la première variable sans ambiguïté sur la valeur de \mathcal{A} .

Nous nous intéressons ici aux sensibilités $\partial_\pi \langle r_x \rangle$ de $\langle r_x \rangle$ à des paramètres π non-géométriques. De tels paramètres peuvent intervenir dans l'expression de \mathcal{A} , soit $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$, et dans l'expression de la loi de couplage locale f , soit $f(\mathcal{A}; \pi)$. Nous procédons dans la suite au cas par cas en reprenant les sensibilités étudiées au chapitre 5.

Cas 1 : Sensibilité à un paramètre n'intervenant que dans l'expression de \mathcal{A} : $f \equiv f(\mathcal{A})$ et $\mathcal{A} \equiv \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$. Cette situation correspond aux sensibilités à la teneur en pigment p des micro-organismes et à la réflectivité $\rho^{\mathcal{F}}$ des fibres (voir Chap. 5). Dans ce cas, la sensibilité locale $\partial_\pi r_x(\mathbf{x}_0)$ s'écrit :

$$\partial_\pi r_x(\mathbf{x}_0) = \partial_\pi [f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi))] = f'(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)) \partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi) \quad (6.49)$$

où $\partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$ est la sensibilité étudiée au chapitre 5 et correspond à la formulation intégrale

$$\partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi) = \int_{\mathcal{D}_{\mathbf{\Gamma}_0(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_0 p_{\mathbf{\Gamma}_0(\mathbf{x}_0)}(\gamma_0) \hat{w}_\pi(\gamma_0) \quad (6.50)$$

avec $\pi \equiv p$ ou $\pi \equiv \rho^{\mathcal{F}}$ et où $\mathbf{\Gamma}_0$ est une variable aléatoire indépendante et parente des $\mathbf{\Gamma}_{j \geq 1}$ introduites dans les sections précédentes puisque l'espace des chemins optiques lié à l'évaluation de $\partial_\pi \mathcal{A}$ au chapitre 5 est identique à l'espace des chemins optiques lié à l'évaluation de \mathcal{A} (autrement dit, les algorithmes de Monte Carlo évaluant $\partial_\pi \mathcal{A}$ et \mathcal{A} sont identiques, seule la fonction de poids change). Les coefficients du développement en série de Taylor de $f'(\mathcal{A})$ autour de \mathcal{A}_0 s'obtiennent facilement en dérivant le développement de $f(\mathcal{A})$ Eq. 6.21 :

$$f'(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)) = \Lambda_1 + \sum_{n=1}^{\infty} (n+1) \Lambda_{n+1} (\mathcal{A}(\mathbf{x}_0) - \mathcal{A}_0)^n \quad (6.51)$$

où les Λ_j sont définis à l'équation 6.29. Ce développement possède le même rayon de convergence que le développement de $f(\mathcal{A})$ (voir l'encart 2 en fin de section précédente), ce qui permet de choisir le même champ estimateur \mathcal{A}_0 et les mêmes probabilités \mathcal{P}_j que dans la section précédente. Ainsi, en appliquant la méthodologie présentée aux sections 6.3 et 6.4.1 en remplaçant les Λ_j par $(j+1)\Lambda_{j+1}$ et en ajoutant l'intégration sur Γ_0 , on obtient la formulation intégrale suivante pour l'estimation des sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$ et $\partial_{\rho^{\mathcal{F}}} \langle r_x \rangle$:

$$\begin{aligned} \partial_\pi \langle r_x \rangle &= \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_0(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_0 p_{\Gamma_0(\mathbf{x}_0)}(\gamma_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_0^1 dr_1 p_{R_1}(r_1) \\ &\quad \times \left\{ H \left[r_1 > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0} \right] \hat{w}_{\pi,1}^{prod} + H \left[r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0} \right] \mathcal{I}_1 \right\} \end{aligned} \quad (6.52)$$

avec \mathcal{I}_j défini de manière récursive comme

$$\begin{aligned} \mathcal{I}_{j-1} &= \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j) \int_0^1 dr_j p_{R_j}(r_j) \\ &\quad \times \left\{ H \left[r_j > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \right] \hat{w}_{\pi,j}^{prod} + H \left[r_j < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \right] \mathcal{I}_j \right\} \end{aligned} \quad (6.53)$$

et où $p_{\mathbf{x}_0} = \frac{1}{V}$, $p_{R_j} = 1$, $p_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}$ représente la procédure d'échantillonnage des chemins optiques partant de \mathbf{x}_0 (voir Chap. 5), $\hat{w}(\gamma_j)$ est la fonction de poids pour l'estimation de \mathcal{A} (voir Chap. 5), \mathcal{A}_0 est défini à Eq. 6.37 et enfin

$$\begin{aligned} \hat{w}_{\pi,1}^{prod} &= \hat{w}_\pi(\gamma_0) \Lambda_1 \\ \hat{w}_{\pi,j>1}^{prod} &= \hat{w}_\pi(\gamma_0) \left[\Lambda_1 + \frac{1}{\mathcal{A}_0} \sum_{n=1}^{j-1} (n+1) \tilde{\Lambda}_{n+1} \right] \end{aligned} \quad (6.54)$$

$\hat{w}_\pi(\gamma_0)$ étant la fonction de poids de la sensibilité $\partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ pour la réalisation du premier chemin optique γ_0 , telle que décrite au chapitre 5. L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant $p_{\mathbf{x}_0}$,
- (2) partant de \mathbf{x}_0 , un premier chemin optique γ_0 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5 (ce chemin est dédié au calcul de \hat{w}_π),
- (3) partant de \mathbf{x}_0 , un chemin optique γ_1 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
- (4) une roulette russe est mise en œuvre : un nombre aléatoire r_1 est généré uniformément

entre 0 et 1 suivant la densité de probabilité p_{R_1} ,

- (a) si $r_1 > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0}$, la génération successive des chemins optiques est stoppée, le poids est calculé suivant la fonction de poids \hat{w}_1^{prod} et l'algorithme va à l'étape (5),
- (b) si $r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0}$, l'algorithme boucle à l'étape (3) en incrémentant l'indice 1 à 2 (et ainsi de suite),

(5) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

Cas 2 : Sensibilité à un paramètre intervenant dans l'expression de \mathcal{A} et dans l'expression de la loi de couplage cinétique : $f \equiv f(\mathcal{A}; \pi)$ et $\mathcal{A} \equiv \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$. Cette situation correspond à la sensibilité à la concentration C_x en biomasse qui a été étudiée dans le cadre de l'analyse des champs de \mathcal{A} au chapitre 5. Dans ce cas, la sensibilité locale $\partial_\pi r_x(\mathbf{x}_0)$ s'écrit :

$$\partial_\pi r_x(\mathbf{x}_0) = \partial_\pi [f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi); \pi)] = \partial_1 f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi); \pi) \partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi) + \partial_\pi f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi); \pi) \quad (6.55)$$

où $\partial_\pi \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; \pi)$ est la sensibilité étudiée au chapitre 5. Le premier terme est traité de manière identique à ce qui a été fait dans le cas 1. Dans le cas de la sensibilité à C_x et pour la loi de couplage Eq. 6.2, le second terme est

$$\partial_\pi f(\mathcal{A}(\mathbf{x}_0; C_x); C_x) = \frac{r_x(\mathbf{x}_0)}{C_x} \quad (6.56)$$

Ainsi, la formulation intégrale de la sensibilité $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$ est identique à celle des sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$ et $\partial_{\rho^F} \langle r_x \rangle$ Eqs. 6.52 et 6.53, avec la fonction de poids changée pour :

$$\begin{aligned} \hat{w}_{C_x,1}^{prod} &= \hat{w}_{C_x}(\gamma_0) \Lambda_1 + \frac{\hat{w}_1^{prod}}{C_x} \\ \hat{w}_{C_x,j>1}^{prod} &= \hat{w}_{C_x}(\gamma_0) \left[\Lambda_1 + \frac{1}{\mathcal{A}_0} \sum_{n=1}^{j-1} (n+1) \tilde{\Lambda}_{n+1} \right] + \frac{\hat{w}_j^{prod}}{C_x} \end{aligned} \quad (6.57)$$

où \hat{w}_j^{prod} est la fonction de poids associée à l'évaluation de $\langle r_x \rangle$ qui est définie à l'équation 6.35 et $\hat{w}_{C_x}(\gamma_0)$ est la fonction de poids de la sensibilité $\partial_{C_x} \mathcal{A}(\mathbf{x}_0; C_x)$ pour la réalisation du premier chemin optique γ_0 , telle que décrite au chapitre 5.

Les résultats obtenus pour les sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$, $\partial_{\rho^F} \langle r_x \rangle$ et $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$ sont présentés à la section 6.5.

6.5 Résultats dans le photobioréacteur DiCoFluV

RÉSUMÉ :

On donne ici l'algorithme de Monte Carlo qui est utilisé dans cette section pour l'évaluation de $\langle r_x \rangle$ et de ses sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$, $\partial_{p^{\mathcal{F}}} \langle r_x \rangle$ et $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$. Cet algorithme a été discuté dans les sections précédentes. La formulation intégrale est :

$$I = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{x}_0 p_{\mathbf{x}_0}(\mathbf{x}_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_0(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_0 p_{\Gamma_0(\mathbf{x}_0)}(\gamma_0) \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_1 p_{\Gamma_1(\mathbf{x}_0)}(\gamma_1) \int_0^1 dr_1 p_{R_1}(r_1) \\ \times \left\{ H \left[r_1 > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0} \right] \hat{w}_1^I + H \left[r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0} \right] \mathcal{I}_1 \right\} \quad (6.58)$$

avec \mathcal{I}_j défini de manière récursive comme

$$\mathcal{I}_{j-1} = \int_{\mathcal{D}_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}} d\gamma_j p_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}(\gamma_j) \int_0^1 dr_j p_{R_j}(r_j) \\ \times \left\{ H \left[r_j > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \right] \hat{w}_j^I + H \left[r_j < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_j)}{\mathcal{A}_0} \right] \mathcal{I}_j \right\} \quad (6.59)$$

et où $p_{\mathbf{x}_0} = \frac{1}{\mathcal{V}}$, $p_{R_j} = 1$, $p_{\Gamma_j(\mathbf{x}_0)}$ représente la procédure d'échantillonnage des chemins optiques partant de \mathbf{x}_0 (voir Chap. 5), $\hat{w}(\gamma_j)$ est la fonction de poids pour l'estimation de \mathcal{A} (voir Chap. 5), \mathcal{A}_0 est défini à Eq. 6.37 et :

- pour $I = \langle r_x \rangle$ la fonction de poids est

$$\hat{w}_1^I = \hat{w}_1^{prod} = \Lambda_0 \\ \hat{w}_{j>1}^I = \hat{w}_{j>1}^{prod} = \Lambda_0 - \sum_{n=1}^{j-1} \tilde{\Lambda}_n \quad (6.60)$$

- pour $I = \partial_p \langle r_x \rangle$

$$\hat{w}_1^I = \hat{w}_{p,1}^{prod} = \hat{w}_p(\gamma_0) \Lambda_1 \\ \hat{w}_{j>1}^I = \hat{w}_{p,j>1}^{prod} = \hat{w}_p(\gamma_0) \left[\Lambda_1 + \frac{1}{\mathcal{A}_0} \sum_{n=1}^{j-1} (n+1) \tilde{\Lambda}_{n+1} \right] \quad (6.61)$$

$\hat{w}_p(\gamma_0)$ étant la fonction de poids de la sensibilité $\partial_p \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ pour la réalisation du

premier chemin optique γ_0 , telle que décrite au chapitre 5,

- pour $I = \partial_{\rho^{\mathcal{F}}} \langle r_x \rangle$

$$\begin{aligned}\hat{w}_1^I &= \hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}},1}^{prod} = \hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}}}(\gamma_0) \Lambda_1 \\ \hat{w}_{j>1}^I &= \hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}},j>1}^{prod} = \hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}}}(\gamma_0) \left[\Lambda_1 + \frac{1}{\mathcal{A}_0} \sum_{n=1}^{j-1} (n+1) \tilde{\Lambda}_{n+1} \right]\end{aligned}\quad (6.62)$$

$\hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}}}(\gamma_0)$ étant la fonction de poids de la sensibilité $\partial_{\rho^{\mathcal{F}}} \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ pour la réalisation du premier chemin optique γ_0 , telle que décrite au chapitre 5,

- pour $I = \partial_{C_x} \langle r_x \rangle$

$$\begin{aligned}\hat{w}_1^I &= \hat{w}_{C_x,1}^{prod} = \hat{w}_{C_x}(\gamma_0) \Lambda_1 + \frac{\hat{w}_1^{prod}}{C_x} \\ \hat{w}_{j>1}^I &= \hat{w}_{C_x,j>1}^{prod} = \hat{w}_{C_x}(\gamma_0) \left[\Lambda_1 + \frac{1}{\mathcal{A}_0} \sum_{n=1}^{j-1} (n+1) \tilde{\Lambda}_{n+1} \right] + \frac{\hat{w}_j^{prod}}{C_x}\end{aligned}\quad (6.63)$$

$\hat{w}_{C_x}(\gamma_0)$ étant la fonction de poids de la sensibilité $\partial_{C_x} \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ pour la réalisation du premier chemin optique γ_0 , telle que décrite au chapitre 5.

avec les Λ_j définis à l'équation 6.29, les $\tilde{\Lambda}_j$ définis à l'équation 6.31.

L'algorithme de Monte Carlo correspondant s'énonce de la manière suivante :

- (1) une position \mathbf{x}_0 est générée uniformément dans le volume réactionnel suivant $p_{\mathbf{x}_0}$,
- (2) partant de \mathbf{x}_0 , un premier chemin optique γ_0 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
- (3) partant de \mathbf{x}_0 , un chemin optique γ_1 est échantillonné suivant la procédure présentée dans le chapitre 5,
- (4) une roulette russe est mise en œuvre : un nombre aléatoire r_1 est généré uniformément entre 0 et 1 suivant la densité de probabilité p_{R_1} ,
 - (a) si $r_1 > \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0}$, la génération successive des chemins optiques est stoppée, les poids sont calculés suivant les fonctions de poids \hat{w}_1^{prod} , $\hat{w}_{p,1}^{prod}$, $\hat{w}_{\rho^{\mathcal{F}},1}^{prod}$, $\hat{w}_{C_x,1}^{prod}$, et l'algorithme va à l'étape (5),
 - (b) si $r_1 < \frac{\mathcal{A}_0 - \hat{w}(\gamma_1)}{\mathcal{A}_0}$, l'algorithme boucle à l'étape (3) en incrémentant l'indice 1 à 2 (et ainsi de suite),
- (5) l'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

L'algorithme présenté dans le résumé précédent permet d'obtenir, au sein d'une seule et même procédure numérique, un ensemble de résultats à l'échelle du procédé, incluant le traitement de la diffusion multiple en géométrie complexe, les aspects spectraux et le couplage aux cinétiques de la photosynthèse. La productivité $\langle r_x \rangle$ illustrée aux figures 6.2 et 6.5 est la productivité volumique moyenne du photobioréacteur DiCoFluV (pour la géométrie présentée au chapitre 5) calculée sur le volume réactionnel (et non sur le volume total du réacteur qui inclurait l'espace occupé par les fibres) pour les paramètres de la loi de couplage cinétique de *Chlamydomonas reinhardtii* donnés en Annexe B et pour une émission aux fibres lambertiennes, de densité surfacique de flux $q_\Gamma = 25 \cdot \mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Les sensibilités de $\langle r_x \rangle$ étudiées sont la sensibilité $\partial_p \langle r_x \rangle$ à la teneur en pigments p de *Chlamydomonas reinhardtii*, la sensibilité $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$ à la concentration en biomasse sèche C_x dans le réacteur, et la sensibilité $\partial_{\rho_{\mathcal{F}}} \langle r_x \rangle$ à la réflectivité $\rho_{\mathcal{F}}$ des fibres, telles que définies dans le chapitre 5 et dans le résumé en début de section.

Les temps de calculs correspondant à l'obtention des résultats de la figure 6.2 avec un ordinateur portable de bureau (processeur Intel Core i7-2720QM 2.20GHz), sans optimisation particulière de l'algorithme de Monte Carlo (ni d'un point de vue numérique ni sur le plan informatique), sont de l'ordre de la dizaine de minutes (voir Tab. 6.1). Ces résultats obtenus pour 10^6 réalisations indiquent une très bonne convergence numérique avec des écarts-types relatifs de l'ordre de 0.5% pour $\langle r_x \rangle$ et ses sensibilités. On peut généralement se contenter d'écarts-types de l'ordre de 1%. Dans ce cas, 2×10^5 réalisations de l'algorithme suffisent⁴, ce qui ramène les temps de calcul à quelques minutes. Le tableau 6.1 montre que la durée d'une simulation augmente avec la concentration en biomasse C_x . Ceci est lié à l'augmentation de l'ordre moyen $\langle n \rangle$ du développement en série de Taylor donné à la figure 6.1 en fonction de C_x . $\langle n \rangle$ représente la multiplication du temps de calcul nécessaire pour chaque réalisation, par rapport à une estimation de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} . En effet, l'ordre du développement correspond au nombre de chemins optiques qui doivent être échantillonnés pour chaque réalisation. L'augmentation de $\langle n \rangle$ avec la concentration en biomasse (qui pilote l'épaisseur optique du milieu) est due à une hétérogénéité croissante du champ de \mathcal{A} dans le réacteur, et donc à une différence croissante entre le champ estimateur \mathcal{A}_0 et \mathcal{A} . Dans le cadre de la figure 6.2, $\langle n \rangle \simeq 40$ et les temps de calcul sont bien environ 40 fois plus élevés que lors de l'estimation locale de \mathcal{A} au chapitre 5.

4. L'écart-type σ_{N_1} associé à l'évaluation d'une grandeur par un algorithme de Monte Carlo évolue en fonction du nombre de réalisation N_1 comme $\sigma_{N_1} \propto 1/\sqrt{N_1}$. Pour un nombre de réalisation N_2 , l'écart-type σ_{N_2} correspondant est :

$$\sigma_{N_2} = \sigma_{N_1} \sqrt{\frac{N_1}{N_2}}$$

Le fait de disposer du calcul de $\langle r_x \rangle$ et de certaines de ses sensibilités, pour des temps de calculs acceptables, permet d'explorer à moindre frais un espace de paramètres à plusieurs dimensions, dans une démarche de recherche d'optimum. Dans ce qui suit, nous présentons un ensemble de premiers résultats s'inscrivant dans cette logique. Il ne s'agit en aucun cas d'un exercice d'optimisation abouti (ce qui prendra du temps et ne peut être déclenché que maintenant que les outils sont disponibles), mais d'une illustration des potentiels d'analyse auxquels nous parvenons au terme de ce travail de thèse.

	10 ⁶ réalisations : écarts-types $\sim 0.5\%$			2 \times 10 ⁵ réalisations : écarts-types $\sim 1\%$		
C_x ($kg_x \cdot m^{-3}$)	0.5	1.5	3	0.5	1.5	3
Temps (minutes)	5	15	30	1	3	6

TABLE 6.1: Ordres de grandeur des temps de calcul nécessaires à l'obtention des résultats de la figure 6.2 avec un ordinateur portable équipé d'un processeur Intel Core i7-2720QM 2.20GHz.

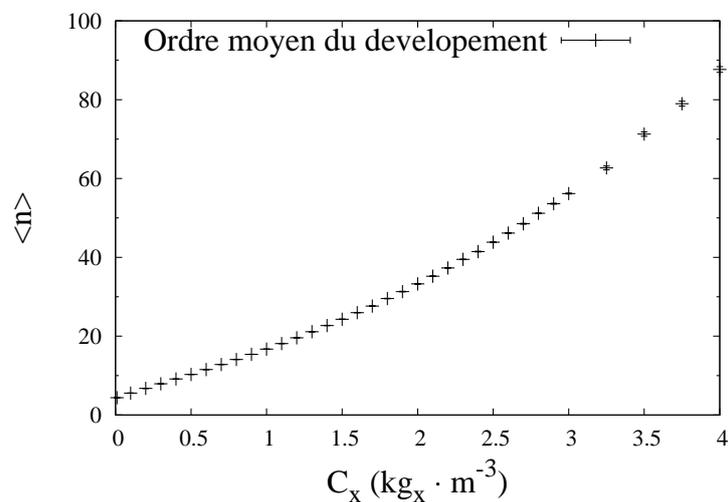


FIGURE 6.1: Evolution de l'ordre moyen $\langle n \rangle$ du développement en série de Taylor de l'algorithme en fonction de la concentration en biomasse C_x . Les résultats pour $C_x \leq 3$ ont été obtenus pour 10⁶ réalisations, les résultats pour $C_x > 3$ pour 10⁵ réalisations.

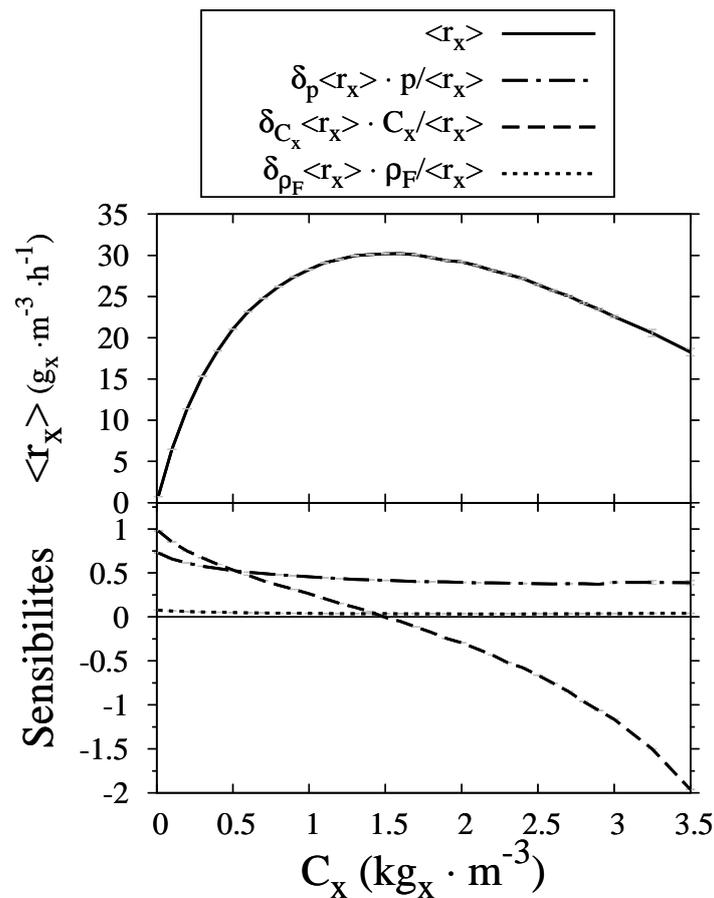


FIGURE 6.2: Productivité $\langle r_x \rangle$ et ses sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$, $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$ et $\partial_{\rho_F} \langle r_x \rangle$ obtenues avec l'algorithme donné dans le résumé en début de section pour 10^6 réalisations (sauf les valeurs à $C_x = 3.25$ et 3.5 qui ont été obtenues pour 10^5 réalisations), en fonction de la concentration en biomasse sèche C_x dans le réacteur. L'estimation de l'erreur numérique est donnée en barres d'erreur (en gris), les convergences étant bonnes celles-ci ne se voient quasiment pas. Les sensibilités sont données en relatif, cela correspond à $\partial_\pi \langle r_x \rangle \times \frac{\pi}{\langle r_x \rangle}$ où π est le paramètre étudié.

La figure 6.2 illustre la recherche d'un optimum de concentration C_x vis-à-vis de la productivité $\langle r_x \rangle$ d'un réacteur dont la géométrie (qui sera dans la suite paramétrée par le rayon des fibres) est fixée. L'interprétation physique de l'optimum observé est identique à celle déjà présentée au chapitre 1 :

- Pour les faibles concentrations C_x le nombre de micro-organismes par unité de volume participant à la photosynthèse est trop faible et une proportion importante des photons est perdue aux parois du système. La productivité est faible.
- Pour les fortes concentrations C_x , l'apparition de zones sombres correspondant à une consommation de biomasse par respiration contribue à réduire la productivité.

Il est logique de retrouver ici la tendance obtenue avec le modèle monodimensionnel en absorption pure du chapitre 1 car les photobioréacteurs restent régis, au moins qualitativement, par les phénomènes d'absorption même lorsque l'on complexifie la géométrie. Néanmoins, l'analyse quantitative du prototype DiCoFluV présentée à la figure 6.2, incluant les sensibilités de $\langle r_x \rangle$, constitue un résultat inédit et riche pour l'étude du procédé. En comparaison avec les concentrations optimales de l'ordre de $10 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$ calculées dans [7] pour une culture d'*Arthrospira platensis* dans le photobioréacteurs DiCoFluV, nous obtenons ici des valeurs bien plus faibles, de l'ordre de $2 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$. Cette différence est principalement due à la conjonction de plusieurs effets liés au remplacement d'*Arthrospira platensis* par *Chlamydomonas reinhardtii*. Par rapport à *Chlamydomonas reinhardtii*, la cyanobactérie *Arthrospira platensis* ne présente pas de respiration pour les temps courts à l'obscurité (voir Chap. 1), elle possède un point de compensation environ dix fois inférieur et a une section efficace d'absorption environ deux fois inférieure. Tous ces effets contribuent à décaler l'optimum de production vers les fortes valeurs de C_x . De plus, les calculs présentés dans [7] ont été obtenus pour une configuration pseudo monodimensionnelle équivalente. L'approche utilisée dans ce chapitre élimine cette approximation géométrique, qui était jusqu'alors inévitable pour des raisons numériques, et permet de prendre en compte l'ensemble des effets liés à la géométrie complexe du prototype, notamment à travers l'apparition de zones sombres réparties de manière hétérogène au sein de l'arrangement périodique des fibres et à proximité de la cuve externe du réacteur. Nous remarquons que cette répartition hétérogène des zones sombres soulève d'ailleurs la question de la transposition de la règle du $\gamma = 1$ (voir Chap. 1), qui à été introduite par un raisonnement monodimensionnel, pour l'analyse du prototype DiCoFluV (γ est la fraction volumique du milieu réactionnel qui correspond à des valeurs de \mathcal{A} supérieures au point de compensation \mathcal{A}_c , voir Sec. 1.2.5). Par ailleurs, la figure 6.2 montre que la dérivée seconde de $\langle r_x \rangle (C_x)$ étant faible à l'optimum, une opération efficace du procédé ne nécessite pas un maintien strict de C_x à sa valeur optimale.

La sensibilité $\partial_{\rho_{\mathcal{F}}} \langle r_x \rangle$ indique que la réflectivité $\rho_{\mathcal{F}}$ des fibres optiques n'est pas un paramètre déterminant dans la technologie actuelle qui utilise des fibres en matière polymère placées dans une gaine, ce qui impose une faible réflectivité. La sensibilité $\partial_p \langle r_x \rangle$ est particulièrement intéressante car la teneur en pigments p des micro-organismes est largement étudiée par les biologistes moléculaires et les physiologistes [132, 133]. Contrairement à ce qui est à l'heure actuelle avancé dans ces études, nous observons ici une sensibilité positive : pour un raisonnement à l'échelle du réacteur il est utile d'augmenter la capacité d'absorption des micro-organismes. Cette contradiction est typique de la difficulté qu'il y a à penser le transfert radiatif couplé à la cinétique de croissance à l'échelle du procédé.

Bien que le calcul des sensibilités géométriques reste à l'heure actuelle à un stade exploratoire (voire Chap. 7), l'outil numérique dont nous disposons nous permet déjà d'analyser la question d'un design optimum grâce à un balayage d'une gamme de paramètres géométriques. Afin d'illustrer ce potentiel d'analyse, nous nous intéressons à l'influence du rayon $r_{\mathcal{F}}$ des fibres optiques en fonction du paramètre C_x (étude bidimensionnelle dans l'espace $(r_{\mathcal{F}}, C_x)$). Le rayon des fibres est un paramètre géométrique déterminant compte tenu du mode de dilution radiative qui fait la spécificité du concept DiCoFluV. Nous choisissons ici de contraindre l'arrangement spatial du millier de fibres dans le réacteur de sorte que la fraction volumique occupée par les fibres soit indépendante de leur rayon, ce qui permet d'assurer une optimisation conjointe des productivités calculées sur le volume réactionnel et sur le volume total du réacteur, et cela quel que soit $r_{\mathcal{F}}$ [7]. La contrainte est telle que l'espacement $d_{\mathcal{F}}$ entre l'axe des fibres est égal à $d_{\mathcal{F}} = 4r_{\mathcal{F}}$ (comme dans la géométrie étudiée au chapitre 5). La figure 6.3 montre la variation du nombre de fibres dans le photobioréacteur pour une gamme de rayons permettant d'assurer une bonne surface spécifique éclairée (et donc une bonne productivité volumique), tout en restant compatible avec une certaine réalité technologique. Pour chaque géométrie, définie par une valeur de $r_{\mathcal{F}}$, nous nous plaçons à la concentration en biomasse optimale $C_x^{\text{opt}} \equiv C_x^{\text{opt}}(r_{\mathcal{F}})$ telle qu'observée à la figure 6.2. Les valeurs de $C_x^{\text{opt}}(r_{\mathcal{F}})$ qui sont représentées à la figure 6.4 ont été obtenues, pour chaque $r_{\mathcal{F}}$, grâce à des calculs répétés de la sensibilité $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$ sur la plage de variation des C_x : l'optimum de $\langle r_x \rangle$ est obtenu en recherchant la valeur de C_x^{opt} qui annule $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$, ce qui est un exemple typique d'utilisation des sensibilités dans un contexte d'optimisation.

La figure 6.5 montre l'évolution, en fonction de $r_{\mathcal{F}}$, de la productivité $\langle r_x \rangle$ (et de ses sensibilités) prise en $C_x = C_x^{\text{opt}}(r_{\mathcal{F}})$, soit $\langle r_x \rangle (C_x^{\text{opt}}(r_{\mathcal{F}}))$. Ces résultats confirment, en géométrie complexe, le comportement modélisé par la loi d'ingénierie présentée dans [6], qui prédit une productivité $\langle r_x \rangle$ proportionnelle à la surface spécifique éclairée du réacteur. Nous observons bien ici un doublement de la productivité lorsque le rayon des fibres est divisé par deux, ce qui revient à doubler la surface spécifique éclairée⁵. Cette confirmation est essentielle, car bien que postulée dans [6] et testée pour des configurations monodimensionnelles cartésiennes et cylindriques, elle n'avait jusqu'à présent jamais été validée pour des géométries complexes.

5. La surface spécifique éclairée du réacteur est :

$$a = \frac{S_{\cap}}{V}$$

où S_{\cap} est la surface des fibres et V le volume du domaine réactionnel. Nous travaillons ici à volume constant puisque la distance entre les fibres est fixée à $d_{\mathcal{F}} = 4r_{\mathcal{F}}$. Une division de $r_{\mathcal{F}}$ par deux entraîne une division de la surface de chaque fibre par deux, mais le nombre total de fibres est multiplié par quatre (voir Fig. 6.3). a est donc multiplié par deux.

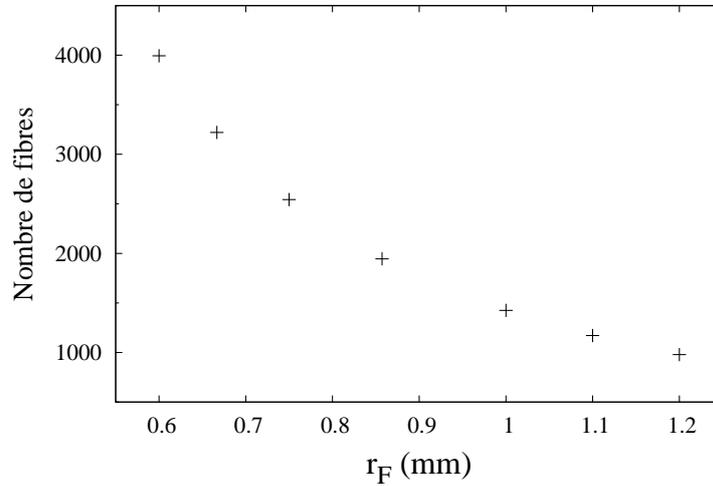


FIGURE 6.3: Evolution du nombre de fibres optiques à éclairage latéral dans le réacteur en fonction de leur rayon r_F . L'espacement d_F entre l'axe des fibres est contraint à $d_F = 4 r_F$.

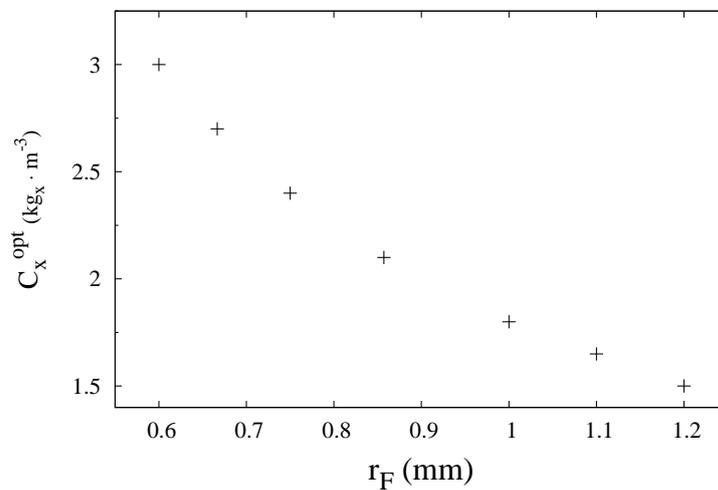


FIGURE 6.4: Concentration C_x optimale assurant une productivité $\langle r_x \rangle$ maximale pour chacune des géométries définies par le rayon r_F des fibres (voir Fig. 6.3). Résultats obtenus par un balayage de l'espace des C_x qui a été guidé par la valeur de la sensibilité $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$. La valeur C_x^{opt} est définie telle que $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle (C_x^{\text{opt}}) = 0$.

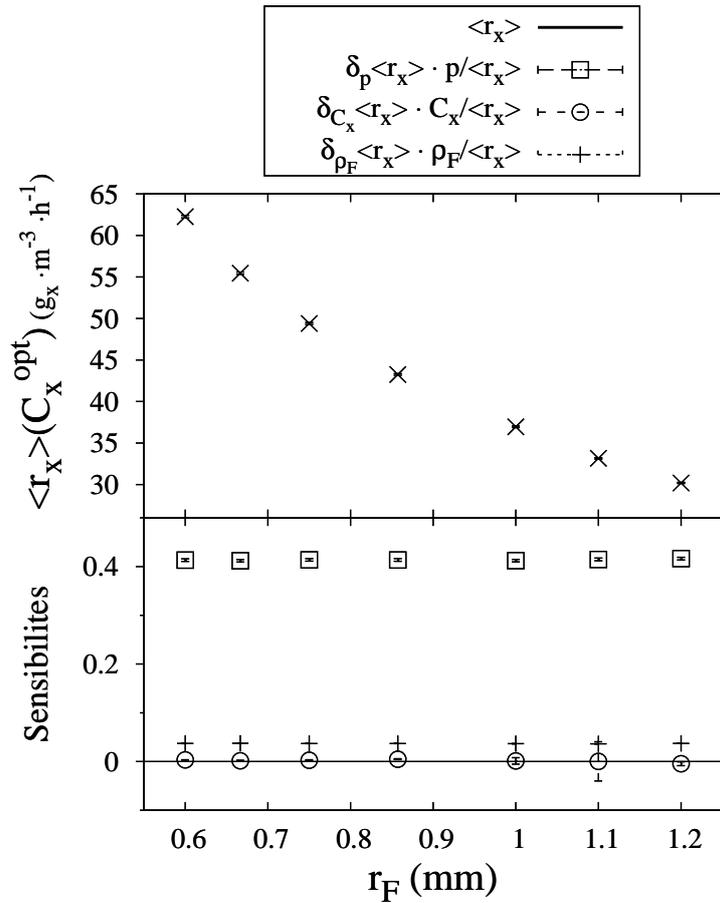


FIGURE 6.5: Productivité $\langle r_x \rangle(C_x^{\text{opt}})$ optimale et ses sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$, $\partial_{C_x} \langle r_x \rangle$ et $\partial_{\rho_F} \langle r_x \rangle$ obtenues avec l'algorithme donné dans le résumé en début de section pour 10^5 réalisations, en fonction du rayon r_F des fibres optiques. L'espaceur d_F entre l'axe des fibres est contraint à $d_F = 4r_F$ et le nombre de fibres dépend de leur rayon (voir Fig. 6.3). La productivité optimale est obtenue en ajustant la concentration à C_x^{opt} (voir Fig. 6.4). L'estimation de l'erreur numérique est donnée en barres d'erreur. Les sensibilités sont données en relatif, cela correspond à $\partial_\pi \langle r_x \rangle \times \frac{\pi}{\langle r_x \rangle}$ où π est le paramètre étudié.

La constance des sensibilités $\partial_p \langle r_x \rangle$ et $\partial_{\rho_F} \langle r_x \rangle$ sur la gamme de rayons r_F explorée semble indiquer une invariance du comportement du procédé pour les situations à $C_x = C_x^{\text{opt}}$. Pour comprendre cette invariance, notons que dans le cas d'une géométrie monodimensionnelle, le paramètre géométrique serait l'épaisseur E de la lame et l'ensemble des situations optimales qui sont ici explorées correspondrait bien sûr à une seule et même épaisseur optique $e = \sigma_{ext} C_x^{\text{opt}} E$ assurant une fraction volumique éclairée γ égale à 1 (c'est-à-dire que la valeur

du champ de rayonnement est fixée en $z = E$ à la valeur du point de compensation, voir Chap. 1). L'ensemble des couples (E, C_x^{Opt}) assurant que $\gamma = 1$ correspondrait alors à des situations strictement équivalentes d'un point de vue radiatif, puisque les transferts dans une lame ne dépendent de E et C_x qu'à travers l'épaisseur optique. Même si ce raisonnement est trivial dans le cas monodimensionnel, la confirmation de cette invariance d'échelle pour la géométrie complexe du photobioréacteur DicoFluV constitue un résultat important que l'on peut maintenant appliquer avec confiance lors d'une réflexion sur l'optimisation radiative du procédé.

Chapitre 7

Modèles de sensibilité aux paramètres géométriques et résolution par la méthode de Monte Carlo

Résumé :

Le calcul par la méthode de Monte Carlo de sensibilité aux paramètres géométriques d'une configuration radiative correspond à une difficulté méthodologique bien identifiée. Les bénéfices d'une telle analyse de sensibilité seraient pourtant significatifs pour l'optimisation des photobioréacteurs, par exemple pour la répartition des surfaces émettrices dans le prototype DiCoFluV, mais aussi dans bien d'autres domaines des sciences pour l'ingénieur : optimisation des surfaces réfléchives des centrales solaires thermiques à concentration, optimisation des formes de parois de chambres de combustion, etc. Nous proposons dans ce chapitre une démarche permettant d'aborder cette question méthodologique d'une manière différente de celles proposées jusqu'alors, et nous montrons que sa mise en œuvre dans des configurations radiatives académiques simples ne pose aucune difficulté pratique. Notre proposition consiste à travailler sur la formulation locale de l'équation de transfert radiatif afin de construire un modèle de sensibilité, c'est-à-dire de dériver une équation d'évolution pour la sensibilité, puis de construire les conditions aux limites sur cette grandeur. Cette pratique est courante dans diverses communautés [134, 135, 136, 137, 138, 139] et dans notre cas, l'essentiel des difficultés est reporté dans la dérivation des conditions aux limites. Nos réflexions concernent donc l'établissement des conditions aux limites du modèle de sensibilité en accord avec la déformation géométrique envisagée. L'équation d'évolution de la sensibilité est par contre triviale. La sensibilité obéit à la même équation de transfert radiatif que la luminance, ce

qui fait que lors de la résolution par la méthode de Monte Carlo, une grande partie de l'algorithme est déjà en place (on utilise les algorithmes décrits au chapitre 5). Mais les conditions aux limites impliquent des intégrales que nous proposons de traiter également par la méthode de Monte Carlo. Emergent alors des algorithmes originaux que nous décrivons en détail à la fin du présent chapitre. Par rapport au travail fondateur de M. Roger [140, 141], nous abandonnons donc l'idée que l'algorithme de calcul de la sensibilité soit rigoureusement identique à celui de la grandeur principale (nous acceptons donc des développements et des temps de calcul supplémentaires). Il semble par contre que de nombreuses difficultés de mise en œuvre s'évanouissent, notamment parmi celles identifiées et classifiées par J. De la Torre. [142].

7.1 Problématique du calcul de sensibilité à la déformation du domaine par la méthode de Monte Carlo et organisation du chapitre

Au cours des chapitres 5 et 6 nous avons mis à profit le fait que la méthode de Monte Carlo permette de calculer des sensibilités en parallèle de la grandeur principale. Nous nous sommes dans un premier temps concentrés sur les sensibilités dites *paramétriques*, dont les développements académiques sont suffisamment matures pour que leur mise en œuvre dans le photobioréacteur DiCoFluV soit directe. Nous avons laissé de côté les sensibilités dites *à la déformation du domaine* dont les sensibilités *géométriques* sont une sous-classe (voir les travaux de M. Roger et J. De la Torre. [141, 140, 142]). Pourtant, la question de l'optimisation des photobioréacteurs à éclairage interne est intimement liée aux problématiques de conception inverse qui apparaissent entre autres dès lors que l'on s'intéresse à la répartition des sources lumineuses dans le volume réactionnel, et ces problématiques d'optimisation sont bien géométriques. Elles sont notamment à l'origine de l'utilisation d'un arrangement de fibres optiques à éclairage latéral dans la conception du prototype DiCoFluV [7]. Au cours de cette thèse, lorsque nous avons abordé la question de l'optimisation de la géométrie du procédé (principalement au chapitre 6), nous ne disposions que de l'information sur la productivité (que l'on cherche à maximiser) pour chaque configuration géométrique testée (et pas des sensibilités géométriques). Bien sûr, cette information permettait déjà d'explorer un

espace de paramètres géométriques (par répétition des simulations) ce qui aurait pu nous conduire à l'identification d'une géométrie optimale du réacteur, c'est-à-dire l'identification d'un jeu de paramètres tels que les courbes de dépendance de la productivité à ces paramètres indiquent une dérivée première nulle (les sensibilités géométriques s'annulent)¹. La recherche d'un optimum revient souvent en effet à analyser les sensibilités plutôt que la productivité elle-même, et cela est apparu comme une évidence à la section 6.5 lorsque nous cherchions à maximiser la concentration en biomasse dans le réacteur, qui est un paramètre pour lequel nous disposions du calcul de sensibilité. Il s'agit ici de réfléchir à des procédures similaires, mais cette fois avec des paramètres géométriques.

A partir des préoccupations du Génie des Procédés, nous réouvrons donc la question méthodologique du calcul de sensibilités géométriques par la méthode de Monte Carlo. Notre étude fait suite à un travail mené depuis plusieurs années au sein de l'équipe LAPLACE/RAPSODEE en collaboration avec le PROMES, le laboratoire CRCA (Centre de Recherches sur la Cognition Animale, UMR 5169) et l'entreprise HPC-SA [21, 140, 142, 143, 144]. Une thèse est notamment en cours dans ce contexte, menée par Olivier Farges, portant sur l'optimisation des surfaces réfléchives composant les centrales solaires thermiques à concentration [145]. Une partie du travail méthodologique présenté dans ce mémoire a donné suite à une collaboration étroite avec O. Farges et le lecteur pourra trouver un reflet de ce travail commun dans l'annexe E.

Nous proposons dans ce chapitre une démarche différente de celle initiée par A. de Lataillade [143] et étendue de manière exhaustive par M. Roger [140]. Notre proposition se présente donc comme une alternative, mais d'une part elle n'a pas le caractère exhaustif de [140] et d'autre part elle n'a pour l'instant été testée que sur un ensemble limité de configurations académiques. Cependant, ces configurations ont été sélectionnées de façon à inclure les principales sources des difficultés de mise en œuvre des algorithmes de M. Roger pour l'étude d'un photobioréacteur réel : aucune des trois configurations détaillées dans ce chapitre ne serait abordable pratiquement par une stricte application de [140] (même si elles le sont en théorie). Une brève illustration de ces difficultés est donnée dans l'encart 1.

1. Dans le cadre de la section 6.5, nous faisons varier le rayon des fibres optiques du photobioréacteur DiCoFluV tout en gardant un espacement entre fibres proportionnel à leur rayon. Nous n'observons pas l'existence d'une géométrie optimale car nous ajustons la concentration C_x à sa valeur optimale pour chaque géométrie testée. Dans ce cas, il n'y avait pas de configuration géométrique optimale car plus les fibres étaient petites (et proches les unes des autres), plus la productivité était élevée. Par contre, si nous avions travaillé à C_x constant, nous aurions bien observé l'existence d'une géométrie optimale.

Encart 1 BRÈVE ILLUSTRATION DES DIFFICULTÉS DE MISE EN ŒUVRE D'UNE APPROCHE INTÉGRALE

Prenons le cas d'une lame 1d telle qu'étudiée au chapitre 4 et considérons l'estimation de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} (voir Eq. 7.2) par un algorithme de Monte Carlo réciproque similaire à celui présenté au chapitre 5. Cet algorithme correspond à l'échantillonnage d'une succession de positions d'interaction qui, partant de \mathbf{x}_0 , mènent à une sortie du volume réactionnel. Chaque position \mathbf{x}_{j+1} est échantillonnée à partir de la position précédente \mathbf{x}_j , au travers de la génération aléatoire d'une direction de propagation $\boldsymbol{\omega}_j$ et d'une longueur l_j de diffusion (voir Fig. 7.1). Partant d'une position \mathbf{x}_j , il faut évaluer le point d'intersection \mathbf{y}_{j+1} entre la demi-droite définie par $(\mathbf{x}_j, \boldsymbol{\omega}_j)$ et la géométrie du réacteur (voir chapitre 5), puis, la longueur l_j est générée et l'algorithme suit une branche différente suivant que l_j est supérieur ou inférieur à la distance $\|\mathbf{y}_{j+1}(E) - \mathbf{x}_j\|$. D'un point de vue formel, le domaine d'intégration de l_j est $[0, \|\mathbf{y}_{j+1} - \mathbf{x}_j\|]$ et il dépend donc de la position \mathbf{x}_j , de la direction $\boldsymbol{\omega}_j$ et de la géométrie du réacteur (voir Fig. 7.1). Dans le formalisme intégral utilisé jusqu'à présent, l'algorithme de Monte Carlo pour l'estimation d'une sensibilité est obtenu en dérivant la formulation intégrale de \mathcal{A} . Ici, le paramètre géométrique (l'épaisseur E de la lame) apparaît dans tous les domaines d'intégration des longueurs l_j . Ceci est problématique car premièrement, la dérivation des bornes d'intégration apporte une certaine complexification mathématique, deuxièmement, les domaines d'intégration sont tous différents (ils dépendent de la position d'interaction précédente) et enfin, nous sommes dans des situations de diffusions multiples correspondant à une infinité de ces domaines d'intégrations (formulation intégrale récursive). Ce nœud est bien identifié par les spécialistes de la méthode de Monte Carlo et cette problématique est soulevée dans [140, 142, 141]. Dans le cadre de la diffusion multiple, ces travaux proposent une approche permettant de réduire l'infinité des domaines d'intégration des l_j à un seul domaine. Pour cela, l'échantillonnage des couples $(\boldsymbol{\omega}_j, l_j)$ est remplacé par une intégration directe des positions d'interaction \mathbf{x}_j dans le volume réactionnel, c'est-à-dire un échantillonnage dans \mathbb{R}^3 [142]. Pour la situation mono-dimensionnelle de la figure 7.1, tous les domaines d'intégration des \mathbf{x}_j sont identiques et correspondent au volume réactionnel $\mathcal{V}(E)$. La sensibilité de \mathcal{A} à l'épaisseur de la lame pourrait donc être estimée par cette approche. Cependant, nous considérons aussi dans ce chapitre la configuration simplifiée de la figure 7.2.a qui représente un premier niveau de complexité associé à l'étude des sensibilités aux paramètres géométriques du photobioréacteur DiCoFluV : une seule fibre est placée au centre d'un réacteur infini de section carrée. Même dans cette situation simple, l'approche intégrale décrite ci-dessus ne permet plus de se ramener à un seul domaine d'intégration dans \mathbb{R}^3 . Le domaine $\mathcal{D}_{\mathbf{x}_j}$ auquel appartient la position d'interaction \mathbf{x}_j dépend à nouveau de la position \mathbf{x}_{j-1} précédente de par le blocage dû à la fibre \mathcal{F} qui rend inaccessible un certain sous-domaine de \mathcal{V} (voir Fig. 7.2.b).

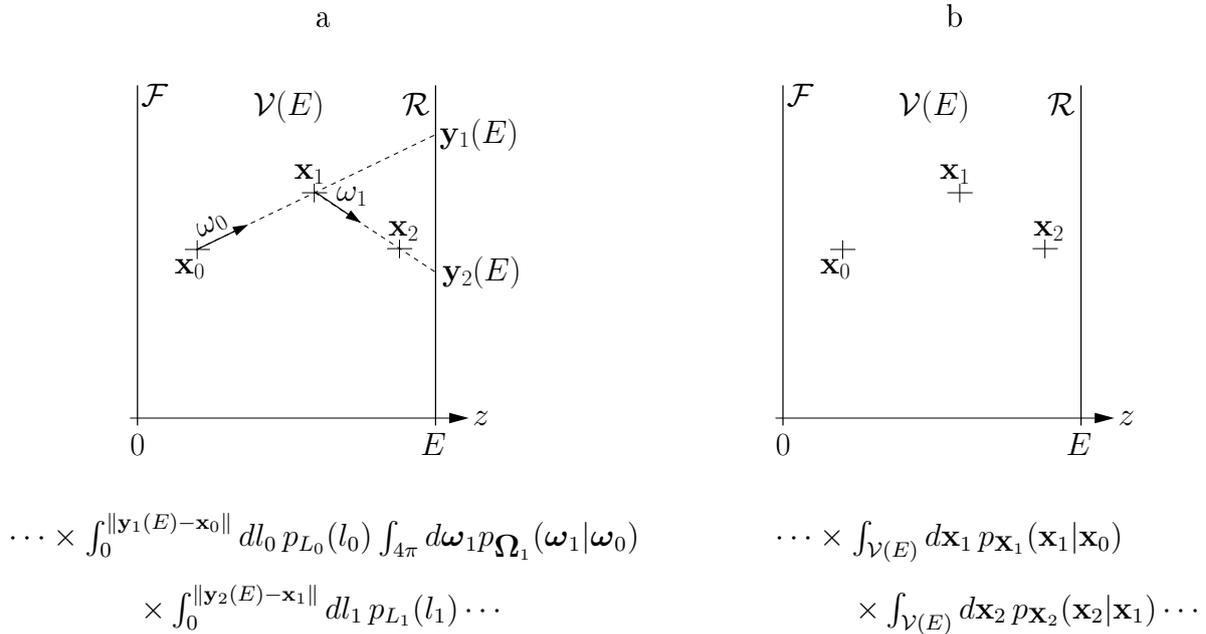


FIGURE 7.1: Echantillonnage des positions d'interaction successives d'un chemin de diffusion multiple dans une configuration mono-dimensionnelle (voir encart 1). Le paramètre géométrique est l'épaisseur E de la lame. a : Procédure d'échantillonnage du chapitre 5 et extrait de la formulation intégrale correspondante (les tests d'intersection sont reportés dans les bornes d'intégration). b : Echantillonnage des positions d'interaction directement dans le volume réactionnel \mathcal{V} grâce à la construction de la densité de probabilité $p_{\mathbf{x}_j}(\mathbf{x}_j | \mathbf{x}_{j-1})$.

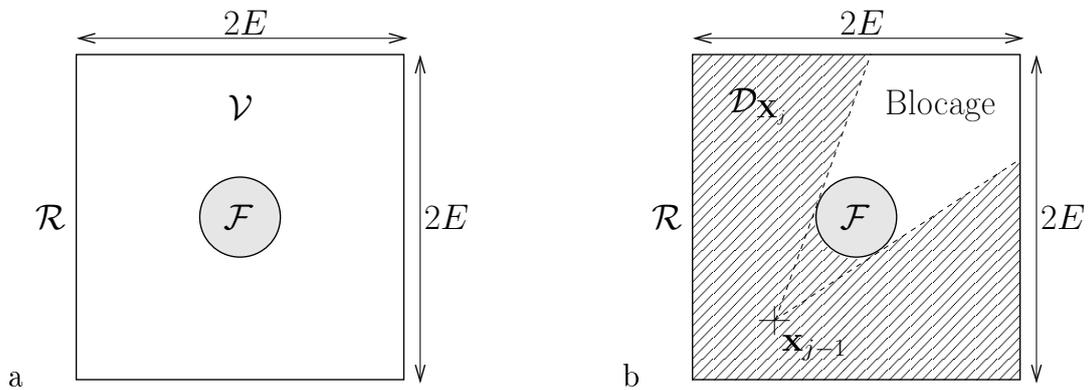


FIGURE 7.2: a : Configuration bidimensionnelle représentative du photobioréacteur Di-CoFluV : une fibre optique \mathcal{F} est placée dans un réacteur \mathcal{R} de section carrée de côté $2E$ (longueur infinie). Le volume réactionnel \mathcal{V} occupe l'espace entre la fibre et \mathcal{R} . b. Représentation du sous-domaine $\mathcal{D}_{\mathbf{x}_j}$ de \mathcal{V} auquel appartient la position d'interaction \mathbf{x}_j (voir encart 1).

Dans tous les raisonnements de l'encart 1, le point de départ est une formulation intégrale de \mathcal{A} . Dans toute la suite de ce chapitre, nous explorons une approche différente qui consiste à travailler en premier lieu sur la formulation locale de l'équation de transfert radiatif afin de construire un modèle de sensibilité (voir Sec. 7.2). Bien que l'utilisation des modèles de sensibilité soit une pratique courante dans de nombreux domaines, leur application au transfert radiatif et leur résolution par la méthode de Monte Carlo est encore exploratoire [134, 135, 136, 137, 138, 139]. Ce chapitre est une discussion méthodologique qui a pour but de clarifier le principe de cette méthode, ses avantages et ses limites, en se concentrant sur des configurations radiatives simples, et en ayant en tête l'idée que la méthode utilisée pour la résolution numérique du modèle de sensibilité sera au final la méthode de Monte Carlo (ce qui signifiera un retour à une formulation intégrale). Nous verrons que la complexité de l'expression des conditions aux limites d'un modèle de sensibilité dépend du type de conditions aux limites radiatives (celles portant sur la luminance), de la géométrie de la configuration radiative, ainsi que de la nature de la déformation étudiée. Afin de rester le plus simple possible, nous nous concentrons dans ce chapitre sur le cas particulier des parois planes non-émettrices soumises à une translation colinéaire à leur normale. La section 7.3.1 s'attache aux parois non-réfléchissantes et la section 7.3.2 traite des phénomènes de réflexion. Une fois le modèle de sensibilité posé (équation et conditions aux limites), il sera résolu par la méthode de Monte Carlo à la section 7.4. L'estimation d'une sensibilité géométrique $\partial_\pi \mathcal{A}$ par cette méthode passe alors par l'échantillonnage d'un ensemble de chemins optiques spécifiques, qui sont différents de ceux utilisés pour l'estimation de \mathcal{A} . Contrairement aux sensibilités paramétriques étudiées au chapitre 5, nous perdons ici l'avantage d'un échantillonnage strictement commun à l'estimation de la grandeur et à celle de sa sensibilité. Cependant, à la section 7.4.1 cette approche nous permettra d'obtenir la sensibilité de \mathcal{A} au paramètre géométrique E de la configuration Fig. 7.2.a (largeur de la section carrée) en l'absence de réflectivité à la paroi \mathcal{R} , ce qui était pratiquement impossible à atteindre par une approche intégrale. Dans les sections 7.4.2 et 7.4.3, nous nous concentrerons sur la gestion des réflectivités, mais en nous restreignant cette fois à des géométries plan-parallèle. L'ensemble de ces discussions se situe dans un cadre académique où les difficultés sont abordées au cas par cas. Une prise de recul correspondant à la formalisation d'un ensemble de problèmes plus large, incluant notamment les effets liés à la courbure des parois et à leur émission, est amorcée dans l'annexe E.

7.2 Principe de la méthode proposée

Etudions pour commencer un problème mésoscopique de transfert radiatif quelconque dont la géométrie est définie par un paramètre π . Nous considérons dans la suite de ce chapitre des propriétés radiatives grises et la solution de ce problème est la luminance $\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$, où π est introduit en tant que variable afin de signifier la dépendance du champ de luminance à la géométrie de la configuration. Ce problème est défini par l'équation de transfert radiatif

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = -k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.1)$$

et ses conditions aux limites. L'observable étudiée est la vitesse spécifique locale d'absorption des photons :

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}; \pi) = \sigma_a \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \quad (7.2)$$

où σ_a est la section efficace d'absorption. Le modèle de sensibilité associé à ce problème porte sur le descripteur mésoscopique $s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$, qui est la dérivée de la luminance par rapport au paramètre π . Dans le champ, les variables \mathbf{x} , $\boldsymbol{\omega}$ et π sont indépendantes et on définit s_{π} comme :

$$s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \partial_3 \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \quad (7.3)$$

où $\partial_3 \hat{L}$ est la dérivée de la luminance par rapport à sa troisième variable. La sensibilité $\partial_{\pi} \mathcal{A}$, c'est-à-dire la dérivée de \mathcal{A} par rapport au paramètre géométrique π , s'écrit :

$$\partial_{\pi} \mathcal{A}(\mathbf{x}; \pi) = \sigma_a \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \quad (7.4)$$

Dans le chapitre 5, nous calculions \mathcal{A} à partir de la résolution du problème de transfert radiatif sur la luminance, c'est-à-dire à partir de l'équation 7.2. Dans le présent chapitre, nous suivons la même démarche mais \mathcal{A} est remplacé par sa sensibilité $\partial_{\pi} \mathcal{A}$ et la luminance est remplacée par sa sensibilité s_{π} (Eq. 7.4). Nous devons donc disposer de l'équation d'évolution de $s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$, qui est obtenue en dérivant l'équation de transfert radiatif portant sur la luminance $\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ (Eq. 7.1) par rapport au paramètre π . Etant donné que ce paramètre définit la géométrie du problème, il n'apparaît dans aucun des opérateurs de l'équation de transfert radiatif (seule la luminance dépend de π) et on obtient facilement l'équation d'évolution :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = -k_{ext} s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.5)$$

L'équation sur s_π est la même équation de transfert radiatif que celle sur \hat{L} , ce qui signifie que s_π et \hat{L} obéissent à la même physique du transport linéaire.

D'un point de vue numérique, cela implique que le problème en s_π peut être résolu par un algorithme de Monte Carlo de type "transfert radiatif", exactement comme cela a été présenté au chapitre 5 pour le problème en \hat{L} . Mais en premier lieu, il faut complètement poser le modèle de sensibilité : nous disposons déjà de son équation d'évolution et il reste à dériver ses conditions aux limites.

L'obtention des conditions aux limites du modèle de sensibilité constitue une difficulté mathématique car il faut pour cela dériver par rapport à π les conditions aux limites du problème en \hat{L} , qui fixent la valeur de $\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ pour les positions $\mathbf{x} \in \mathcal{S}(\pi)$, où $\mathcal{S}(\pi)$ est la frontière du système, et pour les directions $\boldsymbol{\omega} \in h(\mathbf{x} \in \mathcal{S}(\pi))$, où h est l'hémisphère entrant à la position $\mathbf{x} \in \mathcal{S}(\pi)$ considérée. La frontière \mathcal{S} et l'hémisphère h (défini par la normale de \mathcal{S} en \mathbf{x}) varient en fonction de la déformation géométrique paramétrée par π . Lorsque l'on dérive les conditions aux limites par rapport à π , des termes en $\mathbf{grad}_{\mathbf{x}}\hat{L}$ et $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}}\hat{L}$ sont donc susceptibles d'apparaître, en plus du terme $s_\pi = \partial_3 \hat{L}$. De plus, nous verrons que l'expression de ces termes fait en général intervenir la luminance elle-même et le modèle de sensibilité sur s_π est ainsi potentiellement couplé aux modèles de \hat{L} , $\mathbf{grad}_{\mathbf{x}}\hat{L}$ et $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}}\hat{L}$, à la frontière du système. Notre prise de recul concernant l'implication de ces couplages pour des configurations et des déformations quelconques est à l'heure actuelle limitée. Cependant, dans toutes les situations testées jusqu'à présent, le nombre de ces couplages est fini, en d'autres termes, la résolution du modèle de s_π ne nécessite de résoudre qu'un nombre limité de modèles couplés.

Dans la suite des discussions, nous nous plaçons dans une situation permettant de supprimer le couplage au modèle de $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}}\hat{L}$ afin de tester le plus simplement possible la mise en œuvre de la méthode proposée, c'est-à-dire de construire complètement le modèle de sensibilité sur s_π et de le résoudre par la méthode de Monte Carlo. Pour cela, nous considérons uniquement les parois planes déformées par une translation colinéaire à leur normale. Ainsi, l'hémisphère h est indépendant du paramètre π et de la position sur la surface : le couplage au modèle de $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}}\hat{L}$ disparaît.

Encart 2 REMARQUE SUR L'APPARITION DE COUPLAGES DANS LE CHAMP

Le fait que les équations d'évolution soient identiques pour la luminance et sa sensibilité s_π a trait à la nature du paramètre π . Imaginons que l'on considère un paramètre non-géométrique, par exemple la densité en micro-organismes C_x . La sensibilité à ce paramètre a été étudiée par l'approche intégrale au chapitre 5. L'équation d'évolution de s_{C_x} est dif-

férente de l'équation d'évolution de \hat{L} puisque $k_{ext} = C_x \sigma_{ext}$, où σ_{ext} est la section efficace d'extinction. Lorsque l'on dérive l'équation Eq. 7.1 par rapport à C_x , on obtient :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \text{grad}_{\mathbf{x}} s_{C_x}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = -k_{ext} s_{C_x}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' s_{C_x}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') + \mathcal{C}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \quad (7.6)$$

où $\mathcal{C}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est un terme de couplage dans le champ avec le modèle de \hat{L} :

$$\mathcal{C}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = -\sigma_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \alpha_s \sigma_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.7)$$

Contrairement à un modèle de sensibilité géométrique, le couplage au modèle de \hat{L} apparaît ici dans le champ et non aux limites. Cette remarque est encore valable pour les modèles de sensibilité construits à partir de l'approximation P1 (voir Chap. 4).

Configurations radiatives étudiées. L'étude de la translation d'une paroi plane selon une direction colinéaire à sa normale est illustrée dans la suite de ce chapitre sur les trois configurations de la figure 7.3, qui correspondent à trois niveaux de complexité successifs. La première configuration Fig. 7.3.a est monodimensionnelle. Il s'agit d'une lame dont la paroi \mathcal{F} est fixe et émet un rayonnement lambertien homogène. On étudie une translation d'amplitude π de la paroi $\mathcal{R}(\pi)$ autour de sa position E , c'est-à-dire autour de $\pi = 0$. La seconde configuration Fig. 7.3.b est une version bidimensionnelle de cette première configuration. La paroi \mathcal{F} émet ici un rayonnement lambertien inhomogène :

$$\hat{L}^0(y) = H[-a < y \leq 0] (1 + y/a) + H[0 < y < a] (1 - y/a) \quad (7.8)$$

où a est un paramètre libre et $H[\]$ est la fonction échelon qui prend la valeur 1 si la condition entre parenthèses est satisfaite et 0 sinon. Enfin, la configuration Fig. 7.3.c est une simplification bidimensionnelle représentative d'un premier niveau de complexité associé à l'étude du photobioréacteur DiCoFluV. La paroi \mathcal{F} (une fibre) est fixe et émet un rayonnement lambertien homogène. On étudie une translation d'amplitude π des surfaces composant la paroi $\mathcal{R}(\pi)$; en d'autres termes, on étudie une variation d'amplitude π de la côte $2(E + \pi)$ autour de $\pi = 0$.

Dans la suite des discussions, on adoptera souvent la notation réduite de la figure 7.3, dans laquelle la paroi non-déformée est notée sans dépendance, soit $\mathcal{R} \equiv \mathcal{R}(\pi = 0)$.

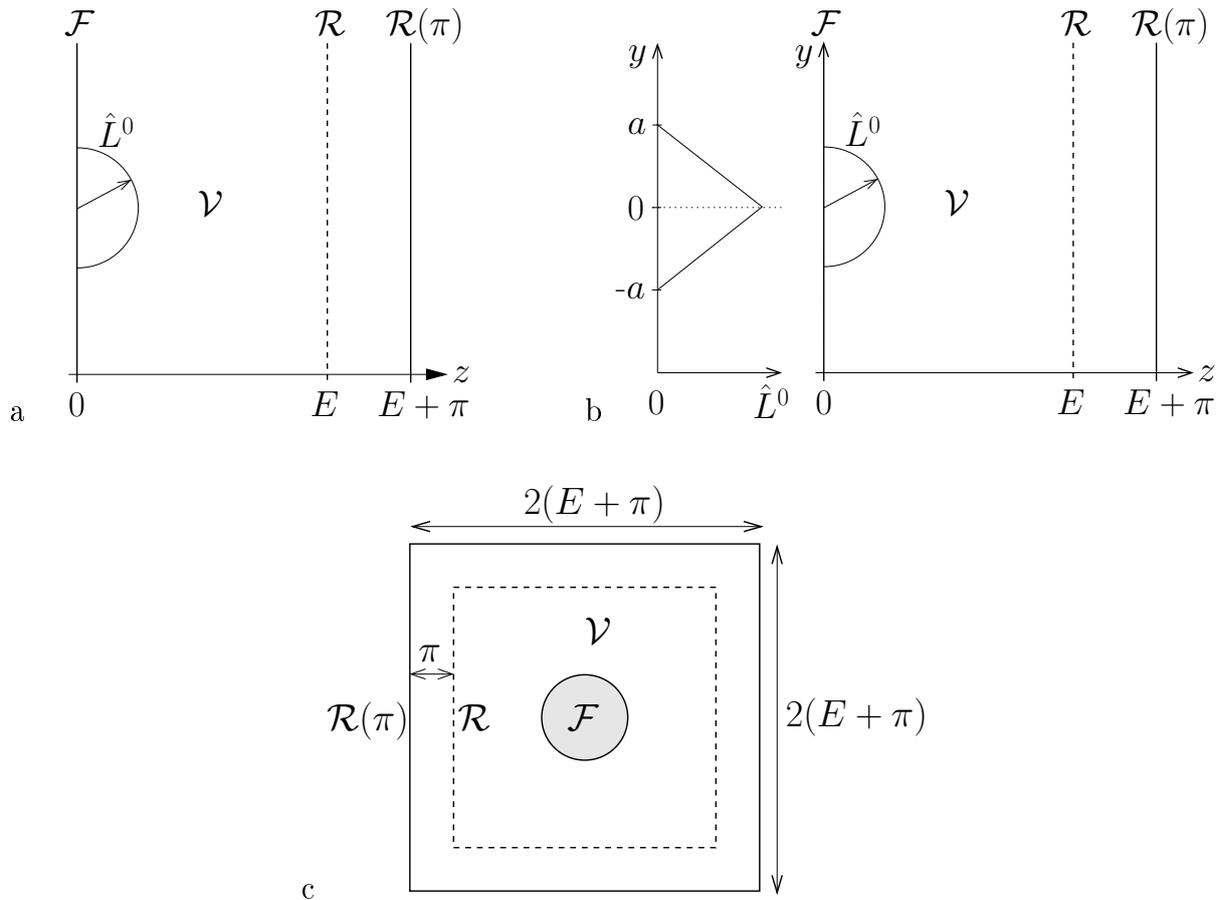


FIGURE 7.3: Déformation géométrique des configurations radiatives étudiées. a : Configuration monodimensionnelle. b : Configuration bidimensionnelle à géométrie 1d. c : Configuration bidimensionnelle représentative de l'étude du photobioréacteur DiCoFluV (voir Fig. 7.2).

Proposition d'une procédure pour l'écriture des conditions aux limites du modèle de sensibilité. Avant d'aborder la paroi déformée (la paroi \mathcal{R}), notons que dans les trois configurations étudiées, l'obtention des conditions aux limites à la paroi \mathcal{F} est triviale. Les conditions aux limites dans le problème en \hat{L} sont :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \hat{L}^0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.9)$$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{F}}$ est la normale entrante à la position \mathbf{x} de \mathcal{F} . Ni la géométrie de la paroi \mathcal{F} , ni les phénomènes physiques qui y ont lieu (ici une émission) ne dépendent du paramètre π . La dérivation par rapport à π donne donc des conditions aux limites nulles pour le modèle de

sensibilité :

$$s_\pi(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.10)$$

La difficulté se résume donc en l'évaluation des conditions aux limites à la paroi $\mathcal{R}(\pi)$ pour la valeur particulière du paramètre $\pi = 0$. Il s'agit d'obtenir l'expression de $s_\pi(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi = 0)$, où $\mathbf{x} \in \mathcal{R}(\pi = 0)$ et $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$, $\mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ étant la normale entrante à la position \mathbf{x} de \mathcal{R} . On introduit pour cela le repère fixe (indépendant de π), présenté à la figure 7.4.a, qui est associé à la paroi \mathcal{R} et dont la définition est commune à toutes les configurations étudiées. Il comporte un axe colinéaire à la normale $\mathbf{n}^{\mathcal{R}}$, deux axes appartenant à \mathcal{R} , et son origine est la position $\mathbf{x} \in \mathcal{R}$ étudiée. Une position \mathbf{r} au sein du volume réactionnel est définie par ses trois coordonnées $r_{\parallel,1}$, $r_{\parallel,2}$ et r_\perp :

$$\mathbf{r} = \begin{cases} r_{\parallel,1} \\ r_{\parallel,2} \\ r_\perp \end{cases} \quad (7.11)$$

On définit la projection \mathbf{r}_\parallel du vecteur \mathbf{r} sur la surface \mathcal{R}

$$\mathbf{r}_\parallel = \begin{cases} r_{\parallel,1} \\ r_{\parallel,2} \end{cases} \quad (7.12)$$

de sorte que \mathbf{r} soit repéré par l'abscisse r_\perp et le vecteur \mathbf{r}_\parallel . La luminance s'écrit ainsi $\hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ et on remarque que la numérotation des variables change pour l'expression de s_π qui s'écrit maintenant $s_\pi = \partial_4 \hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi)$.

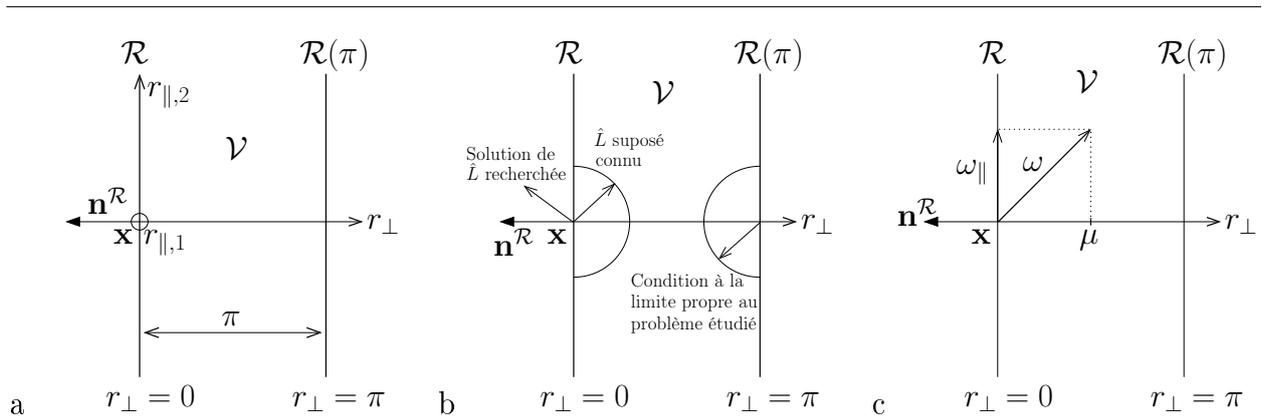


FIGURE 7.4: Sous-système associé à la paroi. L'étude de ce système est utilisée pour la détermination des conditions aux limites du modèle de sensibilité. a : Repère. b : Configuration radiative. c : Projection des directions.

Nous nous concentrons maintenant sur l'étude du sous-système correspondant à la lame virtuelle d'épaisseur $\pi > 0$ de la figure 7.4.b. L'équation de transfert radiatif dans cette lame est identique à l'équation 7.1 correspondant au reste du système (puisque cette lame virtuelle est une partie du volume réactionnel, voir 7.3.a). On réécrit cette équation en décomposant le terme de transport sur les composantes parallèles et perpendiculaires à la surface \mathcal{R} :

$$\begin{aligned} \mu \partial_1 \hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \boldsymbol{\omega}_\parallel \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \\ -k_{ext} \hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \end{aligned} \quad (7.13)$$

avec $\mu = -\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ et où $\boldsymbol{\omega}_\parallel$ est la projection de $\boldsymbol{\omega}$ sur la surface \mathcal{R} (voir Fig. 7.4.c). Les conditions aux limites pour le sous-système de la figure 7.4.b sont :

- En $r_\perp = 0$:

$$\hat{L}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$$

Il s'agit de la solution du problème en \hat{L} en un point particulier du volume réactionnel.

- En $r_\perp = \pi$:

$$\hat{L}(\pi, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$$

Cette condition à la limite dépend du problème traité, deux cas particuliers seront abordés dans les sections suivantes : la luminance entrante sera nulle à la section 7.3.1 (paroi absorbante) et une condition de réflexion spéculaire sera introduite à la section 7.3.2.

L'obtention des conditions aux limites de $s_\pi(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, 0)$ passera dans un premier temps par l'expression de $\hat{L}(r_\perp, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$. En fonction des conditions aux limites en $r_\perp = \pi$ (c'est-à-dire les conditions aux limites du problème en \hat{L} à la paroi $\mathcal{R}(\pi)$), l'expression de $\hat{L}(r_\perp, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est plus ou moins difficile à obtenir. Cependant, quelle que soit la situation, nous suivons dans ce chapitre une procédure calculatoire générale, qui sera étendue à une famille de problèmes plus large dans l'annexe E. Notons avant tout que l'obtention de la solution explicite générale de $\hat{L}(r_\perp, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ n'est pas nécessaire, puisque au final, nous ne considérons que la limite $\pi \rightarrow 0$. Dans ces conditions, seuls les termes $\hat{L}^{(0)}(r_\perp, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ d'ordre 0 et $\hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ d'ordre 1 (dans un développement en ordre de diffusion) apportent une contribution à la condition aux limites :

$$s_\pi(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, 0) = \partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; 0) + \partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; 0) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.14)$$

La procédure générale proposée consiste donc à suivre les étapes suivantes :

- (a) Exprimer $\hat{L}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$ en ne gardant que le terme $\hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ d'ordre 0 et le terme $\hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ d'ordre 1 qui sont les seuls termes qui contribueront à la condition aux limites de $s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, 0)$.
- (b) Exprimer $s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, 0)$ comme la limite en $\pi \rightarrow 0$ de la somme $\partial_4 \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ prise en $r_{\perp} = 0$:

$$\begin{aligned} s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, 0) &= \partial_4 \hat{L}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; 0) = \lim_{\pi \rightarrow 0} \left[\partial_4 \hat{L}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] \quad \text{pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \\ &= \lim_{\pi \rightarrow 0} \left[\partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] \end{aligned}$$

De plus, sachant que seule la limite $r_{\perp} \rightarrow 0$ est utilisée à l'étape (b), la solution $\hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est exprimée comme son développement en série de Taylor autour de $r_{\perp} = 0$. On simplifie ainsi les calculs car seuls les premiers ordres du développement ont besoin d'être explicités, les ordres supérieurs apportant une contribution nulle à s_{π} lorsque $r_{\perp} \rightarrow 0$.

En pratique, cette procédure se traduira à la section 7.3 par les étapes qui sont détaillées dans le cadre ci-dessous.

PROCÉDURE POUR L'ÉCRITURE DES CONDITIONS AUX LIMITES DU MODÈLE DE SENSIBILITÉ :

- (1) Expression de la luminance d'ordre 0 $\hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$.
- (2) Expression de la luminance d'ordre 1 $\hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$.
- (3) Dérivation par rapport à π de $\hat{L}^{(0)}$ et $\hat{L}^{(1)}$ et expression des limites $\lim_{\pi \rightarrow 0} \left[\partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right]$ et $\lim_{\pi \rightarrow 0} \left[\partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right]$.
- (4) Expression de la condition aux limites comme

$$s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}, 0) = \lim_{\pi \rightarrow 0} \left[\partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] + \lim_{\pi \rightarrow 0} \left[\partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{0}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right]$$

7.3 Dérivation des conditions aux limites pour une paroi plane non-émettrice soumise à une translation colinéaire à sa normale

Les dérivations mathématiques menant à l'obtention des conditions aux limites du modèle de sensibilité à la paroi \mathcal{R} sont ici données. La lecture de cette section n'est pas nécessaire à la suite des discussions car ces résultats seront rappelés ultérieurement, dans le cadre de la résolution du modèle de sensibilité par la méthode de Monte Carlo à la section 7.4. On remarque tout de même qu'une interprétation physique des conditions aux limites obtenues est donnée à la fin du paragraphe 7.3.1 (voir Fig. 7.6 et les discussions associées) pour les parois non-réfléchissantes et à la fin du paragraphe 7.3.2 pour les parois réfléchissantes (voir Fig. 7.9 et les discussions associées).

7.3.1 Parois non-réfléchissantes : couplage avec le modèle de la luminance

La paroi $\mathcal{R}(\pi)$ est ici non-émettrice et non-réfléchissante. Les conditions aux limites à cette paroi dans le problème en \hat{L} sont :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}(\pi), \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.15)$$

Les conditions aux limites en sensibilité à la paroi \mathcal{R} sont obtenues en suivant la procédure présentée à la section 7.2. Pour cela, nous nous plaçons dans la configuration du sous-système de la figure 7.4, avec les conditions aux limites suivantes sur $\hat{L}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$:

- En $r_{\perp} = 0$:

$$\hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0 \text{ est la solution du problème en } \hat{L}. \quad (7.16)$$

- En $r_{\perp} = \pi$:

$$\hat{L}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.17)$$

Nous suivons à partir de maintenant la procédure de la section 7.2, page 269.

(1) **Expression de la luminance d'ordre 0** $\hat{L}^{(0)}$. Les conditions aux limites sur $\hat{L}^{(0)}$ sont :

- En $r_{\perp} = 0$:

$$\hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0 \text{ est la solution du problème en } \hat{L}. \quad (7.18)$$

- En $r_{\perp} = \pi$:

$$\hat{L}^{(0)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.19)$$

$\hat{L}^{(0)}$ correspond à la solution triviale (voir Chap. 4) :

$$\hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \mu < 0 \quad (7.20)$$

$$\hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel} - \boldsymbol{\omega}_{\parallel} r_{\perp}/\mu, \boldsymbol{\omega}; \pi) \exp[-k_{ext} r_{\perp}/\mu] \text{ pour } \mu > 0 \quad (7.21)$$

où $\mu = -\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ et $\boldsymbol{\omega}_{\parallel}$ est la projection de $\boldsymbol{\omega}$ sur la surface $\mathcal{R}(\pi = 0)$ (voir Fig. 7.4.c). Cette solution est facilement obtenue par la construction géométrique donnée à la figure 7.5.

(2) **Expression de la luminance d'ordre 1** $\hat{L}^{(1)}$. $\hat{L}^{(1)}$ obéit à l'équation (voir Chap. 4) :

$$\begin{aligned} \mu \partial_1 \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \\ -k_{ext} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \end{aligned} \quad (7.22)$$

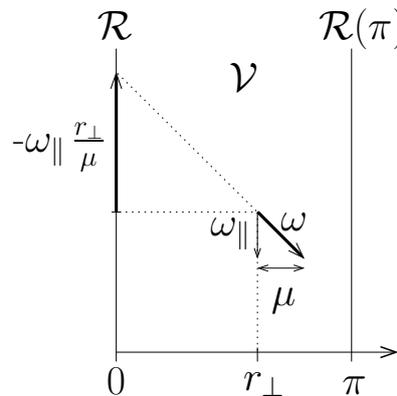


FIGURE 7.5: Construction géométrique illustrant la solution de la luminance balistique.

où toutes les notations sont définies à la section précédente. Le développement de Taylor de $\hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ autour de $r_{\perp} = 0$ s'écrit :

$$\hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp} + 1/2 \partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp}^2 + \dots \quad (7.23)$$

Le développement de Taylor de $\partial_1 \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est :

$$\partial_1 \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp} + \dots \quad (7.24)$$

En substituant ces développements dans l'équation de transfert radiatif Eq. 7.22, il vient :

$$\begin{aligned} \mu \left[\partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp} + \dots \right] + \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \\ -k_{ext} \left[\hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp} + \dots \right] \\ + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \end{aligned} \quad (7.25)$$

L'expression de $\partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est obtenue en identifiant les termes d'ordre 0 en r_{\perp} :

$$\begin{aligned} \partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = & -k_{ext}/\mu \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \\ & -1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \\ & + \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \end{aligned} \quad (7.26)$$

En injectant cette expression dans le développement de Taylor de $\hat{L}^{(1)}$, on obtient la solution générale de l'équation de transfert radiatif Eq. 7.22 :

$$\begin{aligned} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = & \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \\ & + \left[-k_{ext}/\mu \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) - 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right. \\ & \left. + \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] r_{\perp} \\ & + [\dots] r_{\perp}^2 + \dots \end{aligned} \quad (7.27)$$

Cette expression générale doit maintenant satisfaire aux conditions aux limites sur $\hat{L}^{(1)}$, qui sont ici :

- En $r_{\perp} = 0$:

$$\hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0 \quad (\equiv \mu > 0) \quad (7.28)$$

- En $r_{\perp} = \pi$:

$$\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (\equiv \mu < 0) \quad (7.29)$$

Seule la solution de $\hat{L}^{(1)}$ pour $\mu < 0$ est nécessaire à l'obtention de la condition aux limites sur s_{π} . En injectant l'équation 7.27 dans la condition à la limite $\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0$ pour $\mu < 0$, il vient :

$$\begin{aligned} & \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \\ & + \left[-k_{ext}/\mu \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) - 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right. \\ & \quad \left. + \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi + [\dots] \pi^2 + \dots = 0 \end{aligned} \quad (7.30)$$

\Leftrightarrow

$$\begin{aligned} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \\ & \times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \right. \\ & \quad \left. + [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \quad , \text{ pour } \mu < 0 \end{aligned} \quad (7.31)$$

Cette expression permet d'obtenir le développement de Taylor de la solution du problème pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \\ & \times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \right. \\ & \quad \left. + [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\ & + \partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp} + 1/2 \partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp}^2 + \dots \end{aligned} \quad (7.32)$$

(3) Dérivation par rapport à π de $\hat{L}^{(0)}$ et $\hat{L}^{(1)}$ et prise de la limite $\pi \rightarrow 0$. Dans la situation étudiée $\partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) = 0$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$ (*i.e* $\mu < 0$). L'expression de

$\partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est obtenue en dérivant l'Eq. 7.32 :

$$\begin{aligned}
\partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \\
&\times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_\parallel \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \right. \\
&\quad + [\dots] \pi + \dots \\
&\quad + \partial_\pi \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_\parallel \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \\
&\quad \left. + \partial_\pi [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\
&+ \frac{k_{ext}/\mu}{(1 - k_{ext}/\mu \pi)^2} \\
&\times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_\parallel \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \right. \\
&\quad \left. + [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\
&+ \partial_4 \left[\partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_\perp + 1/2 \partial_4 \left[\partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_\perp^2 + \dots
\end{aligned} \tag{7.33}$$

A la limite $r_\perp \rightarrow 0$, $\pi \rightarrow 0$ aucun des termes du développement ci-dessus ne diverge et il vient, pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned}
\partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; 0) &= -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad + 1/\mu \boldsymbol{\omega}_\parallel \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; 0)
\end{aligned} \tag{7.34}$$

De la même manière que l'on a obtenu $\partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ en dérivant l'expression de $\hat{L}^{(1)}$, on a :

$$\begin{aligned}
\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \left\{ \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} [\dots] \pi + \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\
&\quad + \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \left[\partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_\perp \\
&\quad + 1/2 \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \left[\partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_\perp^2 + \dots
\end{aligned} \tag{7.35}$$

A la limite $r_\perp \rightarrow 0$, $\pi \rightarrow 0$:

$$\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; 0) = \mathbf{0} \tag{7.36}$$

et donc

$$\partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) = -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.37)$$

En remplaçant $\hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0)$ par son expression (voir les conditions aux limites sur $\hat{L}^{(0)}$), on obtient pour $\mu < 0$:

$$\partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) = -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.38)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$.

(4) Expression de la condition aux limites. La position ($r_{\perp} = 0, \mathbf{r}_{\parallel} = \mathbf{0}$) du système de coordonnées utilisé correspond à la position \mathbf{x} de la paroi \mathcal{R} (voir Fig. 7.4). En se plaçant en $\mathbf{r}_{\parallel} = \mathbf{0}$ et en remplaçant μ par $-\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ dans l'expression de $\partial_4 \hat{L}^{(1)}$ Eq. 7.38, on obtient la condition à la limite du modèle de sensibilité :

$$s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \partial_4 \hat{L}^{(0)} + \partial_4 \hat{L}^{(1)} = \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.39)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$ et où $k_d = \alpha_s k_{ext}$ est le coefficient de diffusion.

Les dérivations mathématiques précédentes démontrent que les conditions aux limites du modèle de sensibilité sur une paroi plane non-émettrice non-réfléchissante soumise à une translation colinéaire à sa normale s'écrivent selon l'équation 7.39. Nous tentons maintenant, à la figure 7.6, de construire un intuitif autour de l'écriture de ces conditions aux limites. Nous avons vu que leur construction passe par l'étude de la lame mince de la figure 7.4 (qui est rappelée à la figure 7.6), pour laquelle la limite $\pi \rightarrow 0$ est finalement considérée. Les images de la diffusion simple sont alors exactes. De plus, nous ne nous intéressons qu'à l'expression de la luminance pour les directions $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$. La paroi en $\mathcal{R}(\pi)$ étant purement absorbante, seul la rétrodiffusion des photons incidents (qui correspondent à toutes les directions $\boldsymbol{\omega}'$) est à prendre en compte. Cette image permet de visualiser l'origine de l'intégration sur l'hémisphère h^- qui intervient dans l'équation 7.39. Cependant, elle ne permet pas d'interpréter précisément la signification du préfacteur $1/\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$: bien que $\pi/\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ soit la longueur de traversée de la lame pour une direction de propagation $\boldsymbol{\omega}$ (qui une fois multipliée par le coefficient de diffusion k_d renseigne sur l'occurrence des événements de diffusion simple), il est ici impossible de justifier un préfacteur $1/\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ plutôt que $1/\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$.

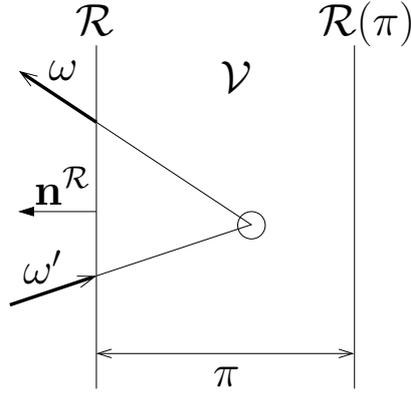


FIGURE 7.6: Représentation des chemins optiques du sous-système de la figure 7.4 menant à l'expression de la condition aux limites sur s_π pour une paroi non-émettrice et non-réfléchissante. Une diffusion dans le volume est notée \odot . Seuls les phénomènes de diffusion simple arrière apportent une contribution.

7.3.2 Parois réfléchissantes : couplage avec le modèle du gradient spatial

Nous donnons dans cette section les dérivations mathématiques qui mènent à l'expression des conditions aux limites du modèle de sensibilité dans le cas d'une paroi plane non-émettrice de réflectivité $\rho^{\mathcal{R}}$ soumise à une translation colinéaire à sa normale. Une interprétation physique des conditions aux limites ainsi obtenues est donnée dans le dernier paragraphe de la présente section en référence à la figure 7.9.

La paroi $\mathcal{R}(\pi)$ est toujours non-émettrice mais elle réfléchit maintenant le rayonnement de manière spéculaire. Les conditions aux limites à cette paroi dans le problème en \hat{L} sont :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}(\pi), \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.40)$$

où $-\boldsymbol{\omega}^{spec}$ est la direction de réflexion spéculaire associée à $\boldsymbol{\omega}$ (voir Fig. 7.7). Les conditions aux limites à la paroi \mathcal{R} sont obtenues en suivant la procédure présentée à la section 7.2. Nous nous plaçons dans la configuration du sous-système de la figure 7.4, avec les conditions aux limites suivantes sur $\hat{L}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi)$:

- En $r_\perp = 0$:

$$\hat{L}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0 \text{ est la solution du problème en } \hat{L}. \quad (7.41)$$

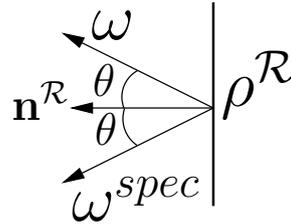


FIGURE 7.7: Définition de la direction spéculaire ω^{spec} associée à la direction ω .

- En $r_{\perp} = \pi$:

$$\hat{L}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\omega^{spec}; \pi) \text{ pour } \omega \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.42)$$

La dépendance à π de la condition à la limite en $r_{\perp} = \pi$ passe par la position de la paroi $\mathcal{R}(\pi)$ et par la solution de la luminance incidente $\hat{L}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\omega^{spec}; \pi)$.

Nous suivons à partir de maintenant la procédure de la section 7.2 (voir page 269) pour l'écriture des conditions aux limites du modèle de sensibilité.

(1) Expression de la luminance d'ordre 0 $\hat{L}^{(0)}$. Les conditions aux limites sur $\hat{L}^{(0)}$ sont :

- En $r_{\perp} = 0$:

$$\hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega; \pi) \text{ pour } \omega \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0 \text{ est la solution du problème en } \hat{L}. \quad (7.43)$$

- En $r_{\perp} = \pi$:

$$\hat{L}^{(0)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}^{(0)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\omega^{spec}; \pi) \text{ pour } \omega \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.44)$$

$\hat{L}^{(0)}$ correspond à la solution triviale (voir Chap. 4) :

Pour $\mu > 0$

$$\hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega; \pi) = \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel} - \omega_{\parallel} r_{\perp}/\mu, \omega; \pi) \exp[-k_{ext} r_{\perp}/\mu] \quad (7.45)$$

Pour $\mu < 0$

$$\hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel} + \omega_{\parallel} (2\pi - r_{\perp})/\mu, -\omega^{spec}; \pi) \exp[+k_{ext} (2\pi - r_{\perp})/\mu] \quad (7.46)$$

où on rappelle que $\mu = -\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ et $\boldsymbol{\omega}_{\parallel}$ est la projection de $\boldsymbol{\omega}$ sur la surface $\mathcal{R}(\pi = 0)$ (voir Fig. 7.4). On souligne que $\mu < 0$ dans l'équation 7.46. Cette solution est facilement obtenue par la construction géométrique de la Fig. 7.5 pour $\mu > 0$ et par la construction géométrique Fig. 7.8 pour $\mu < 0$.

(2) **Expression de la luminance d'ordre 1 $\hat{L}^{(1)}$.** Seules les conditions aux limites différent par rapport à l'étude d'une paroi non-réfléchissante présentée à la section précédente. $\hat{L}^{(1)}$ obéit à l'équation de transfert radiatif 7.22 et nous pouvons utiliser le développement de Taylor Eq. 7.27 de la solution générale de $\hat{L}^{(1)}$. Cette solution obtenue précédemment est :

$$\begin{aligned} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \\ &+ \left[-k_{ext}/\mu \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) - 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right. \\ &\quad \left. + \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] r_{\perp} \\ &+ [\dots] r_{\perp}^2 + \dots \end{aligned} \quad (7.47)$$

Cette expression générale doit maintenant satisfaire aux conditions aux limites sur $\hat{L}^{(1)}$, qui sont ici :

- En $r_{\perp} = 0$:

$$\hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0 \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0 \quad (\equiv \mu > 0) \quad (7.48)$$

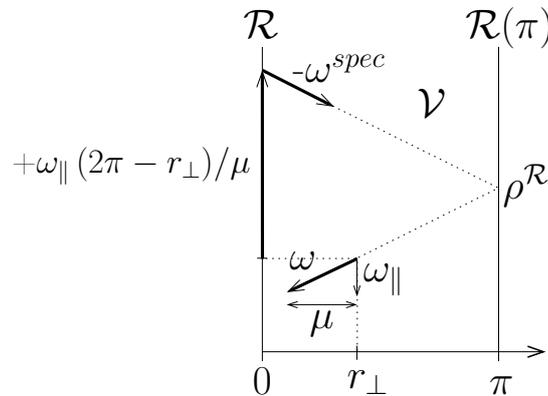


FIGURE 7.8: Construction géométrique illustrant la solution de la luminance balistique.

- En $r_{\perp} = \pi$:

$$\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (\equiv \mu < 0) \quad (7.49)$$

Pour $\mu > 0$, en injectant l'équation 7.47 dans la condition à la limite $\hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = 0$, il vient :

$$\begin{aligned} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = & \left[-1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right. \\ & \left. + \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] r_{\perp} \quad (7.50) \\ & + [\dots] r_{\perp}^2 + \dots \end{aligned}$$

Pour $\mu < 0$,

$$\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \quad (7.51)$$

où $\boldsymbol{\omega} \cdot -\mathbf{n}^{\mathcal{R}} = \mu$, $-\boldsymbol{\omega}^{spec} \cdot -\mathbf{n}^{\mathcal{R}} = -\mu$ et $-\boldsymbol{\omega}_{\parallel}^{spec} = \boldsymbol{\omega}_{\parallel}$ (voir Figs. 7.7 et 7.8). Il découle des propriétés de la réflexion spéculaire que $\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi)$ correspond à la solution précédemment obtenue pour $\mu > 0$. En remplaçant μ par $-\mu$ dans l'expression de $\hat{L}^{(1)}$ pour $\mu > 0$ afin d'exprimer $\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi)$, on obtient :

$$\hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}^{(1)}(\pi, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi)$$

\Leftrightarrow

$$\begin{aligned} & \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \\ & + \left[-k_{ext}/\mu \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) - 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right. \\ & \quad \left. + \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi + [\dots] \pi^2 + \dots \quad (7.52) \\ & = \rho^{\mathcal{R}} \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \right. \\ & \quad \left. - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi + [\dots] \pi^2 + \dots \end{aligned}$$

\Leftrightarrow

$$\begin{aligned}
\hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \\
&\times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \rho^{\mathcal{R}} 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \right. \right. \\
&\quad - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad \left. \left. - \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \right. \\
&\quad \left. + [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \quad , \text{ pour } \mu < 0
\end{aligned} \tag{7.53}$$

Cette expression permet d'obtenir le développement de Taylor de la solution du problème pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned}
\hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \\
&\times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \rho^{\mathcal{R}} 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \right. \right. \\
&\quad - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad \left. \left. - \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \right. \\
&\quad \left. + [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\
&+ \partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp} + 1/2 \partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) r_{\perp}^2 + \dots
\end{aligned} \tag{7.54}$$

(3) Dérivation par rapport à π de $\hat{L}^{(0)}$ et $\hat{L}^{(1)}$ et prise de la limite $\pi \rightarrow 0$. La contribution des photons balistiques $\partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0)$ est obtenue en dérivant l'expression Eq. 7.46 de $\hat{L}^{(0)}$, puis en considérant ($r_{\perp} = 0, \pi = 0$). On obtient l'expression suivante pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned}
\partial_4 \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) &= \rho^{\mathcal{R}} \partial_4 \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0) \\
&\quad + 2\rho^{\mathcal{R}} k_{ext}/\mu \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0) \\
&\quad + 2\rho^{\mathcal{R}} 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0)
\end{aligned} \tag{7.55}$$

Le premier terme vient de la dépendance à π des photons incidents à la paroi (qui y sont réfléchis), le second terme vient de la dépendance à π de l'atténuation exponentielle par extinction et enfin, le terme en $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}}$ vient de la dépendance à π de la deuxième variable de \hat{L} dans l'expression de $\hat{L}^{(0)}$.

L'expression de $\partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ est obtenue en dérivant l'Eq. 7.54 :

$$\begin{aligned}
\partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \\
&\times \left\{ \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \rho^{\mathcal{R}} 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \right. \right. \\
&\quad - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad \left. \left. - \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \right] \right. \\
&\quad + [\dots] \pi + \dots \\
&\quad + \partial_{\pi} \left[1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + \rho^{\mathcal{R}} 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi) \right. \\
&\quad - \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad \left. \left. - \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(r_{\perp}, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \right] \pi \right. \\
&\quad \left. + \partial_{\pi} [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\
&+ \frac{k_{ext}/\mu}{(1 - k_{ext}/\mu \pi)^2} \{ [\dots] \pi + [\dots] \pi^2 + \dots \} \\
&+ \partial_4 \left[\partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_{\perp} + 1/2 \partial_4 \left[\partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_{\perp}^2 + \dots
\end{aligned} \tag{7.56}$$

A la limite $r_{\perp} \rightarrow 0$, $\pi \rightarrow 0$ aucun des termes du développement ci-dessus ne diverge et il vient, pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned}
\partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) &= -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad - \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \\
&\quad + 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) \\
&\quad + \rho^{\mathcal{R}} 1/\mu \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0)
\end{aligned} \tag{7.57}$$

De la même manière que l'on a obtenu $\partial_4 \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ en dérivant l'expression de $\hat{L}^{(1)}$, on a :

$$\begin{aligned} \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(r_\perp, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) &= \frac{1}{1 - k_{ext}/\mu \pi} \left\{ \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} [\dots] \pi + \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} [\dots] \pi^2 + \dots \right\} \\ &+ \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \left[\partial_1 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_\perp \\ &+ 1/2 \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \left[\partial_1^2 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; \pi) \right] r_\perp^2 + \dots \end{aligned} \quad (7.58)$$

A la limite $r_\perp \rightarrow 0, \pi \rightarrow 0$

$$\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; 0) = \mathbf{0} \quad (7.59)$$

et de manière similaire

$$\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_\parallel} \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0) = \mathbf{0} \quad (7.60)$$

On a donc, toujours pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned} \partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; 0) &= -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\ &- \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_\Omega(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') \end{aligned} \quad (7.61)$$

En remplaçant $\hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; 0)$ par son expression (voir Eqs. 7.45 et 7.46), on obtient pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned} \partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}; 0) &= -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; 0) [p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') + \rho^{\mathcal{R}} p_\Omega(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}')] \\ &- \rho^{\mathcal{R}} \alpha_s k_{ext}/\mu \int_{h^+} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}^{(0)}(0, \mathbf{r}_\parallel, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}; 0) [p_\Omega(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') + \rho^{\mathcal{R}} p_\Omega(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}')] \end{aligned} \quad (7.62)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$ (i.e $\mu' > 0$) et h^+ est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$ (i.e $\mu' < 0$). Cette expression se simplifie en faisant un changement de variable d'intégration sur les directions. Lorsque le domaine d'intégration de la variable $\boldsymbol{\omega}'$ est h^- , la direction de réflexion spéculaire $-\boldsymbol{\omega}'^{spec}$ appartient à l'hémisphère opposé h^+ . On obtient l'égalité :

$$\int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_\parallel, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_\Omega(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') = \int_{h^+} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_\parallel, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}; 0) p_\Omega(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \quad (7.63)$$

Dans notre étude, la fonction de phase ne dépend que de l'angle entre la direction de diffusion

et la direction incidente, ce qui entraîne :

$$p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') = p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec} | -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \quad (7.64)$$

Il vient :

$$\int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') = \int_{h^+} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}; 0) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.65)$$

De manière similaire, on obtient :

$$\int_{h^+} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}; 0) p_{\Omega}(-\boldsymbol{\omega}^{spec}|\boldsymbol{\omega}') = \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.66)$$

En utilisant ces égalités, la contribution des photons diffus $\partial_4 \hat{L}^{(1)}$ pour $\mu < 0$ se réécrit :

$$\begin{aligned} \partial_4 \hat{L}^{(1)}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0) &= -\alpha_s k_{ext}/\mu \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\ &\times \left\{ H[\boldsymbol{\omega}' \in h^-] \left(1 + \rho^{\mathcal{R}^2}\right) \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}'; 0) + H[\boldsymbol{\omega}' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}; 0) \right\} \end{aligned} \quad (7.67)$$

où $H[]$ est la fonction échelon qui vaut 1 si la condition entre crochets est satisfaite et 0 sinon.

(4) Expression de la condition aux limites. On obtient $s_{\pi}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \boldsymbol{\omega}; 0)$ en sommant les expressions de $\partial_4 \hat{L}^{(0)}$ Eq. 7.55 et $\partial_4 \hat{L}^{(1)}$ Eq. 7.67 pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$ (*i.e* $\mu < 0$). La position ($\mathbf{r}_{\parallel} = \mathbf{0}, r_{\perp} = 0$) du système de coordonnées utilisé correspond à la position \mathbf{x} de la paroi \mathcal{R} (voir Fig. 7.4). En se plaçant en $\mathbf{r}_{\parallel} = \mathbf{0}$ et en remplaçant μ par $-\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$, on obtient la condition à la limite du modèle de sensibilité :

$$\begin{aligned} s_{\pi}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) &= \partial_4 \hat{L}^{(0)} + \partial_4 \hat{L}^{(1)} = \rho^{\mathcal{R}} s_{\pi}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \\ &- 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{k_{ext}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0) - 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{1}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}; 0) \\ &+ \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\ &\times \left\{ H[\boldsymbol{\omega}' \in h^-] \left(1 + \rho^{\mathcal{R}^2}\right) \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}'; 0) + H[\boldsymbol{\omega}' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}; 0) \right\} \\ &, \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \end{aligned} \quad (7.68)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$, h^+ l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$ et où $k_d = \alpha_s k_{ext}$ est le coefficient de diffusion.

Les dérivations mathématiques qui précèdent démontrent que les conditions aux limites du modèle de sensibilité sur une paroi plane non-émettrice de réflectivité $\rho^{\mathcal{R}}$ soumise à une translation colinéaire à sa normale s'écrivent selon l'équation 7.68. Nous tentons maintenant, à la figure 7.9, de construire un intuitif autour de cette expression, en s'appuyant sur les mêmes images que celles développées à la fin de la section 7.3.1 (Fig. 7.6) dans le cas des parois non-réfléchissantes. De la même manière, nous nous plaçons dans la lame mince ($\pi \rightarrow 0$) de la figure 7.4 (qui est rappelée à la figure 7.9) et nous ne nous intéressons qu'à l'expression de la luminance pour les directions $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$. Ici, la paroi en $\mathcal{R}(\pi)$ étant réfléchissante, d'autres images que celle de la rétrodiffusion des photons sont mises en jeu. L'idée est ici d'associer une image physique à chacun des termes de la condition aux limites Eq. 7.68. Tout d'abord, le premier terme de l'équation 7.68 est tout simplement une condition de réflexion spéculaire dans le problème en s_π qui ne fait pas l'objet d'interprétations particulières. Par contre, les images associées aux photons balistiques (voir Fig. 7.9.a) qui ne participaient pas à l'expression de la luminance (pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$) dans le cadre d'une paroi purement absorbante, jouent ici un rôle important. Les deuxième et troisième termes de l'équation 7.68 s'interprètent à partir de la figure 7.9.a qui représente le trajet des photons balistique à la traversée de la lame :

- Le deuxième terme Eq. 7.68 peut être visualisé comme une contribution de l'atténuation du faisceau balistique. Cette atténuation porte sur les photons incidents avec la direction spéculaire à la direction considérée, et elle est pilotée par la réflectivité (les photons interagissent une fois avec la surface \mathcal{R}), le coefficient d'extinction k_{ext} et la longueur de traversée $2 \times \pi / \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ (aller-retour) de la lame. Contrairement au cas de la diffusion, il n'y a pas ici d'ambiguïté sur la longueur de traversée (voir les discussions associées à la figure 7.6).
- Le troisième terme Eq. 7.68 est plus délicat à visualiser. On se contentera ici de mettre une image simple sur l'apparition de gradient de la luminance par rapport à la position tangentielle \mathbf{r}_\parallel . Sur la figure 7.9.a, si on fixe par la pensée le point d'observation associé à la direction $\boldsymbol{\omega}$, il apparaît clairement que la direction d'incidence $\boldsymbol{\omega}' = -\boldsymbol{\omega}^{spec}$ des photons est indépendante de l'épaisseur π de la lame (ce qui ne serait pas le cas si la paroi était courbée, voir l'apparition d'un terme en $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}} \hat{L}$ dans l'annexe E) mais que leur position d'entrée et leur position de réflexion est une fonction du paramètre π .

Le quatrième terme s'interprète à partir des images de la diffusion simple. Nous retrouvons ici le phénomène de rétrodiffusion qui avait été utilisé pour une visualisation de la condition à la limite en l'absence de réflexion (voir Fig. 7.9.b) ainsi qu'un ensemble d'images associant la réflexion et la diffusion des photons (voir Figs. 7.9.c, d et e). Nous détaillons ces images à partir des termes qui sont sommés dans l'intégration sur l'angle solide total noté 4π , et nous

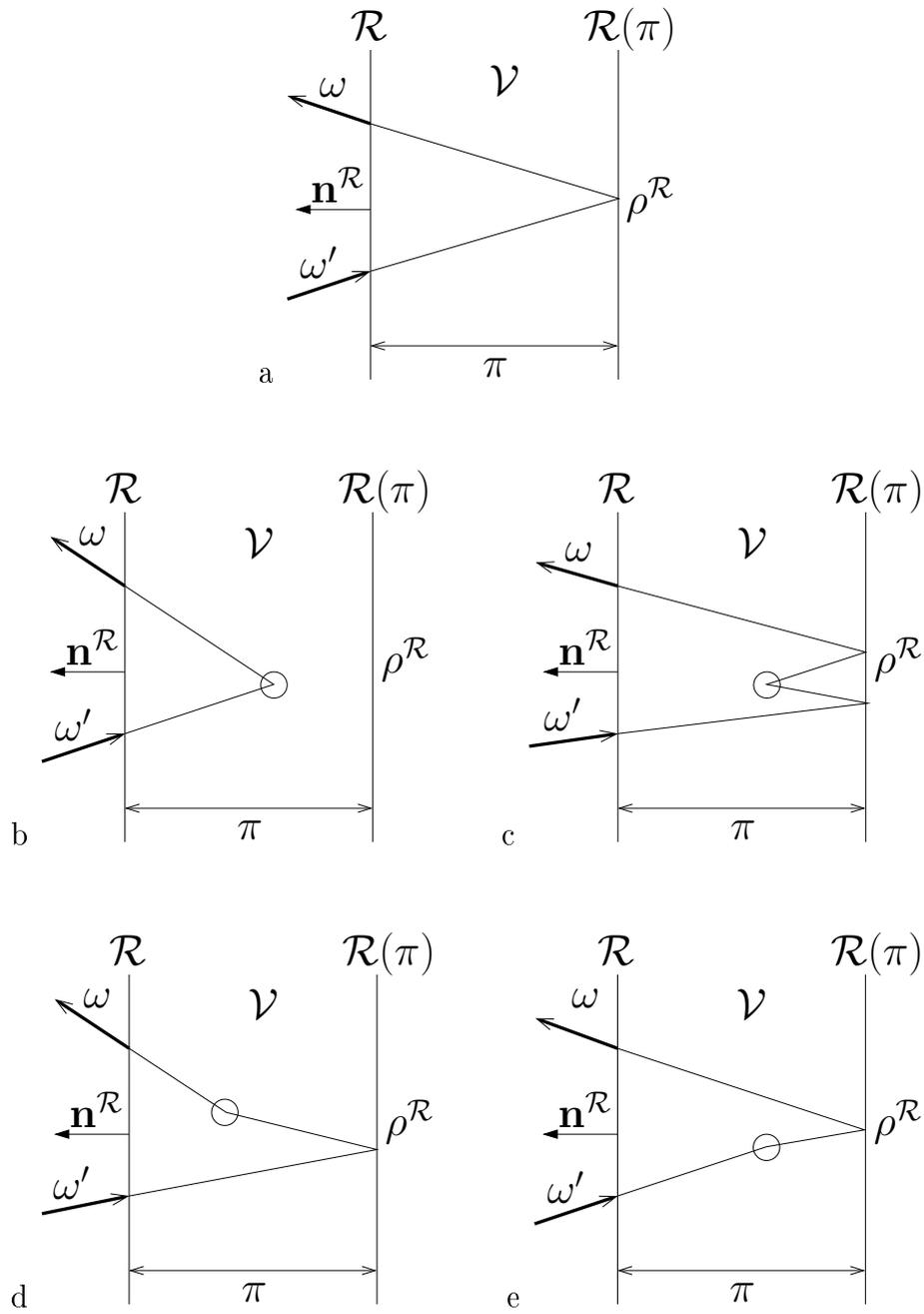


FIGURE 7.9: Représentation des chemins optiques du sous-système de la figure 7.4 menant à l'expression de la condition aux limites sur s_π pour une paroi non-émettrice et réfléchissante. Une diffusion dans le volume est notée \circ .

nous basons sur l'interprétation de la figure 7.6 qui a été donnée à la section 7.3.1 :

- Le terme $H[\omega' \in h^-] \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega'; 0)$ s'interprète à partir des phénomènes de rétrodiffusion qui sont représentés à la figure 7.9.b. Ces phénomènes sont les seuls à contribuer à la condition aux limites dans le cas d'une paroi non-réfléchissante (voir Eq. 7.39), ce que l'on retrouve bien ici en prenant $\rho^{\mathcal{R}} = 0$.
- Le terme $H[\omega' \in h^-] \rho^{\mathcal{R}^2} \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, \omega'; 0)$ s'interprète à partir des chemins optiques représentés à la figure 7.9.c. Dans le cadre de ces images, le préfacteur $\rho^{\mathcal{R}^2}$ représente le fait que les photons interagissent deux fois avec la paroi \mathcal{R} .
- Le Terme $H[\omega' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(0, \mathbf{r}_{\parallel}, -\omega'^{spec}; 0)$ s'interprète à partir de deux types de chemins optiques qui sont représentés aux figures 7.9.d et e. Ces deux types de chemins sont strictement équivalents en terme d'interprétation physique, ce qui permet de visualiser le facteur 2. De plus, ils n'interagissent qu'une fois avec la paroi \mathcal{R} , ce qui est cohérent avec le facteur $\rho^{\mathcal{R}}$.

L'interprétation qui vient d'être donnée ne permet pas d'obtenir l'expression de la condition aux limites Eq. 7.68 en se basant sur des images physiques simples. Cependant, elle permet de mettre une certaine cohérence autour des conditions aux limites que l'on obtient à partir d'une dérivation mathématique, et elle peut être employée comme un premier contrôle des expressions obtenues, grâce à une "prédiction" du nombre de termes supposés composer cette expression.

7.4 Résolution des modèles de sensibilité géométriques par la méthode de Monte Carlo

Au terme des sections précédentes, nous pouvons maintenant poser complètement les modèles de sensibilité (équation d'évolution de conditions aux limites) correspondant aux configurations de la figure 7.3. Nous étudions ici la sensibilité au paramètre géométrique E qui définit la surface \mathcal{R} . Le paramètre π , qui avait précédemment été introduit devient donc ici E . L'équation d'évolution de s_E a été obtenue à la section 7.2, et les conditions aux limites ont été dérivées à la section 7.3. Dans la présente section, nous allons nous concentrer sur la résolution des modèles de sensibilité par la méthode de Monte Carlo afin d'estimer la sensibilité $\partial_E \mathcal{A}$ (voir Eq. 7.4) de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons \mathcal{A} par rapport au paramètre géométrique E . Les discussions qui suivent s'attachent donc à la construction et à la description d'algorithmes de Monte Carlo pour la résolution numérique des modèles de sensibilité correspondant à l'étude de trois configurations radiatives de complexité croissantes. Dans la section 7.4.1, nous obtiendrons la sensibilité de \mathcal{A} au paramètre

géométrique E de la configuration bidimensionnelle Fig. 7.2.a (côte d'un photobioréacteur infini de section carrée contenant une fibre optique à éclairage latéral) en l'absence de réflectivité à la paroi \mathcal{R} . Dans les sections 7.4.2 et 7.4.3, nous nous concentrerons sur la gestion des réflectivités (qui font apparaître des termes de couplage avec le modèle du gradient spatial de la luminance), mais en nous restreignant cette fois à des géométries plan-parallèle. La section 7.4.2 correspond à l'étude d'une configuration radiative monodimensionnelle pour laquelle le couplage au modèle du gradient spatial de la luminance donne une contribution nulle. Nous pourrions ainsi nous concentrer sur la gestion du phénomène de réflexion indépendamment de la problématique spécifique liée à ce couplage. Enfin, la section 7.4.3 correspond à une configuration qui nous permettra d'illustrer simplement la gestion par la méthode de Monte Carlo du couplage au modèle du gradient spatial de la luminance. L'ensemble des discussions qui suivent sont basées sur les notations et les résultats présentés au chapitre 5.

7.4.1 Configuration 1 : couplage avec le modèle de la luminance dans le cadre de la déformation d'une paroi non-réfléchissante

Nous considérons ici la configuration de la figure 7.10, dans laquelle la paroi \mathcal{R} est non-réfléchissante et où le paramètre géométrique est E . La luminance obéit à l'équation de

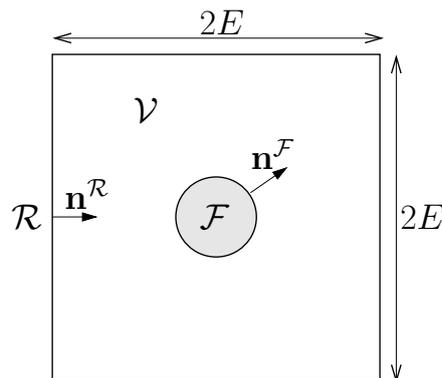


FIGURE 7.10: Configuration 1 : géométrie bidimensionnelle de paramètre E représentative de l'étude du photobioréacteur DiCoFluV. La paroi \mathcal{F} émet un rayonnement Lambertien de luminance \hat{L}^0 uniforme sur la totalité de sa surface ; elle est non-réfléchissante. La paroi \mathcal{R} est non-émettrice et non-réfléchissante ; elle est soumise à la déformation. Le volume réactionnel \mathcal{V} est un milieu homogène diffusant et absorbant ; il n'y a pas d'émission dans le volume.

transfert radiatif :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.69)$$

avec les conditions aux limites :

- A la surface \mathcal{F} :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \hat{L}^0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.70)$$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{F}}$ est la normale entrante au point \mathbf{x} considéré.

- A la surface \mathcal{R} :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.71)$$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est la normale entrante au point \mathbf{x} considéré.

L'obtention du modèle de sensibilité au paramètre E a été décrit dans les sections précédentes. s_E obéit à l'équation de transfert radiatif :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.72)$$

avec les conditions aux limites :

- A la surface \mathcal{F} :

$$s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.73)$$

- A la surface \mathcal{R} (voir Eq. 7.39) :

$$s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.74)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$.

Un couplage avec le modèle de \hat{L} apparaît à la paroi \mathcal{R} : les sources de sensibilité sont situées à la paroi \mathcal{R} et leur expression fait intervenir la luminance \hat{L} . Nous allons donc construire un algorithme qui combine la résolution de s_E et celle de \hat{L} . Pour cette première configuration, la construction de l'algorithme de Monte Carlo sera particulièrement détaillée. Les algorithmes pour la résolution du modèle de sensibilité et du modèle de la luminance sont d'abord décrits séparément, puis combinés en un seul et même algorithme pour l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}$. La procédure d'échantillonnage utilisée pour la résolution du modèle de sensibilité est appelée la *procédure 1*, et celle utilisée pour la résolution du modèle de la luminance est appelée la *procédure 2*.

Procédure d'échantillonnage 1. Dans le modèle de sensibilité, les sources sont émises à la paroi \mathcal{R} . Supposons dans un premier temps que ces sources de sensibilité soient connues, c'est-à-dire que $s_E(\mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0)$ soit fixé, et construisons un algorithme réciproque pour l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à n'importe quelle position \mathbf{x}_0 de \mathcal{V} . Cet algorithme correspond à l'échantillonnage des chemins optiques représentés à la figure 7.11.a, qui partant de la position \mathbf{x}_0 , mènent à une "absorption" à la paroi émettrice \mathcal{R} . Il s'énonce de la manière suivante :

- (I) Partant de la position \mathbf{x}_0 , une première direction $\boldsymbol{\omega}_0$ est générée suivant une densité de probabilité isotrope $p_{\Omega_0} = 1/4\pi$ et une première longueur de diffusion l_0 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L_0}(l_0) = k_d \exp[-k_d l_0]$.
- (II) L'ensemble $(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega}_0, l_0)$ et la géométrie du système définissent la position d'interaction \mathbf{x}_1 telle que décrit au chapitre 5. En fonction de la nature de cette interaction l'algorithme suit une des branches suivantes :
 - (A) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}$, l'interaction est une diffusion. Une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega_1}(\boldsymbol{\omega}_1|\boldsymbol{\omega}_0)$ des micro-organismes, une longueur de diffusion l_1 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L_1}(l_1) = k_d \exp[-k_d l_1]$ et l'algorithme boucle à l'étape (II) en incrémentant les indices.
 - (B) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{F}$, l'interaction mène à une sortie du système. La génération du chemin optique est terminée et le poids \hat{w}_1 est égal à 0. L'algorithme va à l'étape (III).
 - (C) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}$, l'interaction correspond à une "absorption" à la surface émettrice du système. La génération du chemin optique est terminée et le poids \hat{w}_1 est calculé selon la fonction de poids Eq. 7.75. L'algorithme va à l'étape (III).
- (III) L'algorithme boucle à l'étape (I) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées. Le chemin ainsi généré est par la suite appelé *chemin optique principal*. La fonction de poids correspondante est :

$$\hat{w}_j = H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{R}] \sigma_a \frac{s_E(\mathbf{x}_j, -\boldsymbol{\omega}_{j-1})}{p_{\Omega_0}} \exp[-k_a d_j] + H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}] \times 0 \quad (7.75)$$

où d_j est la longueur du chemin optique, $d_j = \sum_{q=1}^j \|\mathbf{x}_q - \mathbf{x}_{q-1}\|$.

L'expression de $s_E(\mathbf{x}_j, -\boldsymbol{\omega}_{j-1})$ dans la fonction de poids ci-dessus représente la source de sensibilité émise à la paroi \mathcal{R} , c'est la condition à la limite Eq. 7.74 :

$$s_E(\mathbf{x}_j, -\boldsymbol{\omega}_{j-1}) = \frac{k_d}{-\boldsymbol{\omega}_{j-1} \cdot \mathbf{n}_j^{\mathcal{R}}} \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}_j, \boldsymbol{\omega}') p_{-\Omega_{j-1}}(-\boldsymbol{\omega}_{j-1}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.76)$$

où $\mathbf{n}_j^{\mathcal{R}}$ est la normale de \mathcal{R} à la position \mathbf{x}_j . Cette émission fait apparaître un couplage avec le modèle de \hat{L} . Afin de reformuler cette expression et de pouvoir l'évaluer algorithmiquement,

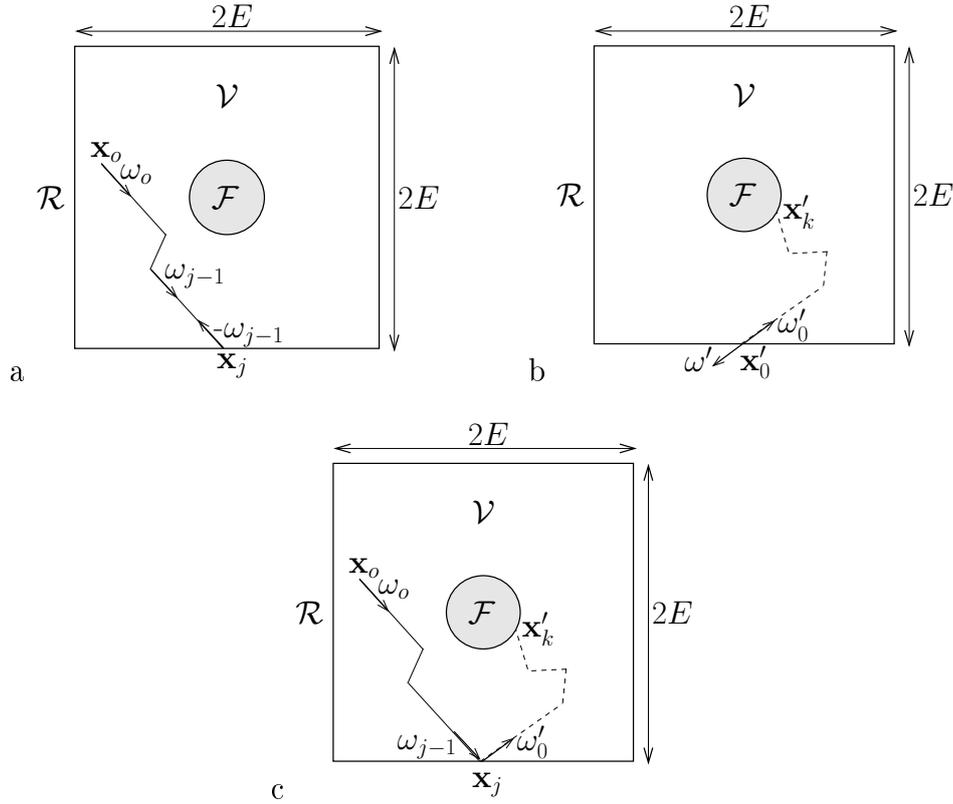


FIGURE 7.11: Exemple de chemins optiques échantillonnés dans le cadre de l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ pour la configuration 1. a : Chemins optiques de sensibilité ; procédure d'échantillonnage 1. b : Chemins optiques sur la luminance ; procédure d'échantillonnage 2. c : Chemins optiques de l'algorithme de Monte Carlo final.

on définit la direction $\omega'_0 = -\omega'$. Les fonctions de phases p_{Ω} étudiées sont compatibles avec la réciprocité, ce qui entraîne que $p_{-\Omega_{j-1}}(-\omega_{j-1}|\omega') = p_{\Omega'}(\omega' | -\omega_{j-1})$ et $p_{-\Omega'_0}(-\omega'_0 | -\omega_{j-1}) = p_{\Omega'_0}(\omega'_0 | \omega_{j-1})$. L'expression de s_E à la paroi devient :

$$s_E(\mathbf{x}_j, -\omega_{j-1}) = \frac{-k_d}{\omega_{j-1} \cdot \mathbf{n}_j^{\mathcal{R}}} \int_{h^+} d\omega'_0 p_{\Omega'_0}(\omega'_0 | \omega_{j-1}) \hat{L}(\mathbf{x}_j, -\omega'_0) \quad (7.77)$$

où h^+ est l'hémisphère correspondant à $\omega' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$. Cette expression peut s'écrire comme :

$$s_E(\mathbf{x}_j, -\omega_{j-1}) = \int_{4\pi} d\omega'_0 p_{\Omega'_0}(\omega'_0 | \omega_{j-1}) \times \left\{ H[\omega'_0 \in h^+] \frac{-k_d}{\omega_{j-1} \cdot \mathbf{n}_j^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}_j, -\omega'_0) + H[\omega'_0 \in h^-] \times 0 \right\} \quad (7.78)$$

Cette formulation intégrale indique que lorsqu'un chemin optique réciproque de sensibilité intersecte la paroi \mathcal{R} avec une direction $\boldsymbol{\omega}_{j-1}$, une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_0$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega'_0}(\boldsymbol{\omega}'_0|\boldsymbol{\omega}_{j-1})$; si cette direction est sortante ($\boldsymbol{\omega}'_0 \in h^-$), alors la contribution à la source de sensibilité est nulle ($\hat{w}_j = 0$); si cette direction est entrante ($\boldsymbol{\omega}'_0 \in h^+$), alors la luminance $\hat{L}(\mathbf{x}_j, -\boldsymbol{\omega}'_0)$ doit être évaluée². Nous allons donc construire dans le paragraphe suivant une procédure d'échantillonnage pour l'évaluation de \hat{L} . En résumé, lorsque le chemin optique principal interagit avec la paroi \mathcal{R} , la source de sensibilité est évaluée : la direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_0$ est générée et si cette direction est entrante, alors un chemin optique supplémentaire correspondant à la résolution du modèle de \hat{L} est lancé en suivant la procédure d'échantillonnage 2.

Procédure d'échantillonnage 2. L'évaluation de $\hat{L}(\mathbf{x}_j, -\boldsymbol{\omega}'_0)$ correspond à un algorithme réciproque échantillonnant les chemins optiques représentés à la figure 7.11.b, qui partant de la position \mathbf{x}_j avec la direction $\boldsymbol{\omega}'_0$, mènent à une "absorption" à la paroi émettrice \mathcal{F} ; il s'énonce de la manière suivante :

- (1) Partant de la position $\mathbf{x}'_0 = \mathbf{x}_j$ avec la direction $\boldsymbol{\omega}'_0 \in h^+$, une première longueur de diffusion l'_0 est générée suivant $p_{L'_0}(l'_0) = k_d \exp[-k_d l'_0]$.
- (2) L'ensemble $(\mathbf{x}'_0, \boldsymbol{\omega}'_0, l'_0)$ et la géométrie du système définissent la position d'interaction \mathbf{x}'_1 telle que décrit au chapitre 5. En fonction de la nature de cette interaction l'algorithme suit une des branches suivantes :
 - (a) Si $\mathbf{x}'_1 \in \mathcal{V}$, l'interaction est une diffusion. Une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_1$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega'_1}(\boldsymbol{\omega}'_1|\boldsymbol{\omega}'_0)$ des micro-organismes, une longueur de diffusion l'_1 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L'_1}(l'_1) = k_d \exp[-k_d l'_1]$ et l'algorithme boucle à l'étape (2) en incrémentant les indices.
 - (b) Si $\mathbf{x}'_1 \in \mathcal{F}$, l'interaction correspond à une "absorption" à la surface émettrice du système. En effet, le chemin optique qui est ici échantillonné correspond à l'estimation de \hat{L} et dans ce problème les sources sont à la paroi \mathcal{F} . La génération du chemin optique est terminée et le poids \hat{w}'_1 est calculé suivant la fonction de poids Eq. 7.79. L'algorithme va à l'étape (3).
 - (c) Si $\mathbf{x}'_1 \in \mathcal{R}$, l'interaction mène à une sortie du système (la surface \mathcal{R} n'émet pas dans le problème en \hat{L}). La génération du chemin optique est terminée et le poids \hat{w}'_1 est égal à 0. L'algorithme va à l'étape (3).
- (3) L'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

2. Cette procédure d'échantillonnage de la direction de départ $\boldsymbol{\omega}'_0$ est à mettre en lien avec l'interprétation physique de la condition à la limite qui est donnée à la figure 7.6

Le chemin ainsi généré est par la suite appelé *chemin optique annexe*. La fonction de poids correspondante est :

$$\hat{w}'_k = H[\mathbf{x}'_k \in \mathcal{R}] \times 0 + H[\mathbf{x}'_k \in \mathcal{F}] \hat{L}^0 \exp[-k_a d'_k] \quad (7.79)$$

où d'_k est la longueur du chemin optique, $d'_k = \sum_{q=1}^k \|\mathbf{x}'_q - \mathbf{x}'_{q-1}\|$.

L'algorithme de Monte Carlo pour l'évaluation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ correspond à un algorithme réciproque échantillonnant les chemins optiques représentés à la figure 7.11.c. Le chemin optique principal, qui partant de la position \mathbf{x}_0 mène à une "absorption" à la paroi \mathcal{R} (représenté en trait plein sur la figure 7.11.c) est échantillonné en suivant la procédure 1. Puis, la source de sensibilité à cette paroi est évaluée en prolongeant ce chemin optique avec la direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_0$ et en suivant la procédure d'échantillonnage 2 jusqu'à une "absorption" à la paroi \mathcal{F} (chemin optique annexe représenté en pointillés sur la figure 7.11.c). Cet algorithme s'énonce de la manière suivante :

- (I) Partant de la position \mathbf{x}_0 , une première direction $\boldsymbol{\omega}_0$ est générée suivant une densité de probabilité isotrope $p_{\Omega_0} = 1/4\pi$ et une première longueur de diffusion l_0 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L_0}(l_0) = k_d \exp[-k_d l_0]$.
 - (II) En fonction de la nature de l'interaction en \mathbf{x}_1 l'algorithme suit une des branches suivantes :
 - (A) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}$, l'interaction est une diffusion. Une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega_1}(\boldsymbol{\omega}_1|\boldsymbol{\omega}_0)$, une longueur de diffusion l_1 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L_1}(l_1) = k_d \exp[-k_d l_1]$ et l'algorithme boucle à l'étape (II) en incrémentant les indices.
 - (B) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{F}$, la génération du chemin optique est terminée et le poids est égal à 0. L'algorithme va à l'étape (III).
 - (C) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}$, une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_0$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega'_0}(\boldsymbol{\omega}'_0|\boldsymbol{\omega}_0)$. En fonction de cette direction l'algorithme suit une des branches suivantes :
 - Si la direction $\boldsymbol{\omega}'_0$ sort du volume réactionnel (c'est-à-dire si $\boldsymbol{\omega}'_0 \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$), alors la génération du chemin optique est terminée et le poids est égal à 0. L'algorithme va à l'étape (III).
 - Si $\boldsymbol{\omega}'_0 \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$, l'échantillonnage du chemin optique continue selon la procédure 2 :
- (1) Une première longueur de diffusion l'_0 est générée suivant $p_{L'_0}(l'_0) = k_d \exp[-k_d l'_0]$.

- (2) En fonction de la nature de l'interaction en \mathbf{x}'_1 , l'algorithme suit une des branches suivantes :
- (a) Si $\mathbf{x}'_1 \in \mathcal{V}$, l'interaction est une diffusion. Une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_1$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega'_1}(\boldsymbol{\omega}'_1|\boldsymbol{\omega}'_0)$ des micro-organismes, une longueur de diffusion l'_1 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L'_1}(l'_1) = k_d \exp[-k_d l'_1]$ et l'algorithme boucle à l'étape (2) en incrémentant les indices.
 - (b) Si $\mathbf{x}'_1 \in \mathcal{F}$, la génération du chemin optique est terminée et le poids \hat{w}_1 est calculé suivant la fonction de poids Eq. 7.80. L'algorithme va à l'étape (III).
 - (c) Si $\mathbf{x}'_1 \in \mathcal{R}$, la génération du chemin optique est terminée et le poids est égal à 0. L'algorithme va à l'étape (III).

(III) L'algorithme boucle à l'étape (I) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

La fonction de poids est :

$$\hat{w}_{j,k} = H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{R}] H[\mathbf{x}'_k \in \mathcal{F}] \sigma_a \frac{-k_d}{\boldsymbol{\omega}_{j-1} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} 4\pi \hat{L}^0 \exp[-k_a(d_j + d'_k)] \quad (7.80)$$

où j est l'indice de la procédure d'échantillonnage 1 et k est l'indice de la procédure d'échantillonnage 2, en d'autres termes, $\hat{w}_{j,k}$ est la fonction de poids associée à un chemin intersectant pour la première fois $\mathcal{R} \cup \mathcal{F}$ en \mathbf{x}_j et une seconde fois en \mathbf{x}'_k . d_j est la longueur du chemin échantillonné par la procédure 1 (de \mathbf{x}_0 à \mathbf{x}_j) et d'_k est la longueur du chemin échantillonné par la procédure 2 (de \mathbf{x}_j à \mathbf{x}'_k). $\boldsymbol{\omega}_{j-1}$ est la direction d'incidence du chemin optique lors de son interaction avec la surface \mathcal{R} , et $\boldsymbol{\omega}_{j-1} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est donc toujours négatif (voir Fig. 7.11.c).

Résultats. La figure 7.12 présente les résultats de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ obtenus pour 10^6 réalisations de l'algorithme ci-dessus, en fonction du paramètre géométrique E de la configuration radiative Fig. 7.10. Nous ne rencontrons pas de difficulté numérique particulière (ni de convergence, ni pour l'échantillonnage des chemins) : l'écart-type relatif est d'environ 0.1% et le temps de calcul est d'environ 5 secondes pour chaque valeur de E étudiée. Afin de valider ces résultats, ils sont comparés aux sensibilités obtenues par différence finie grâce au calcul de deux valeurs de \mathcal{A} , pour deux valeurs de E . L'évaluation de \mathcal{A} est obtenue grâce à la même procédure d'échantillonnage que celle présentée ici, mais en considérant la contribution à \mathcal{A} des chemins principaux qui sont "absorbés" à la surface \mathcal{F} .

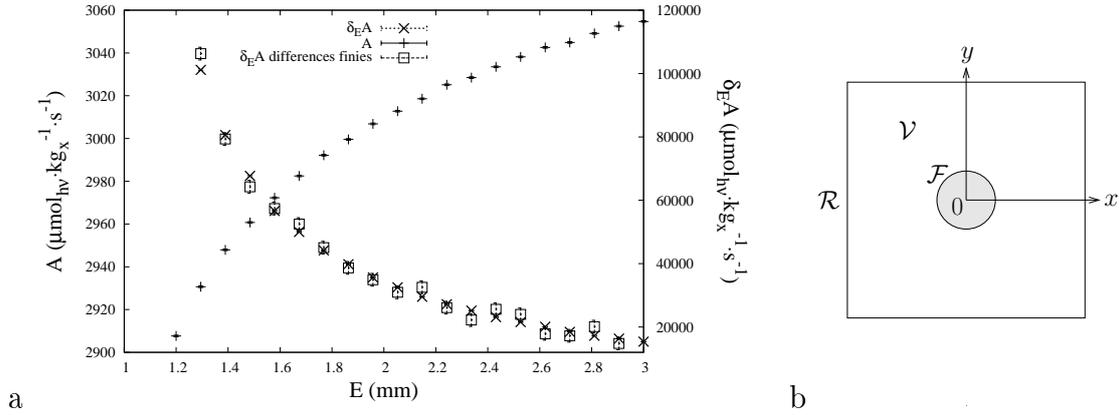


FIGURE 7.12: a : Valeurs de la sensibilité $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à la position $(x = 1.1 \text{ mm}, y = 0)$ (dans le repère de b) en fonction du paramètre E de la configuration 1 (voir Fig. 7.10) dans laquelle : la concentration en biomasse est $C_x = 1 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$, $\sigma_a = 80 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, $\sigma_d = 80 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, la fonction de phase est isotrope, le rayon de la fibre est $r_{\mathcal{F}} = 1 \text{ mm}$ et elle émet une densité surfacique de flux $q_{\square} = 25 \mu\text{mol}_{hv} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Résultats obtenus pour 10^6 réalisations de l'algorithme de Monte Carlo présenté à la section 7.4.1. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus par différence finie à partir de deux calculs de \mathcal{A} pour deux valeurs de E .

7.4.2 Configuration 2 : couplage avec le modèle de la luminance dans le cadre de la déformation d'une paroi réfléchissante

Nous étudions ici une première configuration impliquant la déformation d'une surface réfléchissante \mathcal{R} . Les conditions aux limites du modèle de sensibilité sont, à une telle paroi réfléchissante (voir Eq. 7.68) :

$$\begin{aligned}
 s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) &= \rho^{\mathcal{R}} s_E(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \\
 &- 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{k_{ext}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) - 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{1}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \\
 &+ \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\
 &\times \left\{ H[\boldsymbol{\omega}' \in h^-] (1 + (\rho^{\mathcal{R}})^2) \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') + H[\boldsymbol{\omega}' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \right\} \\
 &, \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0
 \end{aligned} \tag{7.81}$$

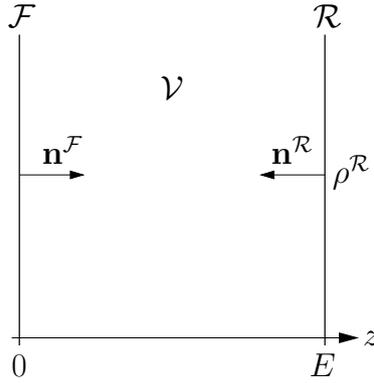


FIGURE 7.13: Configuration 2 : configuration monodimensionnelle de paramètre géométrique E . La paroi \mathcal{F} émet un rayonnement Lambertien de luminance \hat{L}^0 uniforme sur la totalité de sa surface ; elle est non-réfléchissante. La paroi \mathcal{R} est non-émettrice et réfléchissante spéculaire ; elle est soumise à la déformation (une translation correspondant à la variation de E). Le volume réactionnel \mathcal{V} est un milieu homogène diffusant et absorbant ; il n'y a pas d'émission dans le volume.

Le terme $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ est le gradient de la luminance tangentiellement à la paroi. Il sera abordé dans le cadre de la configuration 3. Nous nous plaçons ici dans la configuration monodimensionnelle Fig. 7.13 pour laquelle ce terme de couplage est nul car la luminance est homogène sur la surface \mathcal{R} (quelle que soit la direction considérée). La situation étudiée est donc similaire à celle de la configuration 1 dans le sens où elle n'implique pas de nouveaux couplages. Cependant, quelques complexifications liées aux conditions de réflexion apparaissent, tant pour le modèle de \hat{L} que pour le modèle de sensibilité.

Le modèle de la luminance est l'équation de transfert radiatif

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.82)$$

avec les conditions aux limites

- A la surface \mathcal{F} :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \hat{L}^0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.83)$$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{F}}$ est la normale entrante au point \mathbf{x} considéré.

- A la surface \mathcal{R} :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.84)$$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est la normale entrante au point \mathbf{x} considéré.

L'obtention du modèle de sensibilité au paramètre E a été décrite dans les sections précédentes. s_E obéit à l'équation de transfert radiatif :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.85)$$

avec les conditions aux limites :

- A la surface \mathcal{F} :

$$s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.86)$$

- A la surface \mathcal{R} (voir Eq. 7.81) :

$$\begin{aligned} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = & \rho^{\mathcal{R}} s_E(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) - 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{k_{ext}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \\ & + \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\ & \times \left\{ H[\boldsymbol{\omega}' \in h^-] (1 + (\rho^{\mathcal{R}})^2) \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') + H[\boldsymbol{\omega}' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \right\} \\ & , \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \end{aligned} \quad (7.87)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$ et h^+ est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$.

La paroi \mathcal{R} a les mêmes propriétés de réflexion dans les modèles en s_E et \hat{L} (voir le premier terme de la condition à la limite Eq. 7.87 en ce qui concerne s_E). D'un point de vue algorithmique, cela implique que lors d'une interaction avec \mathcal{R} , l'échantillonnage des chemins optiques de sensibilité (ainsi que l'échantillonnage des chemins optiques de la luminance) se poursuit selon la direction de réflexion spéculaire. Un chemin optique de sensibilité peut donc interagir plusieurs fois avec la surface \mathcal{R} , qui émet par ailleurs une source de sensibilité (termes suivants de l'équation 7.87). Comme dans le cadre de la configuration 1, cette émission fait apparaître un couplage avec le modèle de \hat{L} . Un chemin optique annexe correspondant à la résolution du modèle de \hat{L} est alors généré afin d'évaluer l'émission de \mathcal{R} dans le modèle de sensibilité. A chaque réflexion du chemin optique principal, un chemin an-

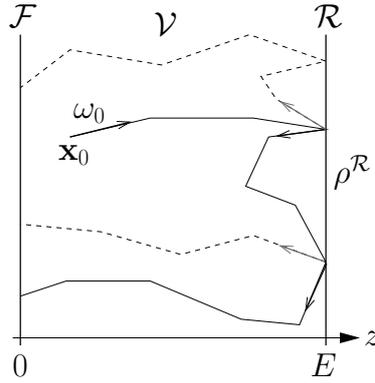


FIGURE 7.14: Exemple de chemins optiques échantillonnés dans le cadre de l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ pour la configuration 2. En trait plein : chemin optique *principal*; procédure d'échantillonnage 1. En pointillés : chemins optiques *annexes* sur la luminance; procédure d'échantillonnage 2.

nexe sera donc échantillonné. Nous construisons dans la suite un algorithme de Monte Carlo réciproque pour l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à n'importe quelle position \mathbf{x}_0 de \mathcal{V} . Un exemple de chemins optiques échantillonnés par cet algorithme est schématisé à la figure 7.14. Afin d'aborder sa construction pas à pas, nous allons distinguer les deux procédures d'échantillonnage représentées sur cette figure : la procédure 1 correspond à l'échantillonnage du chemin optique principal (trait plein) et la procédure 2 correspond à l'échantillonnage d'un chemin optique annexe (pointillés). A la fin de la présente section, ces deux procédures seront utilisées au sein d'un seul algorithme de Monte Carlo pour l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$.

Procédure d'échantillonnage 1. Nous considérons ici la génération des chemins optiques représentés en trait plein sur la figure 7.14. Ces chemins correspondent à l'estimation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ en ne prenant en compte que les deux premiers termes de la condition à la limite Eq. 7.87 :

$$s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \rho^{\mathcal{R}} s_E(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) - 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{k_{ext}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \quad , \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.88)$$

On observe que cette condition à la limite fait intervenir un premier couplage avec le modèle de la luminance. Contrairement aux autres termes de couplage qui seront traités dans la procédure d'échantillonnage 2, l'évaluation du terme $-2\rho^{\mathcal{R}} \frac{k_{ext}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec})$ ne nécessite pas la génération d'un chemin optique spécifique pour l'évaluation de \hat{L} . En effet, dans le

cadre des conditions aux limites Eq. 7.88 pour s_E et Eq. 7.84 pour \hat{L} , les deux grandeurs obéissent au même phénomène de réflexion spéculaire à la paroi \mathcal{R} :

$$\begin{aligned} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) &\propto s_E(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \\ \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) &\propto \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \end{aligned} \quad (7.89)$$

et la contribution des deux termes de l'équation 7.88 est portée par le même chemin de diffusion et réflexion multiple. L'échantillonnage de ce chemin optique réciproque qui, partant de la position \mathbf{x}_0 avec la direction $\boldsymbol{\omega}_0$, se termine par une "absorption" à la paroi \mathcal{F} s'énonce de la manière suivante :

- (I) Partant de la position \mathbf{x}_0 , une première direction $\boldsymbol{\omega}_0$ est générée suivant une densité de probabilité isotrope $p_{\Omega_0} = 1/4\pi$ et une première longueur de diffusion l_0 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L_0}(l_0) = k_d \exp[-k_d l_0]$.
- (II) L'ensemble $(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\omega}_0, l_0)$ et la géométrie du système définissent la position d'interaction \mathbf{x}_1 telle que décrit au chapitre 5. En fonction de la nature de cette interaction l'algorithme suit une des branches suivantes :
 - (A) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}$, l'interaction est une diffusion. Une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_1$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega_1}(\boldsymbol{\omega}_1|\boldsymbol{\omega}_0)$ des micro-organismes, une longueur de diffusion l_1 est générée suivant la densité de probabilité $p_{L_1}(l_1) = k_d \exp[-k_d l_1]$ et l'algorithme boucle à l'étape (II) en incrémentant les indices.
 - (B) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{F}$, l'interaction mène à une sortie du système. La génération du chemin optique est terminée et le poids \hat{w}_1 est calculé suivant la fonction de poids Eq. 7.90. L'algorithme va à l'étape (III).
 - (C) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}$, l'interaction est une réflexion à la paroi : la direction $\boldsymbol{\omega}_1$ est prise comme la direction spéculaire à la direction d'incidence $\boldsymbol{\omega}_0$. L'algorithme va à l'étape (II) en incrémentant les indices.
- (III) L'algorithme boucle à l'étape (I) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées. La fonction de poids est :

$$\hat{w}_j = H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}] \times -2 k_{ext} \left\{ \sum_{q=1}^{j-1} H[\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}] \frac{1}{\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \right\} \sigma_a \frac{\hat{L}^0}{p_{\Omega_0}} [\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} \exp[-k_a d_j] \quad (7.90)$$

où $n_j^{\mathcal{R}}$ est le nombre d'interactions avec \mathcal{R} avant l'interaction en $\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}$,

$$n_j^{\mathcal{R}} = \prod_{q=1}^{j-1} H[\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}] \rho^{\mathcal{R}} + H[\mathbf{x}_q \notin \mathcal{R}] \times 1$$

et d_j est la longueur du chemin optique,

$$d_j = \sum_{q=1}^j \|\mathbf{x}_q - \mathbf{x}_{q-1}\|$$

On remarque que $\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est toujours positif. Cette fonction de poids s'interprète de la manière suivante : à chaque interaction en un point \mathbf{x}_q de la paroi \mathcal{R} , la contribution $-2 k_{ext} \frac{1}{\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}^0 T_a$ à la sensibilité est comptabilisée, où $T_a = [\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} \exp[-k_a d_j]$ est la transmittivité par absorption le long du chemin optique. T_a est calculée sur l'intégralité du chemin échantillonné entre la position de départ \mathbf{x}_0 et la position d'arrivée $\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}$ car l'atténuation par absorption dans le milieu et par réflexion à la paroi correspond à la même physique dans les modèles sur \hat{L} et sur s_E . En d'autres termes, la source de sensibilité émise à la position $\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}$ est atténuée entre \mathbf{x}_q et la position \mathbf{x}_0 . Cette source est par ailleurs proportionnelle à la luminance en \mathbf{x}_q , c'est-à-dire à la source \hat{L}^0 émise en \mathbf{x}_j atténuée entre \mathbf{x}_j et \mathbf{x}_q . L'atténuation est donc calculée entre les positions \mathbf{x}_0 et \mathbf{x}_j .

Procédure d'échantillonnage 2. Nous considérons ici la génération des chemins optiques annexes représentés en pointillés sur la figure 7.14. Ces chemins correspondent à la prise en compte du dernier terme de la condition à la limite Eq. 7.87 :

$$s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \times \left\{ H[\boldsymbol{\omega}' \in h^-] (1 + (\rho^{\mathcal{R}})^2) \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') + H[\boldsymbol{\omega}' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \right\} \quad (7.91)$$

, pour $\mathbf{x} \in \mathcal{R}$, $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$

Cette condition à la limite rassemble le terme de couplage que nous avons évalué numériquement dans le cadre de la configuration 1 ($s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{h^-} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}')$), ainsi que d'autres termes liés à la condition de réflexion à la paroi (voir Fig. 7.9). Les raisonnements liés à la construction de la procédure d'échantillonnage 2 sont donc ici identiques à ceux exposés dans le cadre de la configuration 1 : il s'agit d'échantillonner les chemins contribuant à la luminance à la paroi afin d'évaluer le couplage entre les deux modèles. Pour cela, lorsqu'un chemin optique principal de la procédure 1 intersecte la paroi \mathcal{R} en \mathbf{x}_j avec une direction $\boldsymbol{\omega}_{j-1}$, une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}'_0$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega'_0}(\boldsymbol{\omega}'_0|\boldsymbol{\omega}_{j-1})$. Dans la configuration 1, seuls les $\boldsymbol{\omega}'_0$ entrants ($\boldsymbol{\omega}'_0 \in h^+$) menaient à la génération d'un chemin optique annexe partant de \mathbf{x}_j avec la direction $\boldsymbol{\omega}'_0$, les directions sortantes ($\boldsymbol{\omega}'_0 \in h^-$) menaient à une sortie du système et avaient donc une contribution nulle. Ici,

compte tenu des phénomènes de réflexion, lorsqu'une direction ω'_0 sortante est générée, un chemin optique annexe partant de \mathbf{x}_j avec la direction spéculaire $-\omega'_0{}^{spec}$ (correspondant à la direction ω'_0) est échantillonné. Quelque soit la direction ω'_0 , il s'agit donc d'échantillonner un chemin optique annexe qui part de la position $\mathbf{x}_j \in \mathcal{R}$ avec la direction $\hat{\omega}'_0$ entrante ($\omega'_0 \in h^+$) définie telle que

$$\hat{\omega}'_0 = \begin{cases} \omega'_0 & , \text{ si } \omega'_0 \in h^+ \\ -\omega'_0{}^{spec} & , \text{ si } \omega'_0 \in h^- \end{cases} \quad (7.92)$$

L'échantillonnage de ce chemin se termine par une "absorption" à la paroi \mathcal{F} . La procédure d'échantillonnage 2 est donc ici identique à la procédure 2 de la configuration 1, dans laquelle on remplace la direction de départ ω'_0 par la nouvelle direction de départ $\hat{\omega}'_0$. La fonction de poids associée à cette procédure (en ce qui concerne l'évaluation de $\hat{L}(\mathbf{x}_j \in \mathcal{R}, -\hat{\omega}'_0)$) est elle aussi identique à celle donnée dans le cadre de la configuration 1 :

$$\hat{w}'_k = H[\mathbf{x}'_k \in \mathcal{R}] \times 0 + H[\mathbf{x}'_k \in \mathcal{F}] \hat{L}^0 \exp[-k_a d'_k] \quad (7.93)$$

où d'_k est la longueur du chemin optique, $d'_k = \sum_{q=1}^k \|\mathbf{x}'_q - \mathbf{x}'_{q-1}\|$.

L'algorithme de Monte Carlo pour l'évaluation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ correspond à un algorithme réciproque échantillonnant les chemins optiques représentés à la figure 7.14. Dans cet algorithme, plusieurs chemins optiques annexes (procédure d'échantillonnage 2) peuvent être échantillonnés puisque le chemin principal (procédure d'échantillonnage 1) peut intersecter plusieurs fois la surface \mathcal{R} . A chaque fois qu'un chemin annexe est généré, on récupère certaines informations associées à ce chemin. Afin de distinguer les informations correspondant à différents chemins annexes, nous choisissons de noter en exposant le numéro du chemin annexe concerné (la numérotation suit l'ordre dans lequel les chemins annexes sont générés). Ainsi la longueur du premier chemin annexe généré est notée $d^{(1)}$ plutôt que d' . Afin de présenter simplement cet algorithme, nous nous appuyons sur la présentation précédente des procédures d'échantillonnage 1 et 2 :

- (I) La procédure d'échantillonnage 1 est lancée, à partir de la position \mathbf{x}_0 .
- (II) En fonction de la nature de la position d'interaction \mathbf{x}_1 , l'algorithme suit une des branches suivantes :
 - (a) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{V}$, l'algorithme va à l'étape (III).

- (b) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{F}$, la procédure d'échantillonnage 1 est terminée, le poids est calculé suivant la fonction de poids Eq. 7.106 et la réalisation de l'algorithme est terminée. L'algorithme va à l'étape (IV).
- (c) Si $\mathbf{x}_1 \in \mathcal{R}$ (la direction d'incidence à la paroi étant $\boldsymbol{\omega}_0$), la procédure 1 est temporairement interrompue pendant que la procédure 2 est mise en œuvre :
- (1) Une direction de diffusion $\boldsymbol{\omega}_0^{(1)}$ est générée suivant la fonction de phase $p_{\Omega_0^{(1)}}(\boldsymbol{\omega}_0^{(1)}|\boldsymbol{\omega}_0)$. En fonction de cette direction, la direction de départ $\hat{\boldsymbol{\omega}}_0^{(1)}$ du chemin annexe est initialisée suivant Eq. 7.92.
 - (2) La procédure 2 est lancée pour l'échantillonnage du chemin annexe partant de la position \mathbf{x}_1 avec la direction $\hat{\boldsymbol{\omega}}_0^{(1)}$ jusqu'à une "absorption" à la surface \mathcal{F} .
 - (3) Une fois la procédure 2 terminée, on récupère les informations suivantes :
 - la longueur $d^{(1)}$ du chemin annexe,
 - la direction $\boldsymbol{\omega}_0^{(1)}$ ayant servi à la définition de sa direction de départ,
 - la direction d'incidence du chemin principal lors de son interaction avec \mathcal{R} au test algorithmique (c), ici $\boldsymbol{\omega}_0$, que l'on note $\boldsymbol{\omega}_i^{(1)}$,
 - la longueur du chemin principal lors de son interaction avec \mathcal{R} au test algorithmique (c), que l'on note $d_i^{(1)}$.
 Puis l'algorithme va à l'étape (III).

- (III) La procédure d'échantillonnage 1 continue à partir de la position \mathbf{x}_1 et l'algorithme boucle à l'étape (II) en incrémentant les indices.
- (IV) L'algorithme boucle à l'étape (1) jusqu'à obtention du nombre de réalisations souhaitées.

La fonction de poids est :

$$\begin{aligned}
 \hat{w}_j = & H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}] \times -2 k_{ext} \left\{ \sum_{q=1}^{j-1} H[\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}] \frac{1}{\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \right\} \sigma_a \frac{\hat{L}^0}{p_{\Omega_0}} [\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} \exp[-k_a d_j] \\
 & -k_d \sigma_a \frac{\hat{L}^0}{p_{\Omega_0}} \sum_{n=1}^N \left\{ H[\boldsymbol{\omega}_0^{(n)} \in h^+] (1 + (\rho^{\mathcal{R}})^2) + H[\boldsymbol{\omega}_0^{(n)} \in h^-] 2\rho^{\mathcal{R}} \right\} \\
 & \times \frac{1}{\boldsymbol{\omega}_i^{(n)} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \exp\left[-k_a (d^{(n)} + d_i^{(n)})\right]
 \end{aligned} \tag{7.94}$$

où N est le nombre de chemins annexes générés pour la réalisation de l'algorithme. On remarque que $\boldsymbol{\omega}_i^{(n)} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est toujours négatif alors que $\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est toujours positif.

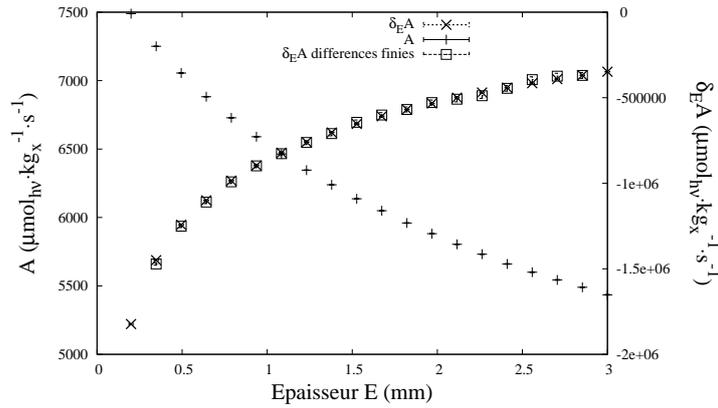


FIGURE 7.15: Valeurs de la sensibilité $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à l'abscisse $z = 0.1 \text{ mm}$ en fonction du paramètre E de la configuration 2 (voir Fig. 7.13) dans laquelle : la concentration en biomasse est $C_x = 1 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$, $\sigma_a = 80 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, $\sigma_d = 80 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, la fonction de phase est isotrope, la réflectivité est $\rho^{\mathcal{R}} = 1$ et la paroi \mathcal{F} émet une densité surfacique de flux $q_{\Gamma} = 25 \mu\text{mol}_{\text{hv}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Résultats obtenus pour 10^6 réalisations de l'algorithme de Monte Carlo présenté à la section 7.4.2. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus par différence finie à partir de deux calculs de \mathcal{A} pour deux valeurs de E .

Résultats. La figure 7.15 présente les résultats de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ obtenus pour 10^6 réalisations de l'algorithme ci-dessus, en fonction du paramètre géométrique E de la configuration radiative Fig. 7.13. Nous ne rencontrons pas de difficulté numérique particulière (ni de convergence, ni pour l'échantillonnage des chemins) : l'écart-type relatif est d'environ 0.2% et le temps de calcul est d'environ 1 seconde pour chaque valeur de E étudiée. Afin de valider ces résultats, ils sont comparés aux sensibilités obtenues par différence finie grâce au calcul de deux valeurs de \mathcal{A} , pour deux valeurs de E . L'évaluation de \mathcal{A} est obtenue grâce à la même procédure d'échantillonnage que celle présentée ici, en considérant la contribution à \mathcal{A} des chemins principaux.

7.4.3 Configuration 3 : couplage avec le modèle du gradient spatial de luminance dans le cadre de la déformation d'une paroi réfléchissante

Dans la section précédente, nous étions déjà dans le cadre de la déformation d'une paroi réfléchissante. Dans une telle situation, le modèle de sensibilité est couplé au modèle du

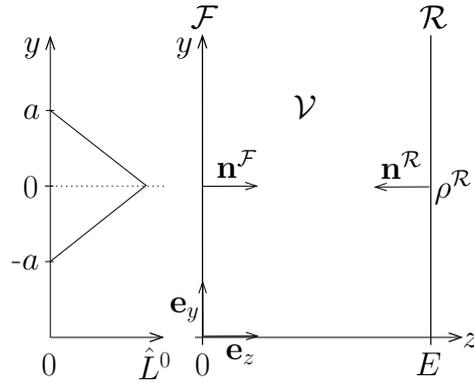


FIGURE 7.16: Configuration 3 : configuration bidimensionnelle de paramètre géométrique E . La paroi \mathcal{F} émet un rayonnement Lambertien de luminance \hat{L}^0 inhomogène : $\hat{L}^0(y) = H[-a < y \leq 0](1 + y/a) + H[0 < y < a](1 - y/a)$, où a est un paramètre libre et $H[\]$ est la fonction échelon qui prend la valeur 1 si la condition entre parenthèses est satisfaite et 0 sinon ; \mathcal{F} est non-réfléchissante. La paroi \mathcal{R} est non-émettrice et réfléchissante spéculaire ; elle est soumise à la déformation. Le volume réactionnel \mathcal{V} est un milieu homogène diffusant et absorbant ; il n'y a pas d'émission dans le volume.

gradient spatial de luminance $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ (voir la condition aux limites Eq. 7.81). Nous avons dans un premier temps simplifié l'étude de ce problème en nous plaçant dans une configuration radiative monodimensionnelle pour laquelle $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ était nul à la paroi. Nous étudions ici une configuration radiative multidimensionnelle pour laquelle $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ est non-nul à la paroi, ce qui va nous amener à traiter ce terme de couplage, c'est-à-dire à construire un modèle du gradient spatial (l'équation d'évolution de $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ dans le milieu, ainsi que ses conditions aux limites) et à résoudre ce modèle par la méthode de Monte Carlo. La démarche générale que nous suivons ici pour la construction de ce modèle est identique à celle suivie pour la construction du modèle de s_E dans les sections précédentes. Cependant, comme nous l'avons vu à la section 7.3, l'écriture des conditions aux limites est une difficulté significative lors d'une telle construction. Afin d'illustrer et de tester simplement la proposition que nous faisons dans ce chapitre, nous étudions la configuration radiative bidimensionnelle de la figure 7.16, pour laquelle l'écriture des conditions aux limites sur $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ ne pose aucune difficulté particulière.

Dans cette configuration, le modèle de la luminance est l'équation de transfert radiatif

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.95)$$

avec les conditions aux limites

- A la surface \mathcal{F} :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \equiv \hat{L}^0(y) = H[-a < y \leq 0](1 + y/a) + H[0 < y < a](1 - y/a) \quad (7.96)$$

pour $\mathbf{x} \in \mathcal{F}$, $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{F}}$ est la normale entrante au point \mathbf{x} considéré.

- A la surface \mathcal{R} :

$$\hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \quad \text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \quad \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.97)$$

où $\mathbf{n}^{\mathcal{R}}$ est la normale entrante au point \mathbf{x} considéré.

Le terme de couplage $\boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ qui apparaît dans la condition à la limite Eq. 7.81 sur $s_E(\mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega})$ est le produit scalaire entre la projection de la direction $\boldsymbol{\omega}$ sur la surface \mathcal{R} (notée $\boldsymbol{\omega}_{\parallel}$) et le gradient de la luminance par rapport à la position \mathbf{r}_{\parallel} appartenant à la surface \mathcal{R} (notée $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$). Dans la configuration de la figure 7.16,

$$\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L} = \mathbf{e}_y \partial_y \hat{L} \quad (7.98)$$

où $\partial_y \hat{L}$ est la dérivée partielle de la luminance par rapport à l'abscisse y . On a donc

$$\boldsymbol{\omega}_{\parallel} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L} = (\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{e}_y) \partial_y \hat{L} \quad (7.99)$$

Nous allons donc construire le modèle de la grandeur mésoscopique $\partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega})$ (où la position \mathbf{x} est une fonction de l'abscisse y). Son équation d'évolution est simplement obtenue en dérivant l'équation de transfert radiatif Eq. 7.95 portant sur \hat{L} par rapport à y , ce qui donne la même équation de transfert radiatif portant cette fois sur $\partial_y \hat{L}$:

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} \partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} \partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.100)$$

Les conditions aux limites sur $\partial_y \hat{L}$ sont ici facilement obtenues en dérivant les conditions aux limites sur \hat{L} (voir Eqs. 7.96 et 7.97) :

- A la surface \mathcal{F} :

$$\begin{aligned} \partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) \equiv \partial_y \hat{L}^0(y) &= H[-a < y \leq 0] (1/a) + H[0 < y < a] (-1/a) \\ &\text{pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \end{aligned} \quad (7.101)$$

- A la surface \mathcal{R} :

$$\partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = \rho^{\mathcal{R}} \partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \quad (7.102)$$

Dans le cadre de la configuration 3, la résolution numérique par la méthode de Monte Carlo du modèle de $\partial_y \hat{L}$ ne pose aucune difficulté particulière de mise en œuvre puisque

- la condition de réflexion spéculaire Eq. 7.102 à la paroi \mathcal{R} est déjà traitée pour la résolution des modèles sur \hat{L} et sur s_E ,
- l'émission en \mathcal{F} est fixée,
- aucun couplage avec un autre modèle n'apparaît : le modèle de $\partial_y \hat{L}$ est indépendant.

Nous pouvons donc nous concentrer à partir de maintenant sur la résolution du modèle de sensibilité qui s'écrit ici :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{grad}_{\mathbf{x}} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = -k_{ext} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) + \alpha_s k_{ext} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (7.103)$$

avec les conditions aux limites :

- A la surface \mathcal{F} :

$$s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) = 0 \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{F}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{F}} > 0 \quad (7.104)$$

- A la surface \mathcal{R} (voir Eq. 7.81) :

$$\begin{aligned} s_E(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}) &= \rho^{\mathcal{R}} s_E(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) - 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{k_{ext}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \\ &\quad - 2\rho^{\mathcal{R}} \frac{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{e}_y}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec}) \\ &\quad + \frac{k_d}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' p_{\Omega}(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \\ &\quad \times \left\{ H[\boldsymbol{\omega}' \in h^-] (1 + (\rho^{\mathcal{R}})^2) \hat{L}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\omega}') + H[\boldsymbol{\omega}' \in h^+] 2\rho^{\mathcal{R}} \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}'^{spec}) \right\} \\ &\quad , \text{ pour } \mathbf{x} \in \mathcal{R}, \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0 \end{aligned} \quad (7.105)$$

où h^- est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$ et h^+ est l'hémisphère correspondant à $\boldsymbol{\omega}' \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$.

Ce problème est résolu en utilisant la même procédure d'échantillonnage que dans le cas de la configuration 2 à la section 7.4.2. En effet, les modèles de $\partial_y \hat{L}$ et \hat{L} correspondent tous les deux à la même condition de réflexion spéculaire en \mathcal{R} , à la même équation de transfert dans \mathcal{V} , et à une émission fixe à la surface \mathcal{F} . De plus, les termes de couplages avec $\partial_y \hat{L}$ et \hat{L} qui apparaissent dans la condition à la limite Eq. 7.105 portent sur le même point de l'espace des phases $(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec})$. Ainsi, la contribution des termes $\hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec})$ et $\partial_y \hat{L}(\mathbf{x}, -\boldsymbol{\omega}^{spec})$ est portée par les mêmes chemins optiques. En d'autres termes, l'échantillonnage qui est nécessaire à l'estimation des couplages avec $\partial_y \hat{L}$ et \hat{L} à chaque interaction avec la paroi \mathcal{R} se fait en une seule procédure : la procédure 1 de la section 7.4.2. L'algorithme de Monte Carlo pour l'évaluation de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ est identique à celui de la section 7.4.2, en remplaçant la fonction de poids par :

$$\begin{aligned} \hat{w}_j = & H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}] \times -2 k_{ext} \left\{ \sum_{q=1}^{j-1} H[\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}] \frac{1}{\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \right\} \sigma_a \frac{\hat{L}^0(\mathbf{x}_j)}{p_{\Omega_0}} [\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} \exp[-k_a d_j] \\ & -2 H[\mathbf{x}_j \in \mathcal{F}] \left\{ \sum_{q=1}^{j-1} H[\mathbf{x}_q \in \mathcal{R}] \frac{\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{e}_y}{\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \right\} \sigma_a \frac{\partial_y \hat{L}^0(\mathbf{x}_j)}{p_{\Omega_0}} [\rho^{\mathcal{R}}]^{n_j^{\mathcal{R}}} \exp[-k_a d_j] \\ & -k_d \sigma_a \frac{1}{p_{\Omega_0}} \sum_{n=1}^N \left\{ H[\boldsymbol{\omega}_0^{(n)} \in h^+] (1 + (\rho^{\mathcal{R}})^2) + H[\boldsymbol{\omega}_0^{(n)} \in h^-] 2\rho^{\mathcal{R}} \right\} \\ & \times \frac{\hat{L}^0(\mathbf{x}_{\mathcal{F}}^{(n)})}{\boldsymbol{\omega}_i^{(n)} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}}} \exp[-k_a (d^{(n)} + d_i^{(n)})] \end{aligned} \quad (7.106)$$

où :

- \mathbf{x}_j est la position correspondant à l'"absorption" du chemin optique principal à la paroi \mathcal{F} (chemin en trait plein sur la figure 7.14).
- $\hat{L}^0(\mathbf{x}_j)$ et $\partial_y \hat{L}^0(\mathbf{x}_j)$ sont les sources à la paroi \mathcal{F} , pour l'abscisse y_j du point \mathbf{x}_j (voir Eqs. 7.96 et 7.101).
- Les \mathbf{x}_q et $\boldsymbol{\omega}_q$ sont respectivement les positions et directions de réflexion du chemin optique principal à la paroi \mathcal{R} ($\boldsymbol{\omega}_q \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} > 0$).
- $n_j^{\mathcal{R}}$ est le nombre de réflexions du chemin optique principal à la paroi \mathcal{R} , avant sa sortie du système en \mathbf{x}_j .
- d_j est la longueur du chemin optique principal.
- N est le nombre de chemins optiques annexes générés pour la réalisation de l'algorithme (un chemin annexe est généré à chaque réflexion du chemin principal avec la paroi \mathcal{R} , ils sont représentés en pointillés sur la figure 7.14).
- $d_i^{(n)}$ et $\boldsymbol{\omega}_i^{(n)}$ sont respectivement la longueur et la direction d'incidence du chemin

- optique principal lorsqu'il intersecte pour la n-ème fois la surface \mathcal{R} ($\boldsymbol{\omega}_i^{(n)} \cdot \mathbf{n}^{\mathcal{R}} < 0$).
- Suite à cette interaction, la direction $\boldsymbol{\omega}_0^{(n)}$ est générée à l'étape (1) de l'algorithme (voir Sec. 7.4.2) et cette direction sert à définir la direction de départ du n-ième chemin annexe (voir Eq. 7.92).
- $\mathbf{x}_{\mathcal{F}}^{(n)}$ est la position de \mathcal{F} correspondant à l'"absorption" du n-ième chemin optique annexe.
- $d^{(n)}$ est la longueur du n-ième chemin optique annexe.

Résultats. La figure 7.17 présente les résultats de $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ obtenus pour 10^6 réalisations de l'algorithme ci-dessus, en fonction du paramètre géométrique E de la configuration radiative Fig. 7.16. Nous ne rencontrons pas de difficulté numérique particulière (ni de convergence, ni pour l'échantillonnage des chemins) : l'écart-type relatif est d'environ 1% et le temps de calcul est d'environ 1 seconde pour chaque valeur de E étudiée. Afin de valider ces résultats, ils sont comparés aux sensibilités obtenues par différence finie grâce au calcul de deux valeurs de \mathcal{A} , pour deux valeurs de E . L'évaluation de \mathcal{A} est obtenue grâce à la même procédure d'échantillonnage que celle présentée ici, en considérant la contribution à \mathcal{A} des chemins principaux.

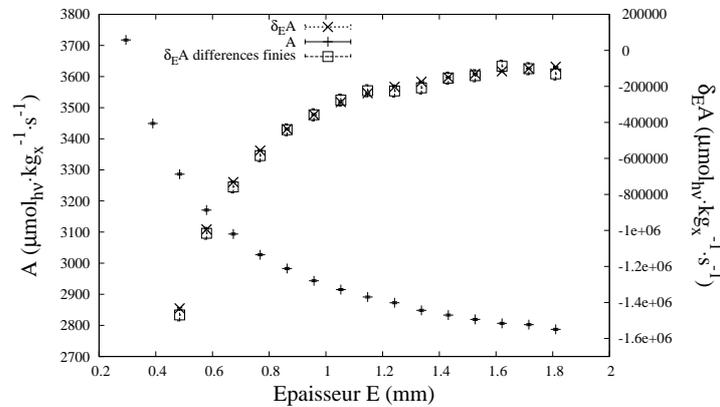


FIGURE 7.17: Valeurs de la sensibilité $\partial_E \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à l'abscisse $y = 0 \text{ mm}$ $z = 0.1 \text{ mm}$ en fonction du paramètre E de la configuration 3 (voir Fig. 7.16) dans laquelle : la concentration en biomasse est $C_x = 1 \text{ kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$, $\sigma_a = 80 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, $\sigma_d = 80 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_x^{-1}$, la fonction de phase est isotrope, la réflectivité est $\rho^{\mathcal{R}} = 1$ et la paroi \mathcal{F} émet une densité surfacique de flux $q_{\Gamma}(y) = 25 H[-a < y \leq 0] (1 + y/a) + 25 H[0 < y < a] (1 - y/a) \mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (on rappelle que $\hat{L}^0(y) = q_{\Gamma}(y)/\pi$), où $a = 0.5 \text{ mm}$. Résultats obtenus pour 10^6 réalisations de l'algorithme de Monte Carlo présenté à la section 7.4.2. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus par différence finie à partir de deux calculs de \mathcal{A} pour deux valeurs de E .

7.5 Résumé et perspectives pour l'étude des photobioréacteurs

Dans le présent chapitre, nous avons proposé d'aborder le calcul de sensibilité sous un angle différent de ce qui était jusqu'alors envisagé dans le cadre de la méthode de Monte Carlo. Cette approche nous a permis d'obtenir la sensibilité de la vitesse spécifique locale d'absorption des photons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ à la déformation géométrique d'une configuration académique représentant un premier niveau de complexité associé à l'étude du photobioréacteur Di-CoFluV (voir Sec. 7.4.1), alors qu'il était à notre connaissance impossible d'atteindre ce résultat avant le début de cette thèse. La mise en œuvre des algorithmes de Monte Carlo correspondants n'a posé aucun problème particulier dans les situations testées : les temps de calcul sont tout à fait acceptables et les convergences sont très bonnes (même meilleures que celle associée à l'estimation de la grandeur), ce qui est remarquable compte tenu des difficultés de convergence que nous rencontrions avec les autres approches [141, 140, 142].

La méthode proposée passe par la construction de la formulation locale d'un modèle de sensibilité, à partir du problème de transfert radiatif formulé en luminance. Nous avons pour cela suivi les trois étapes suivantes :

- (1) La formulation locale de l'équation de transfert radiatif est dérivée par rapport au paramètre géométrique étudié. Cette étape ne pose aucun problème particulier et l'équation d'évolution du champ mésoscopique de sensibilité ainsi obtenue est identique à l'équation de transfert radiatif dans le champ : la sensibilité obéit à la même physique (transport, diffusion, absorption) que la grandeur.
- (2) La dérivation des conditions aux limites du modèle de sensibilité fait l'objet d'une procédure calculatoire spécifique qui nous permet d'obtenir des expressions incluant des termes de couplage avec d'autres modèles (luminance, gradient spatial de luminance, etc).
- (3) Lorsqu'ils impliquent des dérivations, les modèles intervenant dans les couplages aux parois sont construits en suivant les étapes (1) et (2). Nous avons par exemple été amenés à construire un modèle de la dérivée spatiale de la luminance à la section 7.4.3.

La question du calcul de sensibilité est ainsi ramenée à la résolution d'un nouveau problème de transfert radiatif (le modèle de sensibilité), qui obéit à la même physique que la luminance. Nous avons montré comment ce problème pouvait être résolu par la méthode de Monte Carlo, avec des algorithmes consistant en un ensemble de procédures "classiques" d'échantillonnage de chemins de diffusion multiple. La seule originalité vient du traitement des couplages aux parois : on suit un chemin optique qui se sépare en plusieurs branches à chaque interaction

avec une paroi soumise à la déformation géométrique (voir Fig 7.14). La méthode que nous proposons dans ce chapitre pour le calcul des sensibilités géométriques comprend donc deux étapes distinctes :

- (a) La construction du modèle de sensibilité (équation et conditions aux limites), ainsi que la construction des modèles sur les grandeurs impliquées dans les couplages aux parois.
- (b) La résolution de ce modèle (qui est un problème de transfert radiatif) par la méthode de Monte Carlo.

Dans les trois configurations traitées, nous avons réussi à mettre en œuvre les deux étapes (a) et (b) pour un ensemble de problèmes correspondant à :

- des parois planes non-émettrices,
- une translation colinéaire à la normale de ces parois.

Cette première expérience permet déjà de dessiner une organisation du travail à venir, en vue du développement d'un outil adapté à l'étude et à l'optimisation des photobioréacteurs. Il faudra pour cela élargir notre étude à d'autres types de parois et d'autres types de déformations. Il sera notamment nécessaire d'adopter un formalisme et un langage rigoureux associés à l'étude des déformations géométriques (sûrement issu des mathématiques). Afin d'illustrer cette nécessité, prenons par exemple le cas de la configuration 1, dont la déformation est représentée à la figure 7.3.c. Dans toutes les discussions, ce que nous avons défini localement comme étant une translation colinéaire à la normale est aussi, à l'échelle du système, une homothétie consistant en une multiplication des longueurs de la paroi \mathcal{R} , tout en conservant ses proportions. Y a-t-il derrière cette propriété géométrique une source de simplification qui, sans que nous l'ayons identifiée, a rendu possible nos développements et notre mise en œuvre ? En dehors des homothéties, aurions-nous abouti à un échec en l'état actuel de notre maîtrise technique ? Nous ne le pensons pas, mais de nombreuses démonstrations restent à faire dans cet esprit et celles-ci seront d'autant plus convaincantes que nous les mettrons en relation avec des concepts et des formulations géométriques plus avancées. Une première tentative dans cette direction, basée sur la définition d'un champ de la vitesse spécifique locale de déformation à la paroi, est présentée dans l'annexe E. La prochaine étape consistera bien sûr à confronter cette approche à une littérature mathématique adaptée, de façon à faire évoluer la procédure calculatoire (2) vers une écriture plus générale des conditions aux limites, autorisant ainsi une meilleure prise de recul quant aux familles de déformations géométriques que nous sommes déjà capables de traiter, et celles qui nécessiteront un travail plus approfondi.

Au stade actuel, nous pouvons déjà affirmer que les caractéristiques des parois qui ont une influence majeure sur le calcul de sensibilité sont :

- L'émission. Nous traitons à l'annexe E l'émission des parois et, pour la famille de déformations étudiées, nous ne rencontrons pas de difficultés particulières en appliquant la démarche du présent chapitre. De manière plus générale, nous ne voyons pas de raison pour que cette propriété soit bloquante.
- La courbure. A partir de la procédure calculatoire (2) (voir liste ci-dessus et Sec. 7.2), nous obtenons, dans l'annexe E, les conditions aux limites d'une surface courbée soumise à une déformation. Ces conditions aux limites font apparaître de nouveaux termes de couplage qui nécessiteront une attention particulière lors de la mise en œuvre de l'étape (b), comme par exemple l'apparition de sources directionnelles à la paroi (une émission rasante contenue dans le plan tangent à la surface). Dans le cadre de l'étude du photobioréacteur DiCoFluV, lors du calcul de la sensibilité au rayon des fibres, cela implique d'estimer par la méthode de Monte Carlo le bilan entre un "capteur ponctuel" (ici le point du volume réactionnel auquel nous estimons $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$) et les sources directionnelles situées sur les mille fibres optiques. Il sera alors nécessaire d'employer une des nombreuses techniques existantes pour l'estimation du bilan entre un capteur ponctuel et une source directionnelle.
- La réflexion. Nous avons montré que l'ajout d'une condition de réflexion fait apparaître un couplage avec le modèle du gradient spatial de luminance $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$. Nous avons réussi à mettre en œuvre le calcul de sensibilité dans la configuration 3 (Sec. 7.4.3), pour laquelle la construction et la résolution du modèle de $\mathbf{grad}_{\mathbf{r}_{\parallel}} \hat{L}$ ne posent pas de difficultés particulières. Cependant, nous ne savons pas à quoi correspondrait l'écriture de ce modèle dans le cas de la configuration 1 (Fig. 7.10), si la paroi \mathcal{R} était réfléchissante. De plus, nous montrons dans l'annexe E que la déformation d'une paroi courbée et réfléchissante entraîne l'apparition d'un nouveau terme de couplage avec le modèle du gradient directionnel $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}} \hat{L}$. Les implications de ce couplage n'ont pour l'instant pas été étudiées, mais nous entrevoyons déjà que le modèle de $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}} \hat{L}$ soit couplé à d'autres modèles dans le champ : l'équation de transfert radiatif en $\mathbf{grad}_{\boldsymbol{\omega}} \hat{L}$ fait apparaître des termes sources dont l'expression fait au moins apparaître un gradient spatial.

Nous pensons donc que la prochaine étape de mise en œuvre pour l'étude du photobioréacteur DiCoFluV sera le calcul de la sensibilité au rayon des fibres optiques, dans une situation où l'axe des fibres reste fixe et en négligeant leur réflectivité. Nous disposons déjà de l'expression des conditions aux limites dans cette situation (voir annexe E), le modèle de

sensibilité n'est couplé qu'à la luminance, et de nombreuses techniques existent déjà pour évaluer par la méthode de Monte Carlo la contribution des sources directionnelles qui apparaissent alors à la surface des fibres.

Conclusion

L'analyse radiative des photobioréacteurs est identifiée comme étant la clé d'une conception efficace et d'une utilisation optimale du procédé, en vue de leur futur utilisation à l'échelle industrielle. Pour cela, il faudra à terme développer une compréhension globale qui soit suffisamment synthétique pour participer à un raisonnement intuitif sur l'optimisation des photobioréacteurs, tout en tenant compte de chacun des mécanismes mis en jeu à différents temps caractéristiques et différentes échelles : l'échelle du micro-organisme photosynthétique (chaîne réactionnelle de la photosynthèse et interaction individuelle avec le rayonnement visible), l'échelle de l'élément de volume (cinétique locale de la photosynthèse et propriétés radiatives spectrales du milieu continu équivalent) et l'échelle du réacteur (couplage du transfert radiatif à la cinétique de production). Cette analyse n'est pas triviale car, alors que le champ de rayonnement détermine la vitesse locale de production par photosynthèse, il est distribué de manière très hétérogène au sein du volume réactionnel et résulte du transfert de rayonnement dans un milieu diffusant et absorbant (la suspension de micro-organismes) qui est contenu dans un réacteur dont la géométrie et les propriétés de surfaces peuvent être relativement complexes. Il en résulte la nécessité de construire cette analyse dans un cadre collaboratif pluridisciplinaire impliquant notamment les communautés du rayonnement et du génie des procédés.

Notre contribution a avant tout été de s'approprier les thématiques scientifiques respectives de ces deux communautés dont la rencontre est à l'origine de la présente thèse et d'avoir réussi à maintenir un contexte scientifique riche qui laisse entrevoir à ce jour de nombreuses perspectives. Ce travail a permis d'une part, de proposer une approche de modélisation radiative des photobioréacteurs dans toute leur complexité, en association avec une démarche de mise en œuvre numérique qui nous permet, au terme de cette thèse, de disposer d'outils de simulation et d'analyse à l'échelle du procédé, et d'autre part, de proposer des images simples permettant d'avancer vers une conceptualisation de l'objet d'étude. Pour cela, notre posture a consisté à assumer l'ambition d'une analyse partant de l'étude de l'interaction électromagnétique de la lumière visible avec des particules dont les types d'hétérogénéités,

de tailles et de formes mettent encore souvent en défaut les méthodes classiques, pour aller jusqu'à l'étude des transferts radiatifs en diffusion multiple anisotrope dans des géométries complexes telles que celle du prototype DiCoFluV. Néanmoins, devant la complexité de la tâche il est évident que de très nombreux maillons de notre chaîne de modélisation et de mise en œuvre nécessitent encore un travail de recherche considérable avant d'arriver à un niveau de maturité qui puisse s'approcher des objectifs annoncés.

Cette approche ambitieuse consistant en l'établissement de modèles de connaissance du procédé, systématiquement associé à la mise en exergue des limites liées à notre appréhension des différentes problématiques, a rendu possible l'échange scientifique entre les équipes de l'Institut Pascal et des laboratoires LAPLACE/RAPSODEE. Nous espérons que le présent manuscrit reflète le plus fidèlement possible la richesse de ce travail pluridisciplinaire et l'implication des chercheurs qui l'ont mené. Cette interaction a déjà, au cours de ces trois années de thèse, apporté une contribution significative à la communauté du génie des photobioréacteurs, à travers une analyse radiative poussée de notre objet d'étude, et a aussi apporté une contribution non-négligeable aux spécialistes de la méthode de Monte Carlo, à travers les pistes que nous ouvrons pour le traitement des non-linéarités et pour le calcul des sensibilités géométriques. A ce niveau, l'interaction entre les deux communautés est particulièrement riche car les problématiques précises de mise en œuvre de la méthode de Monte Carlo qui sont soulevées par l'étude du procédé (résolution du modèle de Schiff en électromagnétisme, couplage transfert/photosynthèse à l'échelle du réacteur, optimisation géométrique du prototype DiCoFluV) ont défini l'angle sous lequel nous avons abordé un ensemble de questions qui sont en fait beaucoup plus larges (la question du traitement des non-linéarités telle que nous l'avons discutée, par exemple, peut aussi être vue comme une toute première étape pour aller vers la résolution de problèmes de transport particulaire non-linéaire).

De nombreuses questions communes aux équipes de l'Institut Pascal, du laboratoire LAPLACE et du centre RAPSODEE restent encore ouvertes : l'utilisation d'une analyse dans l'espace des chemins optiques pour l'étude du procédé (voir [115, 114], une thèse est en ce moment en cours sur cette thématique [116]) de même que la question du calcul des sensibilités aux paramètres géométriques du prototype DiCoFluV par la méthode de Monte Carlo reste pour l'instant à un stade exploratoire (une thèse est en ce moment en cours sur l'application du calcul de sensibilité à l'optimisation des centrales solaires thermiques à concentration [145]). De la même façon, des perspectives nouvelles de collaborations devraient pouvoir s'engager sur la base du travail d'appropriation et de mise en œuvre des méthodes asymptotiques d'électromagnétisme présenté aux chapitres 2 et 3 ainsi que dans [1]. Des travaux préliminaires ont déjà été engagés avec les équipes de l'axe PHOTON de l'Institut

Pascal (une thèse débute actuellement en collaboration l'axe GePEB du même institut) et avec Laurent Pilon de l'UCLA (University of California, Los Angeles). Nous comptons par ailleurs tenter d'initier une interaction avec les équipes de l'Institut Fresnel (Marseille, UMR 7249), du CETHIL (Lyon, UMR 5008) [106] et du groupe GRE du laboratoire LAPLACE.

A la fin de cette thèse, nous disposons donc d'un ensemble d'outils flexibles qui correspondent à des capacités d'analyse supérieures à celles dont nous disposions au départ. Ils incluent la détermination des propriétés radiatives spectrales des micro-organismes photosynthétiques (avec une attention toute particulière sur l'obtention des fonctions de phase), la résolution des transferts radiatifs en diffusion multiple dans des photobioréacteurs de géométries quelconques et enfin, le calcul de la moyenne des cinétiques de production de la photosynthèse sur l'ensemble du volume réactionnel. Ces outils de simulation mettent à profit les développements les plus récents autour de la méthode de Monte Carlo, tant sur le plan informatique que sur le plan algorithmique : formulation intégrale, calcul de sensibilité, algorithmes à zero-variance. Ceci permet entre autres un calcul simultané de la productivité d'un photobioréacteur et de ses sensibilités à de nombreux paramètres, le tout avec une totale indépendance des algorithmes de Monte Carlo pour le suivi de rayon et de la modélisation géométrique du procédé. Ainsi, cet outil est très adapté à une intégration, à terme, dans une procédure numérique de recherche d'optimum (basée sur la répétition d'un grand nombre de simulations pour différents jeux de paramètres) au sein de laquelle le balayage de l'espace des paramètres pourra être orienté par l'information sur les sensibilités (pour celles dont nous disposons), et où l'exploration d'un espace de paramètres géométriques implique seulement la mise à jour d'un fichier spécifiant le design simulé, sans avoir à modifier d'autres parties du code. Ce point constitue une contribution significative de notre travail à la communauté des ingénieurs et des chercheurs du génie des photobioréacteurs. Cependant, ce type d'outils ne suffit pas à lui seul à répondre à la question de l'analyse des photobioréacteurs. En effet, il s'agit aussi d'être en mesure de raisonner sur un objet d'étude concret dont la complexité est telle que même si l'on disposait d'une chaîne de modélisation parfaitement aboutie, cela ne suffirait pas à développer une pensée du problème et un intuitif nécessaire à une réflexion fine sur l'optimisation des photobioréacteurs. A ce niveau, l'analyse radiative des photobioréacteurs devra à terme être en mesure de proposer des images simples de la physique du transfert (notamment en diffusion multiple) qui soient à la fois compatibles avec un accès direct à des considérations d'optimisation et cohérentes avec la compréhension actuelle des phénomènes à toutes les échelles du procédé. Cette question va au-delà de notre étude, mais elle a constitué une motivation forte qui nous a guidés, même dans les plus techniques de nos actes, et nous a menés à nous appuyer sur les approximations P1 et de la diffusion simple afin de proposer une lecture intuitive de la physique du transport dans les photobioréacteurs. Nous apportons

aussi une contribution importante dans ce domaine à travers la proposition d'une représentation visuelle synthétique des couplages à l'échelle du procédé (voir Sec. 1.2.6.2). Cette interprétation des couplages permet de masquer l'information spatiale (qui est en grande partie responsable de la difficulté qu'il y a à penser le procédé) et de ne raisonner qu'avec la distribution des valeurs de la vitesse spécifique d'absorption des photons, qui contient toute l'information dont nous avons besoin. Une perspective importante de notre travail sera de mettre à profit les capacités d'analyse de cette représentation dans le cadre d'une réflexion générale sur l'intensification des photobioréacteurs, en s'appuyant sur la nécessaire obtention de résultats expérimentaux (une thèse débute actuellement à l'Institut Pascal sur les photobioréacteurs à éclairage interne [146]).

Enfin, en ce qui concerne les perspectives applicatives de notre travail, on mentionnera que la démarche et les outils que nous proposons peuvent aussi être utilisés de manière directe pour l'étude des systèmes photoréactifs dans leur ensemble. En effet, la transposition de notre travail à l'étude des photoréacteurs catalytiques hétérogènes pour la production de dihydrogène (une thèse débute actuellement à l'Institut Pascal sur cette thématique [147]) ou pour la dépollution de l'eau [148] est directe. Les catalyseurs ne sont plus alors des micro-organismes photosynthétiques mais deviennent des particules solides comme des semi-conducteurs ou des complexes macromoléculaires bio-inspirés. Notre démarche de modélisation s'applique donc à l'identique mais l'interaction entre le rayonnement et ces catalyseurs demandera un traitement spécifique différent de celui des micro-organismes. De la même façon, on retrouve des problématiques similaires lors de la mise en œuvre de réactions en phase organique au sein de photoréacteurs (systèmes di-ou tri-phasiques : liquide-liquide, gaz-liquide, etc) [18]. Enfin, l'application à l'étude des cellules photo-électrochimiques est sans doute la moins directe car les catalyseurs y sont greffés sur une photo-anode nanostructurée [149] (une thèse débute actuellement à l'Institut Pascal sur cette thématique [150]). Dans ce cas, le couplage à la cinétique de production a directement lieu au sein du revêtement de l'anode et la question n'est plus celle de la résolution du transfert radiatif dans une suspension de catalyseurs mais celle de l'étude de l'absorption d'un champ électromagnétique dans un matériau nanostructuré aux propriétés optiques complexes.

Bibliographie

- [1] J. F. Cornet. *Procédés limités par le transfert de rayonnement en milieu hétérogène : étude des couplages cinétiques et énergétiques dans les photobioréacteurs par approche thermodynamique*. Habilitation à Diriger des Recherches, Université Blaise Pascal Clermont-Ferrand II, 2007.
- [2] J. F. Cornet, C. G. Dussap, and G. Dubertret. A structured model for simulation of cultures of the cyanobacterium *spirulina platensis* in photobioreactors : I. coupling between light transfer and growth kinetics. *Biotechnology and Bioengineering*, 40(7) :817–825, 1992.
- [3] J. F. Cornet, C. G. Dussap, P. Cluzel, and G. Dubertret. A structured model for simulation of cultures of the cyanobacterium *spirulina platensis* in photobioreactors : II. identification of kinetic parameters under light and mineral limitations. *Biotechnology and Bioengineering*, 40(7) :826–834, 1992.
- [4] J. F. Cornet, C. G. Dussap, and J. B. Gros. Conversion of radiant light energy in photobioreactors. *AIChE Journal*, 40(6) :1055–1066, 1994.
- [5] J. F. Cornet, C. G. Dussap, J. B. Gros, C. Binois, and C. Lasseur. A simplified monodimensional approach for modeling coupling between radiant light transfer and growth kinetics in photobioreactors. *Chemical Engineering Science*, 50(9) :1489–1500, 1995.
- [6] J. F. Cornet and C. G. Dussap. A simple and reliable formula for assessment of maximum volumetric productivities in photobioreactors. *Biotechnology Progress*, 25(2) :424–435, 2009.
- [7] J. F. Cornet. Calculation of optimal design and ideal productivities of volumetrically lightened photobioreactors using the constructal approach. *Chemical Engineering Science*, 65(2) :985–998, 2010.
- [8] S. I. Allakhverdiev, V. Thavasi, V. D. Kreslavski, S. K. Zharmukhamedov, V. V. Klimov, S. Ramakrishna, D. A. Los, M. Mimuro, H. Nishihara, and Carpentier R.

- Photosynthetic hydrogen production. *Journal of Photochemistry and Photobiology C : Photochemistry Reviews*, 11 :87–99, 2010.
- [9] T. M. Mata, A. A. Martins, and Caetano N. S. Microalgae for biodiesel production and other applications : A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 14(1) :217–232, 2010.
- [10] Z. Khan, P. Bhadouria, and P. S. Bisen. Nutritional and therapeutic potential of spirulina. *Current Pharmaceutical Biotechnology*, 6 :373–379(7), October 2005.
- [11] J. R. Bolton and D. O. Hall. The maximum efficiency of photosynthesis. *Photochemistry and Photobiology*, 53(4) :545–548, 1991.
- [12] Berberoglu H. Pilon L. and Kandilian R. Radiation transfer in photobiological carbon dioxide fixation and fuel production by microalgae. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 112(17) :2639–2660, 2011.
- [13] Suh I. S. and Lee S. B. A light distribution model for an internally radiating photobioreactor. *Biotechnology and Bioengineering*, 82(2) :180–189, 2003.
- [14] Schmidt K. Csogor Z., Herrenbauer M. and Posten C. Light distribution in a novel photobioreactor - modelling for optimization. *Journal of Applied Phycology*, 13 :325–333, 2001.
- [15] E. Franco-Lara, J. Havel, F. Peterat, and D. Weuster-Botz. Model-supported optimization of phototrophic growth in a stirred-tank photobioreactor. *Biotechnology and Bioengineering*, 95(6) :1177–1187, 2006.
- [16] H. Takache, J. Pruvost, and J. F. Cornet. Kinetic modeling of the photosynthetic growth of *Chlamydomonas reinhardtii* in a photobioreactor. *Biotechnology Progress*, 28(3) :681–692, 2012.
- [17] S. Aiba. Growth kinetics of photosynthetic micro-organisms. *Adv. Biochem. Eng.*, 23 :85–156, 1982.
- [18] A. E. Cassano, C. A. Martin, R. J. Brandi, and O. M. Alfano. Photoreactor analysis and design : fundamentals and applications. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34 :2155–2201, 1995.
- [19] T. Pullerits and V. Sundström. Photosynthetic light-harvesting pigment-protein complexes : Toward understanding how and why. *Accounts of Chemical Research*, 29(8) :381–389, 1996.
- [20] G. Paillotin. *Etude theorique des modes de création, de transport et d'utilisation de l'énergie d'excitation électronique chez les plantes superieures*. Thèse de Doctorat, Université de Paris-Sud, centre d'Orsay, 1974.

-
- [21] STARWest. www.starwest.ups-tlse.fr.
- [22] L. Pottier, J. Pruvost, J. Deremetz, J. F. Cornet, J. Legrand, and C. G. Dussap. A fully predictive model for one-dimensional light attenuation by *chlamydomonas reinhardtii* in a torus photobioreactor. *Biotechnol. Bioeng.*, 91(5) :569–582, 2005.
- [23] H. Takache. *Caractérisation et modélisation de la réponse biologique aux régimes fluctuants de lumière induits par l'hydrodynamique en photobioréacteurs*. Thèse de Doctorat, Université de Nantes, 2010.
- [24] H. Takache, G. Christophe, J.-F. Cornet, and J. Pruvost. Experimental and theoretical assessment of maximum productivities for the microalgae *chlamydomonas reinhardtii* in two different geometries of photobioreactors. *Biotechnology Progress*, 26(2) :431–440, 2010.
- [25] M. Cuaresma, M. Janssen, E. J. van den End, C. Vílchez, and R. H. Wijffels. Luminostat operation : A tool to maximize microalgae photosynthetic efficiency in photobioreactors during the daily light cycle? *Bioresource Technology*, 102 :7871–7878, 2011.
- [26] H. Berberoglu, L. Pilon, and A. Melis. Radiation characteristics of *chlamydomonas reinhardtii* cc125 and its truncated chlorophyll antenna transformants *tla1*, *tlaX* and *tla1-cw+*. *International Journal of Hydrogen Energy*, 33(22) :6467–6483, 2008.
- [27] H. Berberoglu, P. S. Gomez, and L. Pilon. Radiation characteristics of *botryococcus braunii*, *chlorococcum littorale*, and *chlorella* sp. used for CO₂ fixation and biofuel production. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(17) :1879–1893, 2009.
- [28] B. Fernandes, G. Dragone, J. Teixeira, and A. Vicente. Light regime characterization in an airlift photobioreactor for production of microalgae with high starch content. *Applied Biochemistry and Biotechnology*, 161 :218–226, 2010.
- [29] Suh I. S. and Lee S. B. Optimization of radiator position in an internally radiating photobioreactor : A model simulation study. *J. Microbiol. Biotechnol.*, 13 :789–793, 2003.
- [30] Suh I. S. and Lee S. B. Cultivation of a cyanobacterium in an internally radiating air-lift photobioreactor. *Journal of Applied Phycology*, 13 :381–388, 2001.
- [31] W. W. Su, J. Li, and N. S. Xu. State and parameter estimation of microalgal photobioreactor cultures based on local irradiance measurement. *Journal of Biotechnology*, 105(1-2) :165–178, 2003.

-
- [32] B. Farges, C. Laroche, J. F. Cornet, and C. G. Dussap. Spectral kinetic modeling and long-term behavior assessment of arthrospira platensis growth in photobioreactor under red (620 nm) light illumination. *Biotechnology Progress*, 25(1) :151–162, 2009.
- [33] H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Dover Publication, Inc., 1981.
- [34] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. New York, Wiley-Interscience, 1983.
- [35] M. I. Mishchenko, J. W. Hovenier, and L. D. Travis. *Light scattering by nonspherical particles : theory, measurements, and applications*. Academic Press, 2000.
- [36] M.I. Mishchenko, L.D. Travis, and A.A. Lacis. *Scattering, absorption, and emission of light by small particles*. Cambridge Univ Pr, 2002.
- [37] S. Bernard, T. A. Probyn, and A. Quirantes. Simulating the optical properties of phytoplankton cells using a two-layered spherical geometry. *Biogeosciences Discussions*, 6(1) :1497–1563, 2009.
- [38] T. T. Wu, J. Y. Qu, and M. Xu. Unified mie and fractal scattering by biological cells and subcellular structures. *Optics Letters*, 32(16) :2324–2326, 2007.
- [39] W. Choi, C.-C. Yu, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, R.R. Dasari, and M. S. Feld. Field-based angle-resolved light-scattering study of single live cells. *Optics Letters*, 33(14) :1596–1598, 2008.
- [40] L. Kolokolova and B. A. S. Gustafsonm. Scattering by inhomogeneous particles : microwave analog experiments and comparison to effective medium theories. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 70(4-6) :611–625, 2001.
- [41] Z. P. Wang and Y. Zhao. Morphological reversion of spirulina (arthrospira) platensis (cyanophyta) : from linear to helical. *Journal of Phycology*, 41(3) :622–628, 2005.
- [42] N. Hoepffner and S. Sathyendranath. Effect of pigment composition on absorption properties of phytoplankton. *Marine Ecology Progress Series*, 73(1) :11–23, 1991.
- [43] A. Morel and A. Bricaud. Theoretical results concerning light absorption in a discrete medium, and application to specific absorption of phytoplankton. *Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers*, 28(11) :1375–1393, 1981.
- [44] A. Bricaud and A. Morel. Light attenuation and scattering by phytoplanktonic cells : a theoretical modeling. *Appl. Opt.*, 25(4) :571–580, 1986.
- [45] R. R. Bidigare, M. E. Ondrusek, J. H. Morrow, and D. A. Kiefer. In-vivo absorption properties of algal pigments. volume 1302, pages 290–302. SPIE, 1990.

-
- [46] B. Wozniak, J. Dera, D. Ficek, R. Majchrowski, S. Kaczmarek, M. Ostrowska, and O. I. Koblenz-Mishke. Model of the in vivo spectral absorption of algal pigments. part 1. mathematical apparatus. *Oceanologia*, 42 (2) :177–190, 2000.
- [47] Roels J. A. *Kinetics and energetics in biotechnology*. Elsevier Biomedical Press, Amsterdam, 1983.
- [48] E. Aas. Refractive index of phytoplankton derived from its metabolite composition. *Journal of Plankton Research*, 18(12) :2223–2249, 1996.
- [49] P. J. Wyatt. Differential light scattering : a physical method for identifying living bacterial cells. *Applied Optics*, 7(10) :1879–1896, 1968.
- [50] P. J. Wyatt. Cell wall thickness, size distribution, refractive index ratio and dry weight content of living bacteria (*staphylococcus aureus*). *Nature*, 226(5242) :277–279, April 1970.
- [51] P. J. Wyatt. Light scattering in the microbial world. *Journal of Colloid and Interface Science*, 39(3) :479–491, 1972.
- [52] V. Tychinsky and A. Tikhonov. Interference microscopy in cell biophysics. 1. principles and methodological aspects of coherent phase microscopy. *Cell Biochemistry and Biophysics*, 58 :107–116, 2010.
- [53] V. Tychinsky and A. Tikhonov. Interference microscopy in cell biophysics. 2. visualization of individual cells and energy-transducing organelles. *Cell Biochemistry and Biophysics*, 58 :117–128, 2010.
- [54] V. Tychinsky. The metabolic component of cellular refractivity and its importance for optical cytometry. *Journal of Biophotonics*, 2(8-9) :494–504, 2009.
- [55] N. Lue, G. Popescu, T. Ikeda, R. R. Dasari, K. Badizadegan, and M. S. Feld. Live cell refractometry using microfluidic devices. *Optics Letters*, 31(18) :2759–2761, 2006.
- [56] W. Choi, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, S. Oh, N. Lue, R. R. Dasari, and M. S. Feld. Tomographic phase microscopy. *Nat Meth*, 4(9) :717–719, September 2007.
- [57] Y. Park, M. Diez-Silva, G. Popescu, G. Lykotrafitis, W. Choi, M. S. Feld, and S. Suresh. Refractive index maps and membrane dynamics of human red blood cells parasitized by plasmodium falciparum. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 105(37) :13730–13735, 2008.
- [58] A. Loparev, A. Kretushev, and V. Tychinsky. Coherent phase microscopy : a new method of identification of intracellular structures based on their optical and morphometric parameters. *Biofizika*, 53(2) :299–304, 2008.

-
- [59] R. Cisek, L. Spencer, N. Prent, D. Zigmantas, G. Espie, and V. Barzda. Optical microscopy in photosynthesis. *Photosynthesis Research*, 102 :111–141, 2009. 10.1007/s11120-009-9500-9.
- [60] E. H. Harris. *The Chlamydomonas Sourcebook : Introduction to Chlamydomonas and its laboratory use. Second ed.* Academic Press : San Diego, California, USA, 2009.
- [61] P. S. Tuminello, E. T. Arakawa, B. N. Khare, J. M. Wrobel, M. R. Querry, and M. E. Milham. Optical properties of bacillus subtilis spores from 0.2 to 2.5 μm . *Applied Optics*, 36(13) :2818–2824, 1997.
- [62] J. M. Perrin and P. L. Lamy. On the validity of effective-medium theories in the case of light extinction by inhomogeneous dust particles. *Astrophysical Journal*, 364 :146–151, 1990.
- [63] N. V. Voshchinnikov, G. Videen, and T. Henning. Effective medium theories for irregular fluffy structures : aggregation of small particles. *Appl. Opt.*, 46(19) :4065–4072, 2007.
- [64] C. F. Bohren and L. J. Battan. Radar backscattering by inhomogeneous precipitation particles. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 37(8) :1821–1827, 1980.
- [65] C. Erlick. Effective refractive indices of water and sulfate drops containing absorbing inclusions. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 63(2) :754–763, 2006.
- [66] A. Worringen, M. Ebert, T. Trautmann, S. Weinbruch, and G. Helas. Optical properties of internally mixed ammonium sulfate and soot particles - a study of individual aerosol particles and ambient aerosol populations. *Appl. Opt.*, 47(21) :3835–3845, 2008.
- [67] S. Bernard, T. A. Probyn, and R. G. Barlow. Measured and modelled optical properties of particulate matter in the southern benguela. *South African Journal of Science*, 97(9-10) :410–420, 2001.
- [68] N. G. Van Kampen and F. Lurçat. Causalité et relations de kramers-kronig. *J. Phys. Radium*, 22(3) :179–191, 1961.
- [69] J. S. Toll. Causality and the dispersion relation : Logical foundations. *Physical Review*, 104(6) :1760–1770, 1956.
- [70] V. Lucarini. *Kramers-Kronig relations in optical materials research.* Springer, 2005.
- [71] K. R. Naqvi, M. N. Merzlyak, and T. B. Melo. Absorption and scattering of light by suspensions of cells and subcellular particles : an analysis in terms of kramers-kronig relations. *Photochem. Photobiol. Sci.*, 3 :132–137, 2004.
- [72] D. De Sousa Meneses, B. Rousseau, P. Echegut, and P. Simon. Retrieval of linear optical functions from finite range spectra. *Appl. Spectrosc.*, 61(12) :1390–1397, 2007.

-
- [73] A. H. Sihvola. *Electromagnetic mixing formulas and applications*. IEE, London, 1999.
- [74] P. Stier, J. H. Seinfeld, S. Kinne, and O. Boucher. Aerosol absorption and radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(3) :7171–7233, 2007.
- [75] O. Schmid, D. Chand, E. Karg, P. Guyon, G. P. Frank, E. Swietlicki, and M. O. Andreae. Derivation of the density and refractive index of organic matter and elemental carbon from closure between physical and chemical aerosol properties. *Environmental Science & Technology*, 43(4) :1166–1172, 2009.
- [76] P. Yang, Z. Zhang, B. A. Baum, H.-L. Huang, and Y. Hu. A new look at anomalous diffraction theory (adt) : Algorithm in cumulative projected-area distribution domain and modified adt. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 89(1-4) :421–442, 2004.
- [77] T. Nousiainen. Optical modeling of mineral dust particles : A review. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(14-16) :1261–1279, 2009.
- [78] L. Liu, M. I. Mishchenko, and W. P. Arnott. A study of radiative properties of fractal soot aggregates using the superposition t-matrix method. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 109(15) :2656 – 2663, 2008.
- [79] A. J. Baran. A review of the light scattering properties of cirrus. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(14-16) :1239–1260, 2009.
- [80] T. C. Bond and R. W. Bergstrom. Light absorption by carbonaceous particles : An investigative review. *Aerosol Science and Technology*, 40(1) :27–67, 2006.
- [81] C. M. Sorensen. Light scattering by fractal aggregates : A review. *Aerosol Science and Technology*, 35(2) :648–687, 2001.
- [82] T. Wriedt. Light scattering theories and computer codes. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(11) :833–843, 2009.
- [83] S. Asano and M. Sato. Light scattering by randomly oriented spheroidal particles. *Applied Optics*, 19(6) :962–974, 1980.
- [84] M. I. Mishchenko and L. D. Travis. Capabilities and limitations of a current fortran implementation of the t-matrix method for randomly oriented, rotationally symmetric scatterers. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 60 :309–324, 1998.
- [85] J. Hellmers, V. Schmidt, and T. Wriedt. Improving the numerical stability of t-matrix light scattering calculations for extreme particle shapes using the nullfield method with discrete sources. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 112(11) :1679–1686, 2011.

-
- [86] M. Xu and A. Katz. Statistical interpretation of light anomalous diffraction by small particles and its applications in bio-agent detection and monitoring. In *Light Scattering Reviews 3*, Springer Praxis Books, pages 27–67. 2008.
- [87] J. Q. Zhao and Y. Q. Hu. Bridging technique for calculating the extinction efficiency of arbitrary shaped particles. *Appl. Opt.*, 42(24) :4937–4945, 2003.
- [88] J. Q. Zhao, G. Shi, H. Che, and G. Cheng. Approximations of the scattering phase functions of particles. *Advances in Atmospheric Sciences*, 23 :802–808, 2006.
- [89] Dudley Bryant F., Steiber B. A., and Latimer P. Absolute optical cross sections of cells and chloroplasts. *Archives of biochemistry and biophysics*, 135 :79–108, 1969.
- [90] W. A. Farone and M. J. I. Robinson. The range of validity of the anomalous diffraction approximation to electromagnetic scattering by a sphere. *Appl. Opt.*, 7(4) :643–645, 1968.
- [91] Y. Liu, W. P. Arnott, and J. Hallett. Anomalous diffraction theory for arbitrarily oriented finite circular cylinders and comparison with exact t-matrix results. *Appl. Opt.*, 37(21) :5019–5030, 1998.
- [92] L. I. Schiff. Approximation method for high-energy potential scattering. *Physical Review*, 103(2) :443–453, Jul 1956.
- [93] Myers J. and Kratz K. A. Relation between pigment content and photosynthetic characteristics in blue green alga. *J. Gen. Physiol.*, 39 :11–22, 1955.
- [94] Bennet A. and Bogorad L. Complementary chromatic adaptation in a filamentous blue-green alga. *J. Cell Biol.*, 58 :419–435, 1973.
- [95] Strickland J. D. H. and Parsons T. R. A practical handbook of seawater analysis : Pigment analysis. *Bulletin of Fisheries Research Board of Canada*, 167, 1968.
- [96] Vernon L. P. and Garcia A. F. Pigment-protein complexes derived from *Rhodospirillum rubrum* chromatophores by enzymatic digestion. *Biochim. Biophys. Acta*, 143 :144–153, 1967.
- [97] Inoue K., Nishimura M., Nayak B. B., and Kogure K. Separation of marine bacteria according to buoyant density by use of the density-dependent cell sorting method. *Applied and environmental microbiology*, 73 :1049–1053, 2007.
- [98] Bratbak G. and Dundas I. Bacterial dry matter content and biomass estimations. *Applied and environmental microbiology*, 48 :755–757, 1984.
- [99] K. F. A. Ross and E. Billing. The water and solid content of living bacterial spores and vegetative cells as indicated by refractive index measurements. *Journal of General Microbiology*, 16(2) :418–425, 1957.

-
- [100] Lambeek G., Vorenkamp E.J., and Schouten A. J. Structural study of langmuir-blodgett mono- and multilayers of poly(béta-hydroxybutyrate). *Macromolecules*, 28 :2023–2032, 1995.
- [101] F. Schötz, H. Bathelt, C. G. Arnold, and O. Schimmer. Die architektur und organisation der chlamydomonas-zelle. *Protoplasma*, 75 :229–254, 1972.
- [102] I. Thormählen, J. Straub, and U. Grigull. Refractive index of water and its dependence on wavelength, temperature, and density. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 14 :933–945, 1985.
- [103] A. Mugnai and W. J. Wiscombe. Scattering from nonspherical chebyshev particles. i : cross sections, single-scattering albedo, asymmetry factor and backscattered fraction. *Applied Optics*, 25 :1235–1244, 1986.
- [104] J. Gielis. A generic geometric transformation that unifies a wide range of natural and abstract shapes. *American Journal of Botany*, 90(3) :333–338, 2003.
- [105] Gurwich I., M. Kleiman, and N. Shiloah. Scattering from a long helix : Theory and simulation. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 109 :1392–1403, 2008.
- [106] R. Vaillon, J. M. Geffrin, C. Eyraud, O. Merchiers, P. Sabouroux, and B. Lacroix. A novel implementation of a microwave analog to light scattering measurement setup. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 112(11) :1753–1760, 2011.
- [107] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique quantique*. Herman, 2000.
- [108] C. Eckart. The approximate solution of one-dimensional wave equations. *Reviews of Modern Physics*, 20(2) :399–417, Apr 1948.
- [109] A Soulies. *Photobioréacteurs à haute productivité volumique : étude et optimisation de fonctionnement transitoire généré par un usage solaire*. Thèse de Doctorat en cours, Université de Nantes.
- [110] R. Siegel and J. R. Howell. *Thermal radiation heat transfer*. Hemisphere Pub. Corp., 1981.
- [111] K. M. Case and P. F. Zweifel. *Linear Transport Theory*. Addison-Wesley, Reading, Mass, 1967.
- [112] R. M. Goody and Y. L. Yung. *Atmospheric radiation : theoretical basis*. Clarendon Press, 1964.
- [113] P. M. Morse and H. Feshbach. *Methods of theoretical physics*. McGraw-Hill, 1953.

-
- [114] S. Blanco and R. Fournier. An invariance property of diffusive random walks. *EPL (Europhysics Letters)*, 61(2) :168, 2003.
- [115] S. Blanco and R. Fournier. Short-path statistics and the diffusion approximation. *Physical Review Letters*, 97(23) :230604, 2006.
- [116] G. Terree. *Inversion dans les Problématiques de Premier Passage en présence de Diffusion multiple : Application à la Tomographie Optique*. Thèse de Doctorat en cours, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- [117] A. Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media*. John Wiley & Sons, 1999.
- [118] D. J. Durian. Influence of boundary reflection and refraction on diffusive photon transport. *Phys. Rev. E*, 50 :857–866, 1994.
- [119] R. E. Marshak. The milne problem for a large plane slab with constant source and anisotropic scattering. *Phys. Rev.*, 72 :47–50, 1947.
- [120] V. Eymet. *Simulation Monte-Carlo et analyse en puissances nettes échangés des transferts radiatifs infrarouges avec diffusion : vers une paramétrisation dans un modèle de circulation générale atmosphérique*. Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, 2003.
- [121] R. Assaraf and M. Caffarel. Zero-variance principle for monte carlo algorithms. *Physical Review Letters*, 83(23) :4682–4685, 1999.
- [122] J. E. Hoogenboom. Zero-variance monte carlo schemes revisited. *Nuclear Science and Engineering*, 160(1) :1–22, 2008.
- [123] J. R. Howell. The monte carlo method in radiative heat transfer. *Journal of Heat Transfer*, 120(3) :547–560, 1998.
- [124] M. F. Modest. *Radiative Heat Transfer Second ed.* Academic Press, 2003.
- [125] M. Pharr and G. Humphreys. *Physically based rendering : from theory to implementation*. Morgan Kaufmann Pub. / Elsevier, 2010.
- [126] P. Perez. *Algorithmes de synthèse d'image et propriétés spectrales des gaz de combustion : Méthode de Monte-Carlo pour la simulation des transferts radiatifs dans les procédés à haute température*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2003.
- [127] J. De la Torre and al. Design, optimization and practical implementation of monte carlo algorithms for concentrated solar applications. *Soumis pour publication dans Solar Energy*.

-
- [128] The Message Passing Interface (MPI) standard. <http://www.mcs.anl.gov/research/projects/mpi>.
- [129] GSL GNU Scientific Library. <http://www.gnu.org/software/gsl>.
- [130] J. Dauchet, S. Blanco, J.-F. Cornet, M. El Hafi, V. Eymet, and R. Fournier. The practice of recent radiative transfer monte carlo advances and its contribution to the field of microorganisms cultivation in photobioreactors. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, (0) :-, 2012.
- [131] V. Eymet, D. Poitou, M. Galtier, and M. El Hafi. Meshless monte-carlo with a null-collision algorithm for efficient and accurate radiative transfer modeling - application to combustion systems. *Soumis pour publication dans Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Juillet 2012.
- [132] J. Beckmann, F. Lehr, G. Finazzi, B. Hankamer, C. Posten, L. Wobbe, and O. Kruse. Improvement of light to biomass conversion by deregulation of light-harvesting protein translation in *chlamydomonas reinhardtii*. *J. Biotechnol.*, 142 :70–77, 2009.
- [133] M. Mitra and A. Melis. Optical properties of microalgae for enhanced biofuels production. *Opt. Express.*, 16 :21807–21820, 2008.
- [134] S. Blanco. *Mécanismes de séparation des protéines par électrophorèse. Modélisation et analyse de sensibilité*. Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, 1996.
- [135] R. J. D. Spurr. *Linearized Radiative Transfer Theory : A General Discrete Ordinate Approach to the Calculation of Radiances and Analytic Weighting Functions, with Application to Atmospheric Remote Sensing*. Technische Universiteit Eindhoven, 2001.
- [136] R. Tomović. *Sensitivity analysis of dynamic systems*. New-York : McGraw-Hill, 1963.
- [137] J.V. Beck and K.J. Arnold. *Parameter estimations in engineering and science*. New York : Wiley, 1977.
- [138] O. Talagrand and P. Courtier. Variational assimilation of meteorological observations with the adjoint vorticity equation i. *Theory. Quart. Roy. Met. Soc.*, 113 :1311–1328, 1987.
- [139] P. Bergé, Y. Pomeau, and C. Vidal. *L'ordre dans le chaos*. Hermann, 1997.
- [140] M. Roger. *Modèles de sensibilité dans le cadre de la méthode de Monte-Carlo : illustrations en transfert radiatif*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2006.
- [141] M. Roger, S. Blanco, M. El Hafi, and R. Fournier. Monte carlo estimates of domain-deformation sensitivities. *Physical Review Letters*, 95(18) :180601, 2005.

-
- [142] J. De la Torre. *Calculs de sensibilités par méthode de Monte-Carlo, pour la conception de procédés à énergie solaire concentrée*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2011.
- [143] A. de Guilhem de Lataillade. *Modélisation détaillée des transferts radiatifs et couplage avec la cinétique chimique dans des systèmes en combustion*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2001.
- [144] J. P. Rocchia, B. Piaud, C Coustet, C. Caliot, E. Guillot, G Flamant, and D Delatorre. Solfast, a ray-tracing monte-carlo software for solar concentrating facilities. *Journal of Physics : Conference Series*, 369(1) :012029, 2012.
- [145] O. Farges. *Développement d'optiques innovantes pour les tours solaires de type beam-down*. Thèse de Doctorat en cours, CIFRE Total-RAPSODEE.
- [146] V. Rochatte. *Etude et modélisation de photobioréacteur à éclairage interne*. Thèse de Doctorat en cours, Université Blaise Pascal de Clermont Ferrand.
- [147] G. Dahi. *Etude et modélisation de la production d'hydrogène en photoréacteur catalytique*. Thèse de Doctorat en cours, Université Blaise Pascal de Clermont Ferrand.
- [148] G. Plantard and V. Goetz. Experimental and numerical studies of a solar photocatalytic process in a dynamic mode applied to three catalyst media. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*, (0) :-, 2012.
- [149] M Gratzel. Photoelectrochemical cells. *Nature*, 414, 2001.
- [150] A. Ezkandari. *Modélisation et validation expérimentale de la production d'hydrogène solaire par cellule photo-électrochimiques à catalyseurs bio-inspirés*. Thèse de Doctorat en cours, Université Blaise Pascal de Clermont Ferrand.
- [151] D. Baillis and J. F. Sacadura. Thermal radiation properties of dispersed media : theoretical prediction and experimental characterization. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 67(5) :327–363, 2000.
- [152] B. P. Singh and M. Kaviany. Independent theory versus direct simulation of radiation heat transfer in packed beds. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 34(11) :2869–2882, 1991.
- [153] C. L. Tien and B. L. Drolen. Thermal radiation in particulate media with dependent and independent scattering. In *Annual review of numerical fluid mechanics and heat transfer*, volume 1, pages 1–32, 1987.
- [154] Z. Ivezic and M. P. Mengüç. An investigation of dependent/independent scattering regimes using a discrete dipole approximation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 39(4) :811–822, 1996.

Nomenclature

[0] sans dimension

[+] dimension variable

\mathcal{A}	Vitesse spécifique d'absorption des photons [$mol_{h\nu} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$]
\mathcal{A}_c	Point de compensation [$mol_{h\nu} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$]
c	Vitesse de la lumière dans le milieu [$m \cdot s^{-1}$]
c_0	Vitesse de la lumière dans le vide [$m \cdot s^{-1}$]
cdf_{Θ_d}	Cumulée de la fonction de phase
$C_{pig,j}$	Concentration massique de l'espèce pigmentaire j [$kg \cdot m^{-3}$]
e	Epaisseur optique [0]
e^*	Epaisseur optique de transport [0]
C_x	Concentration massique en biomasse [$kg_x \cdot m^{-3}$]
d	Longueur totale d'un chemin optique [m]
E	Epaisseur des configurations plan parallèle monodimensionnelles [m]
$Ea_{pig,j}$	Section massique d'absorption de l'espèce pigmentaire j [$m^2 \cdot kg_x^{-1}$]
f	Fonction de distribution [$m^{-3} \cdot sr^{-1}$]
f_ν	Fonction de distribution par unité de fréquence [$m^{-3} \cdot sr^{-1} \cdot Hz^{-1}$]
f_i	Fraction volumique de la structure interne i [0]
g	Paramètre d'asymétrie de la fonction de phase [0]
G	Irradiance [$W \cdot m^{-2}$]
G_ν	Densité fréquentielle d'irradiance [$W \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$]
\hat{G}	Irradiance [$mol_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$]
\hat{G}_ν	Densité fréquentielle d'irradiance [$mol_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$]

h	Constante de Planck [$J \cdot s^{-1}$]
J_{e^-}	Vitesse spécifique de séparation de charge au centre réactionnel [$mol_{e^-} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$] ou [$mol_{e^-} \cdot kg_x^{-1} \cdot h^{-1}$]
J_{O_2}	Vitesse spécifique de production d'oxygène [$mol_{O_2} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$]
J_x	Vitesse spécifique de production de biomasse [$g_x \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$] ou [$g_x \cdot kg_x^{-1} \cdot h^{-1}$]
k_e	nombre d'onde dans le milieu environnant [m^{-1}]
k_a	Coefficient linéique d'absorption [m^{-1}]
k_d	Coefficient linéique de diffusion [m^{-1}]
k_{ext}	Coefficient linéique d'extinction [m^{-1}]
K	Constante de saturation des mécanismes primaires de la photosynthèse [$mol_{h\nu} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$]
K_r	Constante d'inhibition de la respiration par la lumière [$mol_{h\nu} \cdot kg_x^{-1} \cdot s^{-1}$]
l	longueur de diffusion [m]
l_a	longueur d'absorption [m]
l_{ext}	longueur d'extinction [m]
L	Luminance [$W \cdot m^{-2}$]
L_ν	Densité fréquentielle de luminance [$W \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$]
\hat{L}	Luminance [$mol_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$]
\hat{L}_ν	Densité fréquentielle de luminance [$mol_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$]
m	Indice de réfraction complexe [0]
m_r	Indice de réfraction complexe relatif [0]
M_x	Masse molaire de la biomasse [$kg_x \cdot C - mol^{-1}$]
n	Partie réelle de l'indice de réfraction [0]
n_r	Partie réelle de l'indice de réfraction relatif [0]
p	Fonction de phase [sr^{-1}]
$p_Y(y)$	Densité de probabilité de la variable aléatoire Y pour sa réalisation y [+]
q_ν	Densité fréquentielle surfacique de flux [$mol_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$]
q_\cap	Densité surfacique de flux [$mol_{h\nu} \cdot s^{-1} \cdot m^{-2}$]
r_x	Vitesse de réaction volumique de la biomasse [$kg_x \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$] ou [$g_x \cdot m^{-3} \cdot h^{-1}$]
R	Elongation [0]
S	Amplitude de diffusion [0]
$w_{pig,j}$	Fraction massique de l'espèce pigmentaire j [0]
W_d	Section efficace différentielle de diffusion [$m^2 \cdot kg_x^{-1} \cdot sr^{-1}$] ou [$m^2 \cdot sr^{-1}$]
x	Paramètre de taille [0]

Lettres Grecques

α_s	Albédo de diffusion simple [0]
η	Densité de photons [m^{-3}]
η_ν	Densité de photons par unité de fréquence [$m^{-3} \cdot Hz^{-1}$]
κ	Partie imaginaire de l'indice de réfraction [0]
κ_r	Partie imaginaire de l'indice de réfraction relatif [0]
λ_0	Longueur d'onde du rayonnement dans le vide [m]
λ_e	Longueur d'onde du rayonnement dans le milieu [m]
μ	Cosinus d'un angle [0]
ν	Fréquence du rayonnement [Hz]
ν_{O_2-x}	Rapport stœchiométrique de la photosynthèse [0]
ρ	Rendement photochimique primaire [0]
ρ^S	Réfectivité de la paroi \mathcal{S} [0]
ρ_M	Rendement photochimique primaire maximum [0]
σ_a	Section efficace d'absorption [$m^2 \cdot kg_x^{-1}$] ou [m^2]
σ_d	Section efficace de diffusion [$m^2 \cdot kg_x^{-1}$] ou [m^2]
σ_{ext}	Section efficace d'extinction [$m^2 \cdot kg_x^{-1}$] ou [m^2]
ω	pulsation du rayonnement [Hz]
$\hat{\omega}$	Poids d'une réalisation d'un algorithme de Monte Carlo [+]
$d\omega$	Angle solide élémentaire [sr]
$d\mathbf{e}$	Angle solide élémentaire [sr]
φ	Densité surfacique de flux [$W \cdot m^{-2}$]
φ_ν	Densité fréquentielle surfacique de flux [$W \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$]
$\bar{\phi}'$	Rendement quantique molaire [$mol_{O_2} \cdot mol_e^{-1}$]

Autres

$\langle \rangle$ Moyenne spatiale

Abréviations

ATP	Adénosine tri-phosphate
DiCoFluV	Dilution Contrôlée du Flux en Volume
LED	Diode électroluminescente
MMC	Méthode de Monte Carlo
PAR	Photosynthetically Active Radiation

Annexe A

Limite du régime de la diffusion indépendante

Dans cette annexe, nous proposons une brève discussion sur la limite entre le régime de la diffusion indépendante et celui de la diffusion dépendante dans les photobioréacteurs. Dans l'optique d'une intensification de ces procédés par augmentation de la densité cellulaire, ce point nécessitera une investigation plus approfondie.

Définition. Afin d'illustrer les implications du régime de la diffusion sur notre étude, nous considérons ici une suspension de micro-organismes photosynthétiques éclairée par un champ électromagnétique incident incohérent et non-polarisé (les sources utilisées dans les photobioréacteurs correspondent à ces caractéristiques). L'amplitude complexe $E_{d,tot}(\mathbf{r})$ de l'onde électromagnétique diffusée au point \mathbf{r} de cette suspension s'écrit comme la somme des champs diffusés par chacune des particules du milieu :

$$E_{d,tot}(\mathbf{r}) = \sum_i E_{d,i}(\mathbf{r}) \quad (\text{A.1})$$

où $E_{d,i}(\mathbf{r})$ est l'amplitude complexe de l'onde électromagnétique diffusée par la i -ème particule de la suspension. L'intensité diffusée au point \mathbf{r} est le module carré de $E_{d,tot}(\mathbf{r})$, soit

$$I_{d,tot}(\mathbf{r}) = |E_{d,tot}(\mathbf{r})|^2 = \left| \sum_i E_{d,i}(\mathbf{r}) \right|^2 \quad (\text{A.2})$$

Dans l'ensemble du présent manuscrit, nous avons fait l'hypothèse de la diffusion indépendante, selon laquelle les interférences entre les ondes diffusées $E_{d,i}$ sont négligeables : les champs diffusés sont incohérents. Dans ce cas, l'intensité totale $I_{d,tot}$ s'écrit simplement

$$I_{d,tot}(\mathbf{r}) = \left| \sum_i E_{d,i}(\mathbf{r}) \right|^2 = \sum_i |E_{d,i}(\mathbf{r})|^2 \quad (\text{A.3})$$

ce qui implique que les propriétés de diffusion et d'absorption de la suspension sont la moyenne des propriétés d'une particule isolée, prise sur les distributions de tailles et d'orientations des micro-organismes présents dans le milieu (voir Sec. 2.1.2 et plus particulièrement Eq. 2.22). A l'opposé, le phénomène de diffusion dépendante apparaît lorsque les champs diffusés sont corrélés, c'est-à-dire qu'ils interfèrent de manière cohérente. Dans ce cas, on ne peut plus négliger les effets d'interférence entre les ondes diffusées ($I_{d,tot}$ ne s'écrit plus comme la somme des intensités diffusées $I_{d,i} = |E_{d,i}(\mathbf{r})|^2$). Il faut alors travailler avec les champs $E_{d,i}$, en incluant le traitement de leur phase, afin de résoudre l'équation A.2. Cette situation entraîne des difficultés pratiques conséquentes lors du calcul des propriétés radiatives et lors de la résolution des transferts radiatifs (voir [151] pour des exemples de méthodes de résolution).

Critère pour deux particules. Les interactions entre les champs diffusés par deux particules soumises au même champ incident se font à deux niveaux [152] :

- a - en champ lointain, les ondes diffusées peuvent interférer de par leur déphasage,
- b - en champ proche, les ondes évanescentes des diffuseurs peuvent interagir.

L'hypothèse de la diffusion indépendante est donc vérifiée si

- (1) la distance entre les particules est grande devant la longueur d'onde du rayonnement, afin qu'il n'y ait pas d'interférence en champ lointain (interaction a),
- (2) la distance entre les particules est grande devant leur taille (diffuseurs ponctuels) afin que les effets de champ proche soient négligeables (interaction b).

La majorité de la littérature se concentre sur l'étude de diffuseurs sphériques (voir par exemple les travaux cités dans [151]), et il est généralement considéré que deux particules entrent en diffusion dépendante lorsque leur distance surface-à-surface est plus petite que la distance critique C . Les valeurs obtenues par différents auteurs, à partir d'approches théoriques ou expérimentales mises en œuvre pour différentes tailles et différents indices de réfraction des diffuseurs sphériques, s'accordent autour de la distance critique $C = \frac{\lambda_e}{2}$, où λ_e est la longueur

d'onde dans le milieu environnant¹ [151, 153, 154]. Une perspective intéressante pour l'étude des photobioréacteurs est d'étendre ce critère, qui a été établi pour des diffuseurs sphériques, aux formes complexes des micro-organismes photosynthétiques. Nous retiendrons ici simplement que deux particules diffusent la lumière de manière dépendante lorsque celles-ci sont plus proches que la distance critique surface-à-surface C .

Critère pour une suspension de particules. Nous allons ici relier le critère C à un critère portant sur les caractéristiques d'un ensemble de particules : typiquement, leur concentration ou la fraction volumique qu'elles occupent dans la suspension. On comprend aisément que lorsque la concentration en micro-organismes augmente (intensification du procédé), la distance caractéristique entre les diffuseurs diminue et le régime de la diffusion dépendante est susceptible de s'établir dans le volume réactionnel. Mais même dans une situation où la concentration est faible, deux micro-organismes voisins peuvent interagir avec la lumière de manière dépendante. En effet, l'optimisation du procédé impose un mélange parfait de la suspension, de telle sorte que les micro-organismes sont répartis aléatoirement de manière uniforme dans le volume. Il existe donc toujours une probabilité non-nulle que deux micro-organismes soient plus proches que le critère C . En toute rigueur, il s'agit donc de connaître la probabilité \mathcal{P} pour qu'un micro-organisme ait au moins un autre micro-organisme à une distance surface-à-surface inférieure à C (c'est-à-dire de connaître la fonction de corrélation de paire) : si cette probabilité est faible, le phénomène de diffusion dépendante est négligeable pour l'étude du procédé, sinon, il faut aller plus loin et étudier l'influence de la diffusion dépendante sur le transfert de rayonnement (à travers une étude théorique et/ou expérimentale) afin de savoir si l'on peut, ou non, négliger ce phénomène. Cependant, la détermination de la probabilité \mathcal{P} pour les formes et les distributions de tailles/orientations des micro-organismes photosynthétiques, en fonction de leur concentration (ou fraction volumique) dans le procédé, est un problème statistique qui n'est pas trivial. Alternativement, la littérature représente majoritairement les suspensions de particules comme des systèmes organisés périodiquement (perte de la description statistique) dans lesquels des diffuseurs sphériques sont fixés sur un réseau cubique face centré² (réseau le plus dense). Dans ces conditions,

1. Lorsque le critère $C = \frac{\lambda}{2}$ est dérivé analytiquement, la démonstration consiste généralement à assurer la condition (1). Cependant, à notre connaissance, ce critère ne suffit pas à assurer simultanément les conditions (1) et (2).

2. Dans cette description, les lieux d'interaction entre la lumière et les particules ne sont plus distribués aléatoirement, et l'équation de transfert radiatif ne s'applique donc plus. Cependant, la représentation en terme d'un réseau organisé n'est ici utilisée que dans le but de relier le critère C sur la distance entre deux particules à un critère portant sur la fraction volumique et la taille des particules. Une fois que l'approximation d'un réseau cubique face centré a été utilisée pour obtenir ce critère, on revient à une description statistique des centres de diffusion, et l'équation de transfert radiatif s'applique à nouveau.

il existe une fraction volumique critique avant laquelle aucune particule n'est en diffusion dépendante et après laquelle toutes les particules sont en diffusion dépendante [153]. Dans une description statistique, cette situation correspond à la limite $\mathcal{P} = 1$, avec \mathcal{P} la probabilité qu'une particule ait au moins une autre particule à une distance inférieure à C . En fait, on peut imaginer que pour des fractions volumiques bien plus faibles, disons lorsque 50% des particules sont plus proches que C , la diffusion dépendante puisse déjà avoir une influence sur l'étude du procédé. En considérant en première approximation la situation optimiste du réseau cubique faces centrées et le critère $C = \frac{\lambda_e}{2}$ dérivé pour des sphères, une carte très utile séparant les deux régimes de diffusion a été proposée par Tien et Drolen, en fonction du paramètre de taille x des particules et de leur fraction volumique [153]. Cette carte est donnée à la figure A.1 : plus le paramètre de taille des micro-organismes est petit, plus la concentration maximale en biomasse sèche est faible. En considérant la situation la plus limitante pour l'étude des photobioréacteurs, un paramètre de taille $x = 4$, la diffu-

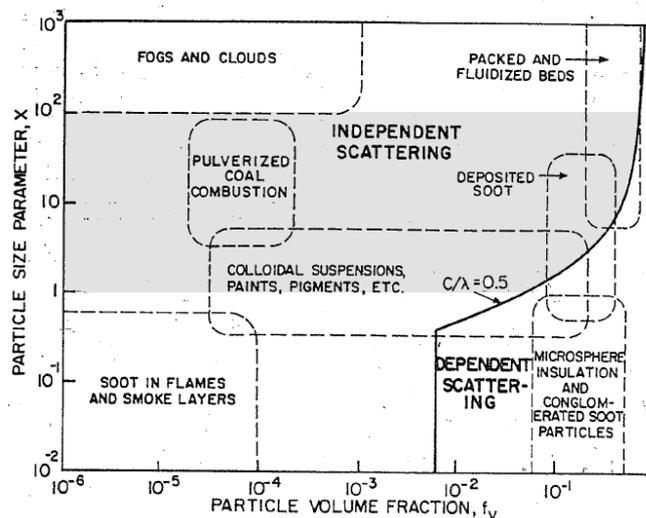


FIGURE A.1: Carte des régimes de la diffusion indépendante et dépendante d'après [153] : paramètre de taille des particules ($x = \frac{2\pi a}{\lambda_e}$, où a est le rayon d'une particule sphérique) en fonction de leur fraction volumique f_v . Dans le cas des micro-organismes photosynthétiques, la densité de biomasse sèche dans le réacteur C_x est reliée à la fraction volumique par $C_x = 280 f_v$ (en considérant une fraction volumique en eau de 0.8 dans les micro-organismes et une densité de la biomasse sèche de 1400 kg.m^{-3} , voir Chap. 2). La zone de paramètres de taille correspondant aux ordres de grandeurs des micro-organismes photosynthétiques est grisée sur la figure.

sion devient dépendante à partir d'une concentration C_x de 28 Kg.m^{-3} . Pour *Arthrospira platensis*, $x \simeq 100$, la concentration critique est $C_x \simeq 250 \text{ Kg.m}^{-3}$. De telles concentrations sont à l'heure actuelle très difficilement atteintes dans les photobioréacteurs, à part dans le cadre d'expériences exploratoires spécifiques, notamment à cause de la difficulté à assurer le mélange de la suspension (ce qui justifie notre choix d'une étude basée sur l'hypothèse de la diffusion indépendante). Cependant, un objectif technologique important est l'intensification du procédé et il sera donc peut être un jour nécessaire de considérer les effets de la diffusion dépendante dans les photobioréacteurs. Mais il conviendra avant tout de disposer d'un critère fiable associé à l'apparition d'effets significatifs sur le transfert de rayonnement. En outre, suivant les technologies de mélange utilisées, les micro-organismes s'agrègent parfois en flocs au sein des photobioréacteurs. Si il s'avère que l'apparition de tels agrégats n'est pas contradictoire avec une utilisation efficace du procédé, l'étude de leurs propriétés radiatives impliquera de poser la question de la dépendance de l'interaction du rayonnement avec les micro-organismes qui composent un même flocc.

En pratique, lors de différentes études expérimentales et théoriques menées sur différents types de diffuseurs, on constate que la diffusion indépendante donne des résultats étonnamment bons, même pour l'étude de lits fixes. Plus précisément, il a été observé que pour des lits fixes de particules diélectriques, le phénomène de diffusion dépendante a beaucoup moins d'influence que lorsque l'on considère des particules absorbantes [152]. Une explication proposée dans [152] est que la diffusion est toujours dépendante dans le lit, mais pour les particules diélectriques les deux effets en champ proche et champ lointain (interactions a et b) se compensent, ce qui donne le même comportement que dans le cas de la diffusion indépendante. Lorsque les particules sont absorbantes, les deux effets ne se compensent plus et le phénomène de diffusion dépendante est alors observable. Les micro-organismes étant absorbants, cela soulève la question de l'influence de la diffusion dépendante sur le comportement du procédé.

Annexe B

Identification des paramètres de la loi de couplage cinétique de *Chlamydomonas reinhardtii* utilisée

Cette annexe se concentre sur l'identification des paramètres de la loi de couplage des eucaryotes que nous avons présenté au paragraphe 1.2.1 :

$$r_x(\mathbf{x}_0) = C_x \left[\rho_M \bar{\phi}' \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)}{K + \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)} - \frac{J_{NADH_2}}{\nu_{NADH_2-O_2}} \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K_r}{K_r + \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)} \right] \quad (\text{B.1})$$

où nous avons jusqu'à présent noté $\frac{J_{NADH_2}}{\nu_{NADH_2-O_2}} = \beta$, et où C_x est la concentration en biomasse sèche. Tous les paramètres utilisés dans cette expression sont définis dans la table B.1, et leur sens physique a été détaillé au paragraphe 1.2.1 (sauf pour J_{NADH_2} et $\nu_{NADH_2-O_2}$). Certains de ces paramètres dépendent du micro-organisme photosynthétique que l'on considère et nous choisissons ici d'identifier leur valeur pour la micro-algue *Chlamydomonas reinhardtii*. Pour cela, nous allons nous appuyer sur une démarche d'identification qui est présentée dans [16] et qui se base sur un ensemble de résultats expérimentaux obtenus avec un photobioréacteur torique. Ces données expérimentales portant sur des mesures globales à l'échelle du réacteur, l'identification des paramètres de la loi de couplage implique donc de mettre en œuvre notre modèle complet de la productivité moyenne $\langle r_x \rangle$ d'un photobioréacteur :

- détermination des propriétés radiatives spectrales de *Chlamydomonas reinhardtii* pour différentes compositions pigmentaires correspondant à différentes densités surfaciques de flux incident q_Γ (voir Chap. 2),
- résolution du transfert radiatif par la méthode de Monte Carlo (voir Chap. 5) afin

- d'obtenir $\mathcal{A}(\mathbf{x}_0)$ en tout point \mathbf{x}_0 de la configuration quasi-monodimensionnelle du photobioréacteur torique, pour une incidence collimatée normale associée au spectre d'émission des LED Fig. 1.5 et une réflectivité grise de 0.54 à l'arrière du réacteur (voir la mesure spectrale de cette réflectivité dans [23]),
- l'évaluation de la moyenne des cinétiques locales (voir Eq. B.1) sur l'ensemble du volume réactionnel (la configuration étant monodimensionnelle, la mise en œuvre de la méthode numérique proposée au chapitre 6 n'est pas nécessaire).

Le principe général de l'identification que nous mettons ensuite en œuvre consiste à obtenir un accord entre les mesures expérimentales de $\langle r_x \rangle$ et celles obtenues à partir de notre modèle, sachant que seuls trois des paramètres de la loi de couplage Eq. B.1 sont libres (voir paragraphe suivant).

L'article [16], sur lequel nous nous appuyons ici, a pour objectif de déterminer les paramètres d'une loi de couplage écrite en fonction de l'irradiance locale $\hat{G}(\mathbf{x}_0)$ dans le cadre d'un modèle gris :

$$r_x(\mathbf{x}_0) = C_x \left[\rho_M \bar{\phi}' \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K' \sigma_a \hat{G}(\mathbf{x}_0)}{K' + \hat{G}(\mathbf{x}_0)} - \frac{J'_{NADH_2}}{\nu_{NADH_2-O_2}} \frac{M_x}{\nu_{O_2-x}} \frac{K'_r}{K'_r + \hat{G}(\mathbf{x}_0)} \right] \quad (\text{B.2})$$

où σ_a est la section efficace massique grise du micro-organisme (prise comme la moyenne de $\sigma_{a,\nu}$ sur $\lambda_0 \in [400nm, 700nm]$) et où tous les autres paramètres sont donnés dans la table B.1. Par rapport à notre écriture (Eq. B.1), seuls les paramètres K' , J'_{NADH_2} et K'_r sont changés pour les paramètres K , J_{NADH_2} et K_r . Nous allons maintenant détailler l'identification de ces trois paramètres, en suivant la démarche de [16], mais nous tenons ici à signaler qu'il s'agit seulement d'une étude préliminaire : d'une part, une identification plus fine de ces paramètres nécessiterait de réaliser des mesures expérimentales spécifiques à une écriture en \mathcal{A} plutôt que \hat{G} , et d'autre part les incertitudes liées aux mesures expérimentales mériteraient d'être plus amplement étudiées (nous avons notamment vu au chapitre 2 la forte sensibilité des champs de radiation à l'erreur sur la mesure de la concentration en biomasse C_x).

La constante de saturation de la photosynthèse K est déterminée à partir de la relation suivante :

$$K = \sigma_a K' \quad (\text{B.3})$$

où $\sigma_a = 268 m^2.kg_x^{-1}$ est la valeur de la section efficace massique grise utilisée dans [16] lors des expériences à faible flux de photon incident qui ont servi à déterminer la valeur de K' (voir Tab. B.1). En effet, dans le premier terme de l'équation B.2, si l'on multiplie le numérateur et le dénominateur par σ_a , nous sommes bien ramenés au terme $\frac{K \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)}{K + \mathcal{A}(\mathbf{x}_0)}$ de l'équation B.1

(car pour un modèle gris, $\mathcal{A} = \sigma_a \hat{G}$). On remarque que la valeur de K mériterait d'être déterminée de manière plus fine, notamment en réalisant des expériences spécifiques portant sur une mesure de \mathcal{A} plutôt que \hat{G} (voir [16, 6]).

Le point de compensation \mathcal{A}_c est déterminé à partir de la règle du γ égal 1 (voir Sec. 1.2.5) : la productivité du réacteur est maximale lorsque $\mathcal{A} = \mathcal{A}_c$ à l'arrière du réacteur. Les quatre situations optimales de production de biomasse présentées dans la table B.2 ont été mesurées dans [16] en ajustant la concentration C_x dans le réacteur (fonctionnement en continu) pour différentes valeurs du flux incident q_Γ . Pour chacune de ces situations optimales (définies expérimentalement par un couple q_Γ, C_x), les propriétés radiatives spectrales de *Chlamydomonas reinhardtii* sont calculées en suivant la démarche présentée au chapitre 2 pour les dosages de la teneur en pigments photosynthétiques mesurés dans [23, 16] et reportés dans la table B.2 (cette teneur varie fortement en fonction de la densité de flux incident q_Γ). Pour ces quatre configurations radiatives, le champ de \mathcal{A} est ensuite résolu par la méthode de Monte Carlo (tel que décrit dans le chapitre 5) et la valeur numérique de \mathcal{A} ainsi obtenue à l'arrière du réacteur est le point de compensation \mathcal{A}_c (puisque ces configurations correspondent à un fonctionnement optimal, c'est-à-dire $\gamma \simeq 1$). La valeur de \mathcal{A}_c retenue dans la table B.1 est la moyenne des valeurs obtenues pour chacune de ces quatre situations à $\gamma \simeq 1$ (voir Tab. B.2).

La constante de saturation K_r de l'inhibition de la respiration par la lumière est contrainte par la relation de définition du point de compensation : $r_x(\mathcal{A}_c) = 0$. L'équation B.1 satisfait la relation $r_x(\mathcal{A}_c) = 0$ si

$$K_r = \frac{\mathcal{A}_c}{\frac{J_{NADH_2}}{\nu_{NADH_2-O_2} \rho_M \phi'} \left[\frac{1}{\mathcal{A}_c} + \frac{1}{K} \right] - 1} \quad (\text{B.4})$$

où J_{NADH_2} reste à déterminer.

La vitesse spécifique J_{NADH_2} de réoxydation des cofacteurs sur la chaîne respiratoire est identifiée comme étant la valeur minimisant l'écart quadratique entre les valeurs de la productivité $\langle r_x \rangle$ prédites par le modèle (les autres paramètres étant par ailleurs fixés) et celles mesurées expérimentalement sur les deux configurations à $\gamma \simeq 0.5$ données dans la table B.2. Ces mesures à $\gamma \simeq 0.5$ sont ici utilisées car elles correspondent à des situations pour lesquelles la sensibilité de $\langle r_x \rangle$ à J_{NADH_2} est élevée, contrairement aux situations à $\gamma \simeq 1$.

Loi de couplage en \hat{G}			Loi de couplage en \mathcal{A}		
Paramètre	Valeur	Unité	Paramètre	Valeur	Unité
ρ_M	0.8	-	ρ_M	0.8	-
J'_{NADH_2}	6.4×10^{-4} $\pm 3 \times 10^{-5}$	$mol_{O_2}.kg_x^{-1}.s^{-1}$	J_{NADH_2}	4×10^{-4}	$mol_{O_2}.kg_x^{-1}.s^{-1}$
$\bar{\phi}'$	1.1×10^{-7}	$mol_{O_2}.\mu mol_{h\nu}^{-1}$	$\bar{\phi}'$	1.1×10^{-7}	$mol_{O_2}.\mu mol_{h\nu}^{-1}$
M_x	0.024	$kg_x.C - mol^{-1}$	M_x	0.024	$kg_x.C - mol^{-1}$
ν_{O_2-x}	1.183	-	ν_{O_2-x}	1.183	-
$\nu_{NADH_2-O_2}$	2	-	$\nu_{NADH_2-O_2}$	2	-
K'	120 ± 20	$\mu mol_{h\nu}.m^{-2}.s^{-1}$	K	32000	$\mu mol_{h\nu}.kg_x^{-1}.s^{-1}$
K'_r	3 – 6	$\mu mol_{h\nu}.m^{-2}.s^{-1}$	K_r	7500	$\mu mol_{h\nu}.kg_x^{-1}.s^{-1}$
\hat{G}_c	10 ± 3	$\mu mol_{h\nu}.m^{-2}.s^{-1}$	\mathcal{A}_c	1800 ± 370	$\mu mol_{h\nu}.kg_x^{-1}.s^{-1}$

TABLE B.1: Paramètres de la loi de couplage cinétique de *Chlamydomonas reinhardtii*, à gauche tels que obtenus dans [16] pour une loi écrite en fonction de l'irradiance \hat{G} , à droite tels que obtenus ici pour une loi écrite en fonction de la vitesse locale d'absorption des photons \mathcal{A} . ρ_M : rendement énergétique maximum des antennes photosynthétiques ; J'_{NADH_2} et J_{NADH_2} : vitesse spécifique de régénération des cofacteurs sur la chaîne respiratoire ; $\bar{\phi}'$: rendement quantique molaire de la réaction biochimique de photosynthèse ; M_x : masse molaire de la biomasse sèche ; ν_{O_2-x} et $\nu_{NADH_2-O_2}$ sont des coefficients stœchiométriques ; K' et K : constante de saturation de la photosynthèse ; K'_r et K_r : constante de saturation de l'inhibition de la respiration par la lumière ; \hat{G}_c et \mathcal{A}_c : point de compensation.

	$\gamma \simeq 1$				$\gamma \simeq 0.5$	
<u>Configurations :</u>						
q_{\square} ($\mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	110	300	500	1000	110	1000
C_x ($\text{kg}_x \cdot \text{m}^{-3}$)	0.35	0.47	0.57	1.1	0.6	1.47
<u>Mesures expérimentales [16, 23] :</u>						
Chlorophylle a \triangleright	2.00	1.65	1.50	1.10	2.17	1.33
Chlorophylle b \triangleright	0.80	0.68	0.60	0.45	0.90	0.51
Caroténoïdes photosynthétiques \triangleright	0.09	0.07	0.06	0.05	0.09	0.06
Caroténoïdes de protection \triangleright	0.51	0.41	0.34	0.30	0.55	0.36
$\langle r_x \rangle$ ($g_x \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h} - 1$)	11	25	33	43	7.2	29
<u>Résultats du modèle :</u>						
$\langle r_x \rangle$ ($g_x \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h} - 1$)	8.6	21.7	31.39	48.4	5.7	31.4
\mathcal{A}_c ($\mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{kg}_x^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$)	1580	2370	2570	690	-	-
γ^*	0.88	1.05	1.02	0.71	0.45	0.5
\hat{G}_c \diamond ($\mu\text{mol}_{h\nu} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	16	30	38	14	-	-

* Valeurs de γ calculés à partir du point de compensation \mathcal{A}_c moyen retenu dans la table B.1.

\diamond Les valeurs de \hat{G}_c ne sont pas ici utilisées, elles sont données à titre indicatif.

\triangleright Teneur en pigments (% biomasse sèche) utilisées pour le calcul des propriétés radiatives.

TABLE B.2: Résultats expérimentaux et prédictifs obtenus pour les six configurations étudiées dans [16] qui ont été retenues ici. Configurations : q_{\square} est la densité de flux de photons incident, C_x est la concentration en biomasse sèche dans le réacteur. Résultats du modèle : le point de compensation \mathcal{A}_c ainsi que la fraction éclairée γ du volume réactionnel (voir chapitre 1) sont des valeurs purement radiatives obtenues à partir de la résolution du champ de \mathcal{A} par méthode de Monte Carlo ; la productivité $\langle r_x \rangle$ est obtenue pour ces champs de \mathcal{A} en considérant la loi de couplage cinétique Eq. B.1 pour les valeurs des paramètres données dans Tab. B.1.

Annexe C

Longueurs d'extrapolation pour l'écriture des conditions aux limites de l'approximation P1 dans la situation académique d'un système conservatif

A la section 4.5.2 du chapitre 4, nous avons proposé une lecture particulière de la forme fonctionnelle Eq. 4.166 qui est habituellement employée pour l'écriture des conditions aux limites de Marshak de l'équation de diffusion Eq. 4.151. Dans cette écriture, la longueur d'extrapolation est exprimée en fonction de la moyenne des cosinus des directions de sortie des photons diffus au point où nous écrivons la condition à la limite. Cette expression va ici nous permettre de développer une analyse des longueurs d'extrapolation mais pour autant, elle ne résout pas la difficulté de leur détermination : en première approximation, nous avons choisi au chapitre 4 de fixer arbitrairement les longueurs d'extrapolation (qui apparaissent comme des paramètres libres) afin d'obtenir un jeu de solutions de l'approximation P1. La présente annexe met en lumière le caractère local de la longueur d'extrapolation (point qui n'est pas toujours clair dans la littérature) et propose une première discussion sur le lien entre sa valeur en différents points de la frontière d'un système. Pour cela, nous nous concentrons sur l'étude d'une configuration académique plans parallèles monodimensionnelle pour laquelle seules deux longueurs d'extrapolation sont à déterminer (puisque seules deux conditions aux limites sont à écrire). En nous plaçant dans une situation en l'absence d'absorption, pour les fortes épaisseurs optiques de diffusion, et en utilisant une propriété d'invariance de toute marche aléatoire de diffusion [114], nous proposons de dériver une relation entre ces deux

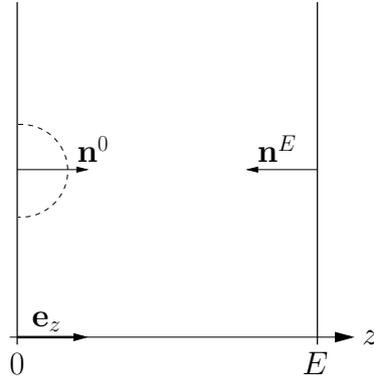


FIGURE C.1: Configuration monodimensionnelle étudiée dans la présente annexe : le milieu n'absorbe pas (système conservatif) et n'émet pas ; incidence lambertienne en $z = 0$ ($\hat{L}(z = 0, \boldsymbol{\omega}) = q_{\cap}/\pi$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^0 > 0$, q_{\cap} étant la densité de flux incidente à la surface) ; vide derrière la frontière en $z = E$ ($\hat{L}(z = E, \boldsymbol{\omega}) = 0$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^E > 0$).

longueurs d'extrapolation (réduisant ainsi le nombre de paramètres libres à un) et d'en discuter la signification physique.

Nous considérons dans la suite la configuration monodimensionnelle de la figure C.1 en l'absence d'absorption et d'émission dans le volume. L'équation de diffusion en régime stationnaire s'écrit alors (en prenant $k_a = 0$ dans l'équation 4.173) :

$$\partial_z^2 \hat{G}(z) = 0 \quad (\text{C.1})$$

où $\partial_z^2 \hat{G}(z)$ est la dérivée seconde de l'irradiance par rapport à l'abscisse z . Le profil d'irradiance est alors linéaire :

$$\hat{G}(z) = C_0 + C_1 z \quad (\text{C.2})$$

où C_0 et C_1 sont des constantes. Nous considérons de plus une incidence lambertienne en $z = 0$ et le vide derrière la frontière en $z = E$ (aucun rayonnement n'est incident en $z = E$). Il n'y a pas de réflexion aux frontières de ce système. Dans ces conditions et dans le cadre des dérivations de la section 4.5.2, les conditions aux limites de Marshak s'écrivent (voir Eqs. 4.165 - 4.168 dans lesquelles $\rho = 0$) :

- En $z = 0$

$$\hat{G}(0) - \frac{h_0}{k_{ext}^*} \partial_z \hat{G}(0) = 3h_0 q^{(0)}(0) + \hat{G}^{(0)}(0) \quad (\text{C.3})$$

où h_0 est la longueur d'extrapolation adimensionnelle en $z = 0$, $k_{ext}^* = k_{ext}(1 - \alpha_s g)$ est le coefficient d'extinction de transport et $q^{(0)}(0)$, $\hat{G}^{(0)}(0)$ sont respectivement la densité sur-

facique de flux et l'irradiance dues aux photons balistiques en $z = 0$. Comme nous l'avons discuté au paragraphe A de la section 4.5.3, dans la situation étudiée (incidence lambertienne) $q^{(0)}(0) = q_\Gamma$ et $\hat{G}^{(0)}(0) = 2q_\Gamma$, où q_Γ est la densité surfacique de flux incident à la surface en $z = 0$, et il vient :

$$\hat{G}(0) - \frac{h_0}{k_{ext}^*} \partial_z \hat{G}(0) = q_\Gamma (3h_0 + 2) \quad (\text{C.4})$$

Dans le cadre de notre lecture des conditions aux limites de Marshak, la longueur d'extrapolation s'écrit (voir Eq. 4.168 avec $\rho = 0$) :

$$h_0 = \frac{1}{3 \langle \mu \rangle_0^-} \quad (\text{C.5})$$

où $\langle \mu \rangle_0^-$ est la moyenne des cosinus des directions de sortie des photons diffus en $z = 0$ ($\langle \mu \rangle_0^- > 0$, voir Eqs. 4.158 et 4.159).

- En $z = E$

$$\hat{G}(E) + \frac{h_E}{k_{ext}^*} \partial_z \hat{G}(E) = 3h_E q^{(0)}(E) + \hat{G}^{(0)}(E) \quad (\text{C.6})$$

où h_E est la longueur d'extrapolation adimensionnelle en $z = E$ et $q^{(0)}(E)$, $\hat{G}^{(0)}(E)$ sont respectivement la densité surfacique de flux et l'irradiance dues aux photons balistiques en $z = E$. Comme nous l'avons discuté au paragraphe A de la section 4.5.3, dans les situations où les épaisseurs optiques de diffusion sont fortes ($e_d = E k_d \gg 1$, comme dans les photobioréacteurs) $q^{(0)}(E)$ et $\hat{G}^{(0)}(E)$ sont négligeables, et il vient :

$$\hat{G}(E) + \frac{h_E}{k_{ext}^*} \partial_z \hat{G}(E) \simeq 0 \quad (\text{C.7})$$

La longueur d'extrapolation h_E en $z = E$ s'écrit comme h_0 , mais en considérant cette fois la moyenne $\langle \mu \rangle_E^-$ des cosinus des directions de sortie des photons diffus en $z = E$:

$$h_E = \frac{1}{3 \langle \mu \rangle_E^-} \quad (\text{C.8})$$

La solution du profil d'irradiance Eq. C.2 qui satisfait à ces conditions aux limites est :

$$\hat{G}(z) = 2q_\Gamma \frac{3/2 h_0 + 1}{e^* + h_0 + h_E} (e^* + h_E - k_{ext}^* z) \quad (\text{C.9})$$

où $e^* = E k_{ext}^*$ est l'épaisseur optique de transport.

A la section 4.5, nous avons considéré en première approximation une distribution des

directions de sorties qui était isotrope en $z = 0$ et en $z = E$, ce qui donnait $\langle \mu \rangle_0^- = \langle \mu \rangle_E^- = 1/2$, et donc (voir Eqs. C.5 et C.8) :

$$h_0 = h_E = \frac{2}{3} \quad (\text{C.10})$$

Ici, notre but est justement d'étudier les longueurs d'extrapolation et nous ne faisons donc aucune approximation sur la valeur de h_0 et h_E . Plus exactement, nous allons dériver une relation entre ces deux longueurs d'extrapolation qui assure que la solution Eq. C.9 du profil d'irradiance vérifie une propriété d'invariance générale des marches aléatoires de diffusion : pour une émission lambertienne, la moyenne des longueurs des chemins de premier retour (chemins qui partent de la frontière et reviennent à la frontière) est $\langle L \rangle = 4V/S$, où V est le volume du système et S est l'aire de la surface délimitant le système [114]. Dans le cas de la configuration Fig. C.1, tous les chemins optiques sont des chemins de premier retour (ceux qui partent de $z = 0$ et retournent en $z = 0$, comme ceux qui partent de $z = 0$ et sortent de la lame en $z = E$) et leur longueur est en moyenne $\langle L \rangle = 2E$. Puisque les photons se déplacent tous à la vitesse c , nous connaissons aussi le temps moyen qu'ils restent dans le système :

$$\langle t \rangle = \frac{\langle L \rangle}{c} = \frac{2E}{c} \quad (\text{C.11})$$

Cela a pour conséquence de fixer le nombre de photons N contenus dans le système, par unité de surface de la lame (le système est ici de dimension infinie et nous nous ramenons à un mètre carré de lame) :

$$N = q_\Gamma \langle t \rangle = q_\Gamma \frac{2E}{c} \quad (\text{C.12})$$

où la densité surfacique de flux q_Γ est exprimée en nombre de photons par unité de temps et par unité de surface. En outre, N s'exprime aussi en fonction de l'intégrale de l'irradiance $\hat{G}(z)$ (Eq. C.9) sur l'épaisseur de la lame (\hat{G} est exprimée dans la même unité que q_Γ , voir l'encart 1 du chapitre 1 et la section 4.2.1) :

$$N = \int_0^E dz \frac{\hat{G}(z)}{c} = q_\Gamma \frac{2E}{c} \frac{3/2 h_0 + 1}{e^* + h_0 + h_E} (e^*/2 + h_E) \quad (\text{C.13})$$

En égalisant les expressions Eq. C.12 et Eq. C.13, on obtient la relation suivante entre les longueurs d'extrapolation :

$$h_0 = \frac{2/3}{1 + \frac{h_E - 2/3}{e^*/2}} \quad (\text{C.14})$$

où $e^* = E k_{ext}^*$ est l'épaisseur optique de transport ¹.

D'un point de vue pratique, la relation Eq. C.14 permet de passer de deux paramètres libres (h_0 et h_E) à un seul (h_0) dans la solution du profil d'irradiance, pour la situation académique étudiée (notamment en l'absence d'absorption). Au delà de cette considération pratique, la relation Eq. C.14 indique deux résultats remarquables :

1. Plus l'épaisseur optique de transport augmente, plus la dépendance entre les longueurs d'extrapolation h_0 et h_E est ténue, et h_0 tend vers $2/3$.
2. Si l'on postule que la longueur d'extrapolation est indépendante de la position sur la frontière du système, ici $h_0 = h_E = h$, alors $h = 2/3$.

Ce dernier résultat est particulièrement intéressant car on trouve dans la littérature des travaux qui, pour la configuration présente, postulent implicitement l'égalité des longueurs d'extrapolation (le problème est directement posé pour $h_0 = h_E = h$, sans justifications particulières). Par exemple, dans [118] la solution de l'équation de diffusion ainsi obtenue est comparée à une référence donnée par la méthode de Monte Carlo, et une part importante de la discussion est centrée sur la valeur de h donnant le meilleur accord. Les auteurs constatent que la valeur "arbitraire" $h = 2/3$ donne de meilleurs résultats que la valeur $h = 0.7104$ qui est pourtant obtenue par un raisonnement spécifique correspondant à la résolution du problème de Milne [119]. D'après la relation C.14 (et le résultat 2 qui en découle), le fait que l'accord optimal soit ici obtenu pour $h = 2/3$ est simplement expliqué par le choix de deux longueurs d'extrapolation égales.

La lecture que nous proposons, dans laquelle la longueur d'extrapolation est une fonction de $\langle \mu \rangle^-$ (voir Eqs. C.5 et C.8), permet de mettre en exergue la nécessité de travailler avec $h_0 \neq h_E$: le système étudié n'étant pas symétrique (éclairage en $z = 0$), il n'y a aucune raison que les distributions des directions de sortie soient identiques en $z = 0$ et $z = E$. La relation Eq. C.14 va plus loin, en indiquant que ces deux distributions sont liées. Afin de mettre une image physique simple sur cette dépendance, nous proposons de considérer les solutions mésoscopiques respectives des trois configurations de la figure C.2 : $\hat{L}^a(z, \boldsymbol{\omega})$ pour la configuration a, $\hat{L}^b(z, \boldsymbol{\omega})$ pour la configuration b (qui correspond à la situation étudiée dans cette annexe, voir Fig. C.1) et $\hat{L}^c(z, \boldsymbol{\omega})$ pour la configuration c. Les opérateurs de l'équation de transfert radiatif étant linéaires, ces solutions sont reliées par

$$\hat{L}^a(z, \boldsymbol{\omega}) = \hat{L}^b(z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}^c(z, \boldsymbol{\omega}) \quad , \forall (z, \boldsymbol{\omega}) \quad (\text{C.15})$$

1. La relation Eq. C.14 a été obtenue en faisant l'hypothèse que l'épaisseur optique de diffusion $e_d = E k_d$ est grande devant 1 (à travers l'utilisation de l'expression Eq. C.9 du champ d'irradiance). Cependant, ceci n'implique pas nécessairement que e^* est grand (voir Sec. 4.3). Dans les photobioréacteurs, nous avons par exemple $e_d \gg 1$ et $e^* \simeq 1$ car les paramètres d'asymétries g sont proches de 1.

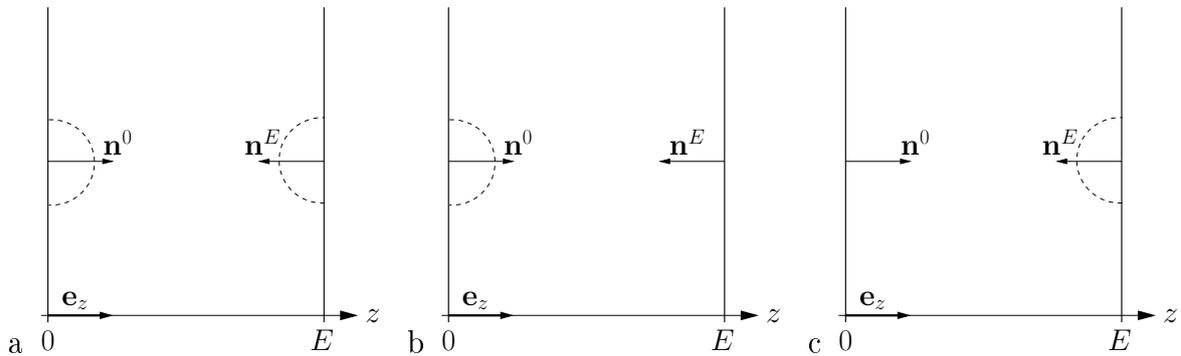


FIGURE C.2: Configurations utilisées pour l'étude de la dépendance angulaire des luminances sortantes. Le milieu n'absorbe pas et n'émet pas. a : incidence lambertienne en $z = 0$ ($\hat{L}(z = 0, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^0 > 0$, q_Γ étant la densité de flux incidente à la surface) ; incidence lambertienne en $z = E$ identique à celle en $z = 0$ ($\hat{L}(z = E, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^E > 0$). b : configuration de la figure C.1 ; incidence lambertienne en $z = 0$ ($\hat{L}(z = 0, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^0 > 0$) ; vide derrière la frontière en $z = E$ ($\hat{L}(z = E, \boldsymbol{\omega}) = 0$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^E > 0$). c : vide derrière la frontière en $z = 0$ ($\hat{L}(z = 0, \boldsymbol{\omega}) = 0$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^0 > 0$) ; incidence lambertienne en $z = E$ ($\hat{L}(z = E, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$ pour $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}^E > 0$).

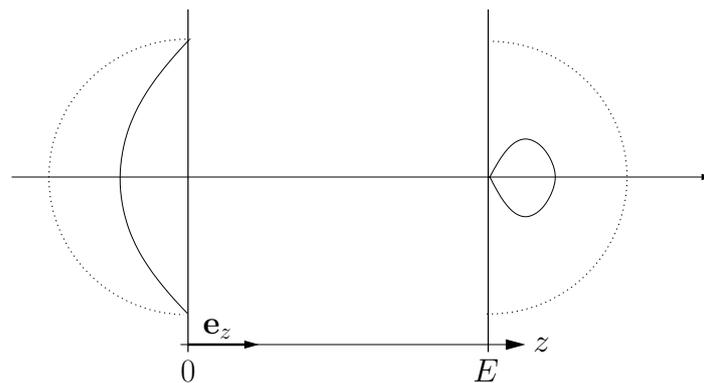


FIGURE C.3: Exemple de distributions angulaires des luminances sortantes (traits pleins) satisfaisant à l'équation C.18 dans la configuration de la figure C.1. La somme des luminances sortantes en $z = 0$ et $z = E$ est isotrope (pointillés).

Par ailleurs, la solution de la configuration a (milieu conservatif à l'équilibre) est $\hat{L}^a(z, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$ en tout point de l'espace des phases, ce qui entraîne :

$$\hat{L}^b(z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}^c(z, \boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi \quad , \forall(z, \boldsymbol{\omega}) \quad (\text{C.16})$$

Si l'on considère maintenant les symétries des configurations b et c par rapport à l'abscisse $z = E/2$, ainsi que la symétrie de révolution de chacune de ces configurations par rapport à \mathbf{e}_z , il vient :

$$\hat{L}^c(z, \boldsymbol{\omega}) = \hat{L}^b(E - z, -\boldsymbol{\omega}) \quad (\text{C.17})$$

En injectant cette relation dans l'équation C.16 et en notant $\hat{L}^b = \hat{L}$ (nous étudions ici la configuration b, voir Fig. C.1), on obtient :

$$\hat{L}(z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(E - z, -\boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi \quad , \forall(z, \boldsymbol{\omega}) \quad (\text{C.18})$$

Cette relation formalise de manière rigoureuse la dépendance entre les distributions des directions de sortie des photons en $z = 0$ et $z = E$ (en prenant $z = 0$ dans l'équation C.18)² :

$$\hat{L}(0, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(E, -\boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi \quad , \text{ pour } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}_0 < 0 \text{ et } -\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}_E < 0 \quad (\text{C.19})$$

Ainsi, si l'on connaît la luminance sortante d'un côté de lame, cela suffit à déterminer complètement la luminance sortante de l'autre côté (voir un exemple à la figure C.3). On retrouve bien par ce raisonnement mésoscopique le lien entre $\langle \mu \rangle_0^-$ et $\langle \mu \rangle_E^-$, et donc entre h_0 et h_E . De plus, le résultat 2 est toujours valide : si l'on postule que la distribution angulaire de la luminance sortante est identique en 0 et en E ($h_0 = h_E = h$), alors ces deux distributions sont nécessairement isotropes (et donc $h = 2/3$).

2. L'équation C.18 suffit à retrouver le résultat de l'équation C.12. De manière générale, on a

$$\begin{aligned} N &= 1/c \int_0^E dz \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(z, \boldsymbol{\omega}) = 1/c \int_0^E dz \int_{2\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(z, -\boldsymbol{\omega}) \\ &= 1/c \int_0^{E/2} dz \int_{2\pi} d\boldsymbol{\omega} \hat{L}(z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(E - z, -\boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(E - z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(z, -\boldsymbol{\omega}) \end{aligned}$$

En utilisant l'équation C.18, on obtient $\hat{L}(z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(E - z, -\boldsymbol{\omega}) = \hat{L}(E - z, \boldsymbol{\omega}) + \hat{L}(z, -\boldsymbol{\omega}) = q_\Gamma/\pi$, et il vient :

$$N = \frac{1}{c} 2\pi \frac{q_\Gamma}{\pi} = q_\Gamma \frac{2E}{c}$$

Annexe D

Simplification de la géométrie du photobioréacteur DiCoFluV et mise en œuvre des approximations P1 et de la diffusion simple

L'objectif de cette annexe est de dégrader progressivement la géométrie complexe du prototype DiCoFluV jusqu'à obtenir une configuration monodimensionnelle équivalente approchée permettant la résolution analytique des approximations P1 et de la diffusion simple qui ont été présentées dans le chapitre 4. Les solutions approchées de la luminance et de l'irradiance ainsi obtenues sont utilisées à la section 5.5 du chapitre 5 afin d'améliorer la convergence d'un algorithme de Monte Carlo grâce au guidage de ses procédures d'échantillonnage dans le contexte de la mise en œuvre du concept de zéro-variance.

Le prototype DiCoFluV (voir Chaps. 1 et 5, ainsi que [7]) correspond à une géométrie relativement complexe. Il s'agit d'un réacteur cylindrique en acier inoxydable contenant un millier de fibres optiques à éclairage latéral assurant une densité surfacique de flux émis q_0 quasi-homogène sur la totalité de leur surface (voir Fig. D.1). La cuve externe du réacteur est notée \mathcal{R} et les fibres, qui sont immergées dans le volume réactionnel \mathcal{V} et émettent le rayonnement, sont notées \mathcal{F} . Les fibres et le réacteur sont modélisés comme des cylindres dont les axes sont alignés. En d'autres termes, la modélisation consiste en une millier de petits cylindres \mathcal{F} contenus dans un cylindre \mathcal{R} plus grand. Les fibres sont disposées périodiquement dans l'espace selon un réseau hexagonal dans le plan perpendiculaire à leur axe (voir Fig. D.1.c).

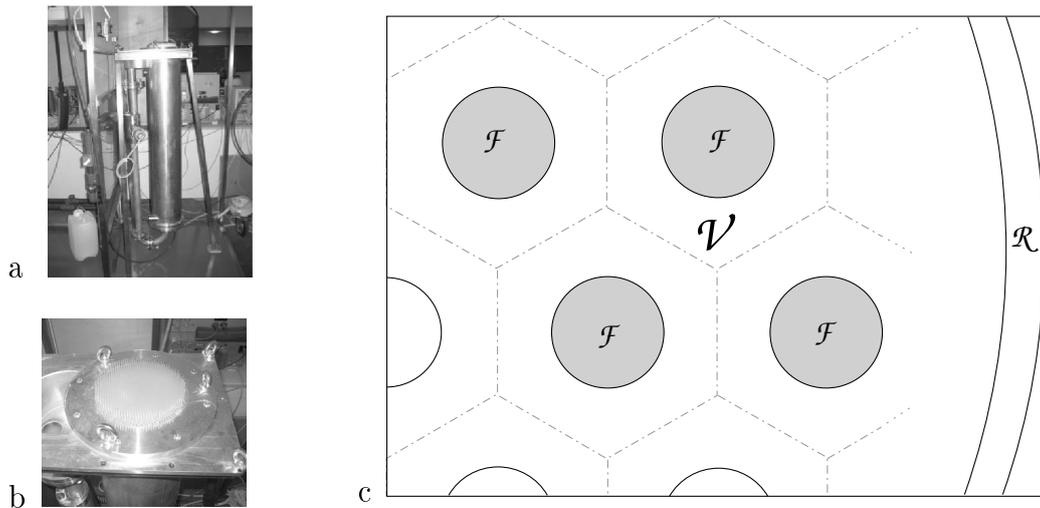
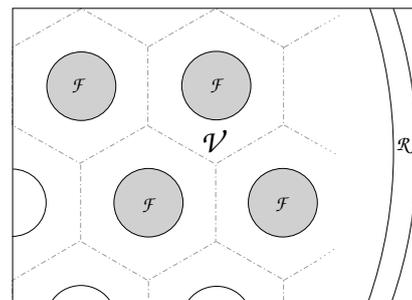


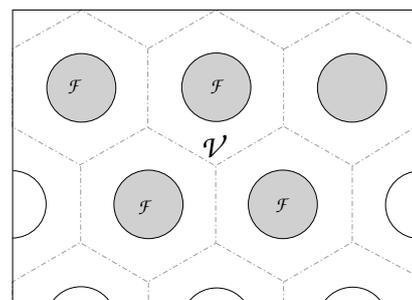
FIGURE D.1: Prototype DiCoFluV [7] de photobioréacteur à éclairage interne. a : Cuve externe \mathcal{R} du réacteur. b : Entrée des fibres \mathcal{F} dans le réacteur. c : Représentation schématique d'une coupe perpendiculaire à l'axe du réacteur. Disposition périodique des fibres dans le volume réactionnel \mathcal{V} selon un réseau hexagonal bidimensionnel dont les mailles sont tracées en pointillés.

Nous allons maintenant construire progressivement une approximation géométrique de ce prototype de photobioréacteur :

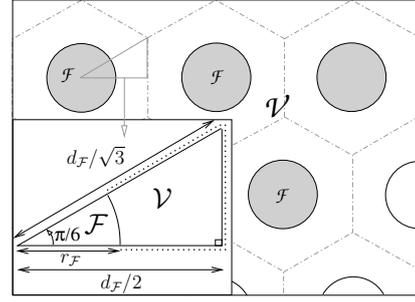
- (1) Pour commencer, les effets associés à la hauteur finie du réacteur sont négligés (la densité surfacique de flux est quasi-homogène à la surface des fibres), ce qui réduit la géométrie aux deux dimensions représentées ci-contre.



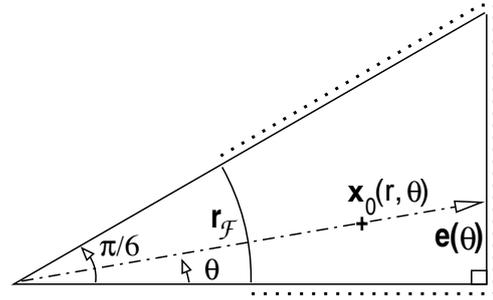
- (2) Puis, les effets liés à la cuve externe du réacteur \mathcal{R} sont eux aussi négligés. Cela revient à considérer un arrangement périodique infini de fibres optiques.



(3) Cet arrangement infini de fibres organisées selon un réseau hexagonal bidimensionnel est équivalent à sa maille élémentaire représentée ci-contre. $r_{\mathcal{F}}$ est le rayon des fibres et $d_{\mathcal{F}}$ est la distance entre les axes de deux fibres voisines.



(4) D'un point de vue radiatif, l'étude du prototype DiCoFluV est ainsi ramenée à la configuration ci-contre qui est associée à un système de coordonnées polaires (r, θ) . La surface en $r = r_{\mathcal{F}}$ est émettrice et les surfaces notées $\dots\dots$ sont des miroirs parfaits (réflexion spéculaire de réflectivité 1). La distance $e(\theta) = \frac{d_{\mathcal{F}}}{2} \frac{1}{\cos(\theta)}$, où $\theta \in [0, \pi/6]$, définit les dimensions du système.



La géométrie simplifiée (4) ne permet toujours pas l'obtention de solutions analytiques pour les approximations P1 et de la diffusion simple. Cette configuration est encore réduite à une géométrie cylindrique monodimensionnelle pour l'approximation P1 (voir Fig. D.2) et à une géométrie plan-parallèle pour l'approximation de la diffusion simple (voir Fig. D.3). Dans les deux cas, pour chaque position $\mathbf{x}_0 \equiv (r, \theta)$ du volume réactionnel, une géométrie monodimensionnelle d'épaisseur $e(\theta) - r_{\mathcal{F}}$ est considérée. L'approximations de la diffusion simple et l'approximation P1 sont donc résolues dans la suite pour des conditions aux limites qui dépendent de la coordonnée θ du point d'observation. Cependant, les modèles associés à chaque valeur de θ sont indépendants les uns des autres.

Les solutions analytiques de la luminance par l'approximation de la diffusion simple et de l'irradiance par l'approximation P1 pour les configurations Figs. D.2 et D.3 sont données ci-dessous. Les résultats correspondants ne sont pas discutés dans cette annexe, il seront utilisés à la section 5.5 dans le contexte de l'optimisation d'un algorithme de Monte Carlo grâce à un échantillonnage préférentiel des fréquences du rayonnement et des directions de départ des chemins optiques.

Approximation P1. Les dérivations suivantes s'appuient sur les résultats obtenus à la section 4.5. L'équation de la diffusion exprimée en coordonnées cylindriques sans séparation

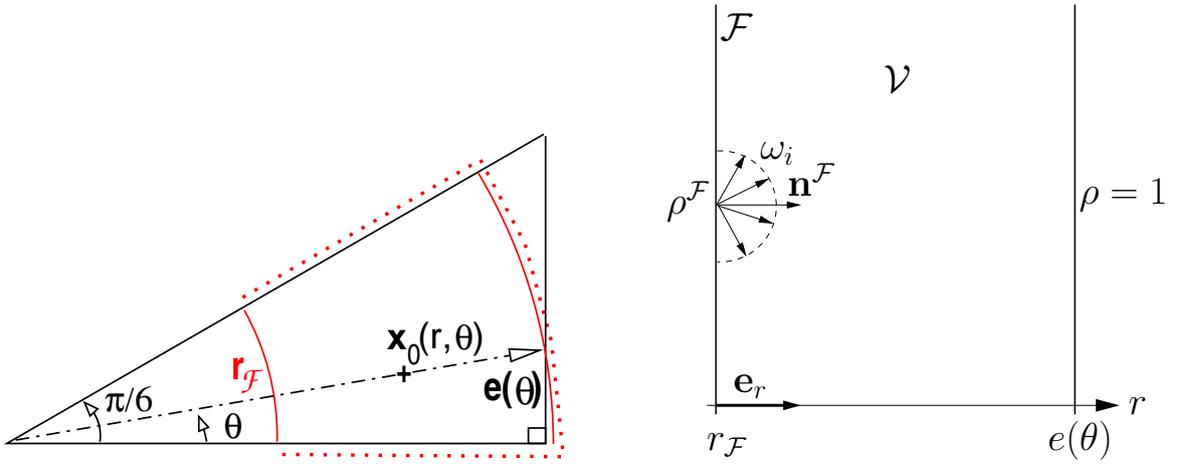


FIGURE D.2: Configuration monodimensionnelle cylindrique utilisée pour l'approximation P1. La surface en $r = e(\theta)$ est réfléchissante spéculaire de réflectivité 1. La position \mathbf{x}_0 est repérée par sa coordonnée r . La surface \mathcal{F} émet un rayonnement lambertien et a une réflectivité $\rho^{\mathcal{F}}$.

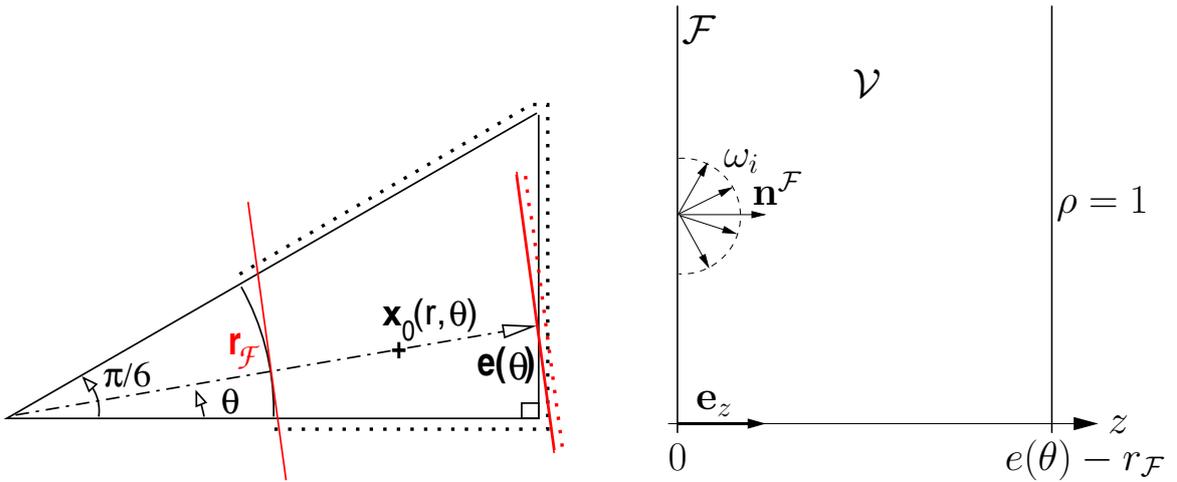


FIGURE D.3: Configuration plan-parallèle utilisée pour l'approximation de la diffusion simple. La surface en $z = e(\theta) - r_{\mathcal{F}}$ est réfléchissante spéculaire de réflectivité 1. La position \mathbf{x}_0 est repérée par sa coordonnée $z = r - r_{\mathcal{F}}$. La surface \mathcal{F} émet un rayonnement lambertien et a une réflectivité nulle.

des photons balistiques et diffus s'écrit dans le cas monodimensionnel :

$$\partial_r^2 \hat{G}(r) + \frac{1}{r} \partial_r \hat{G}(r) = \xi^2 \hat{G}(r) \quad (\text{D.1})$$

où $\xi = \sqrt{k_a/D}$, k_a étant le coefficient linéique d'absorption et D le coefficient de diffusion macroscopique. La solution générale de cette équation est :

$$\hat{G}(r) = C_0 I_0(\xi r) + C_1 K_0(\xi r) \quad (\text{D.2})$$

où I_n et K_n sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre n , respectivement de première et de deuxième espèces. La condition à la limite en $r = r_{\mathcal{F}}$ s'écrit (voir Eq. 4.171) :

$$\hat{G}(r_{\mathcal{F}}) - \mathcal{L}_0 \partial_r \hat{G}(r_{\mathcal{F}}) = q_{\cap} \left(2 + \frac{\mathcal{L}_0}{D} \right) \quad (\text{D.3})$$

où q_{\cap} est la densité surfacique de flux émis à la surface \mathcal{F} et

$$\mathcal{L}_0 = 2/3 \frac{1 + \rho^{\mathcal{F}}}{1 - \rho^{\mathcal{F}}} \frac{1}{k_{ext}^*} \quad (\text{D.4})$$

La condition à la limite en $r = e(\theta)$ est une condition de flux nul (la réflectivité est égale à 1) :

$$\partial_r \hat{G}(e(\theta)) = 0 \quad (\text{D.5})$$

La solution satisfaisant ces conditions aux limites est :

$$\hat{G}(r, \theta) = C(\theta) \left[I_0(\xi r) + \frac{I_1(\xi e(\theta))}{K_1(\xi e(\theta))} K_0(\xi r) \right] \quad (\text{D.6})$$

où

$$C(\theta) = \frac{q_{\cap} (2 + \mathcal{L}_0/D)}{I_0(\xi r_{\mathcal{F}}) - \mathcal{L}_0 \xi I_1(\xi r_{\mathcal{F}}) + \frac{I_1(\xi e(\theta))}{K_1(\xi e(\theta))} (K_0(\xi r_{\mathcal{F}}) + \mathcal{L}_0 \xi K_1(\xi r_{\mathcal{F}}))} \quad (\text{D.7})$$

Approximation de la diffusion simple. Les dérivations suivantes s'appuient sur les résultats obtenus à la section 4.4. On se place dans le problème de transport équivalent k_{ext}^* , α_s^* , et fonction de phase isotrope. Afin d'alléger les écritures, on note $E(\theta) = e(\theta) - r_{\mathcal{F}}$. L'équation de transfert radiatif portant sur la luminance balistique est :

$$\mu \partial_z \hat{L}^{(0)}(z, \mu) = -k_{ext}^* \hat{L}^{(0)}(z, \mu) \quad (\text{D.8})$$

où μ est le cosinus de la direction considérée par rapport à \mathbf{e}_z . Les conditions aux limites sont :

$$\hat{L}^{(0)}(0, \mu) = \frac{q_{\cap}}{\pi} \quad \text{pour } \mu > 0 \quad (\text{D.9})$$

et

$$\hat{L}^{(0)}(E(\theta), \mu) = \hat{L}^{(0)}(E(\theta), -\mu) \quad \text{pour } \mu < 0 \quad (\text{D.10})$$

La solution pour les photons balistiques est :

$$\hat{L}^{(0)}(z, \theta, \mu) = \frac{q_{\Omega}}{\pi} \exp[-k_{ext}^* z / |\mu|] \quad \text{pour } \mu > 0 \quad (\text{D.11})$$

$$\hat{L}^{(0)}(z, \theta, \mu) = \frac{q_{\Omega}}{\pi} \exp[-k_{ext}^* (2E(\theta) - z) / |\mu|] \quad \text{pour } \mu < 0 \quad (\text{D.12})$$

L'équation de transfert radiatif portant sur la luminance d'ordre 1 est :

$$\mu \partial_z \hat{L}^{(1)}(z, \theta, \mu) = -k_{ext}^* \hat{L}^{(1)}(z, \theta, \mu) + \mathcal{C}^{(0)}(z, \theta) \quad (\text{D.13})$$

où le terme source $\mathcal{C}^{(0)}$ est (voir Eq. 4.94 dans laquelle la fonction de phase est isotrope, nous sommes dans le problème de transport équivalent, où la variable d'intégration ω' est changée pour μ) :

$$\mathcal{C}^{(0)}(z, \theta) = \alpha_s^* k_{ext}^* 2\pi \int_{-1}^1 d\mu \hat{L}^{(0)}(z, \theta, \mu) \frac{1}{4\pi} \quad (\text{D.14})$$

En injectant les solutions de $\hat{L}^{(0)}$ pour $\mu > 0$ (Eq. D.11) et $\mu < 0$ (Eq. D.12) dans l'expression ci-dessus, il vient :

$$\mathcal{C}^{(0)}(z, \theta) = \alpha_s^* k_{ext}^* \frac{q_{\Omega}}{2\pi} \int_0^1 d\mu \exp[-k_{ext}^* z / |\mu|] + \exp[-k_{ext}^* (2E(\theta) - z) / |\mu|] \quad (\text{D.15})$$

ce qui donne après intégration

$$\mathcal{C}^{(0)}(z, \theta) = \alpha_s^* k_{ext}^* \frac{q_{\Omega}}{2\pi} [k_{ext}^* z \Gamma(-1, k_{ext}^* z) + k_{ext}^* (2E(\theta) - z) \Gamma(-1, k_{ext}^* (2E(\theta) - z))] \quad (\text{D.16})$$

avec $\Gamma(n, x)$, n entier, la fonction Gamma incomplète. Les conditions aux limites sur $\hat{L}^{(1)}$ sont :

$$\hat{L}^{(1)}(0, \theta, \mu) = 0 \quad \text{pour } \mu > 0 \quad (\text{D.17})$$

$$\hat{L}^{(1)}(E(\theta), \theta, \mu) = \hat{L}^{(1)}(E(\theta), \theta, -\mu) \quad \text{pour } \mu < 0 \quad (\text{D.18})$$

Nous négligeons ici la réflexion des photons diffus à la paroi en $z = E(\theta)$ et la condition à la limite devient :

$$\hat{L}^{(1)}(E(\theta), \theta, \mu) = 0 \quad \text{pour } \mu < 0 \quad (\text{D.19})$$

Par la suite, on note $t = z k_{ext}^*$ et $l(\theta) = E(\theta) k_{ext}^*$. La solution de $\hat{L}^{(1)}$ est :

– Pour $\mu > 0$:

$$\begin{aligned}
\hat{L}^{(1)}(t, \theta, \mu) = & \frac{\alpha_s^*}{2} \frac{q_{\Gamma}}{\pi} \times [\\
& \{ \mu (Ei [-(1 - 1/\mu)t] - ln [-(1 - 1/\mu)] + \Gamma [0, 2l(\theta)]) - 1 - 2l(\theta)\Gamma [-1, 2l(\theta)] \} e^{-t/\mu} \\
& + \mu (Ei [-(1 + 1/\mu)2l(\theta)] - Ei [-(1 + 1/\mu)(2l(\theta) - t)]) e^{(2l(\theta)-t)/\mu} \\
& + \mu (\Gamma [0, t] - \Gamma [0, 2l(\theta) - t]) \\
& + t\Gamma [-1, t] + (2l(\theta) - t)\Gamma [-1, 2l(\theta) - t]]
\end{aligned} \tag{D.20}$$

- Pour $\mu < 0$:

$$\begin{aligned}
\hat{L}^{(1)}(t, \theta, \mu) = & \frac{\alpha_s^*}{2} \frac{q_{\Gamma}}{\pi} \times [\\
& \{ -\mu (Ei [-(1 + 1/\mu)(2l(\theta) - t)] - ln [-(1 + 1/\mu)] + \Gamma [0, 2l(\theta)]) - 1 - 2l(\theta)\Gamma [-1, 2l(\theta)] \} \\
& \quad \times e^{(2l(\theta)-t)/\mu} \\
& + \mu (Ei [-(1 - 1/\mu)t] - Ei [-(1 - 1/\mu)2l(\theta)]) e^{-t/\mu} \\
& + \mu (\Gamma [0, t] - \Gamma [0, 2l(\theta) - t]) \\
& + t\Gamma [-1, t] + (2l(\theta) - t)\Gamma [-1, 2l(\theta) - t]]
\end{aligned} \tag{D.21}$$

où Ei est la fonction exponentielle intégrale.

Annexe E

Calcul de sensibilités aux paramètres géométriques : première extension de la méthodologie présentée au chapitre 7, document de travail écrit en commun avec Olivier Farges

MODÈLE DE SENSIBILITÉ À LA DÉFORMATION DU DOMAINE

document de travail commun

Jérémi Dauchet ^{a,b,◇} et Olivier Farges ^{c,d,*}

^a Université Blaise Pascal Clermont-Ferrand II, Institut Pascal, Axe Génie des Procédés, Energétique et Biosystèmes (GePEB), UMR 6602, BP 10448, F-63000 Clermont-Ferrand.

^b Université Paul Sabatier Toulouse III, Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (LAPLACE), UMR 5213, Bât. 3R1, 118 route de Narbonne, F-31062 Toulouse cedex 9.

^c Centre de Recherche d'Albi en génie des Procédés des Solides Divisés, de l'Energie et de l'Environnement (RAPSODEE), UMR CNRS 5302, École des Mines d'Albi-Carmaux, 81013 Albi Cedex 09, France.

^d Total New Energies, R&D - Concentrated Solar Technologies, Immeuble Lafayette 2, place des Vosges - La Défense 5, 92078 Paris La Défense Cedex.

◇ Email : dauchet@laplace.univ-tlse.fr, jeremi.dauchet@univ-bpclermont.fr

* Email : olivier.farges@mines-albi.fr

Nous allons définir un formalisme et une méthode visant à obtenir un modèle de sensibilité à une déformation d'une surface. Nous recherchons une méthode globale permettant l'obtention d'une sensibilité à un paramètre géométrique.

1 Le calcul de sensibilité

1.1 L'approche classique d'un calcul de sensibilité

La recherche de sensibilités à un paramètre associée aux méthodes de Monte Carlo est bien connue. La démarche suivie consiste à estimer simultanément la grandeur recherchée A et ses sensibilités $\partial_{\pi_i} A$ par rapport à des paramètres π_i . Pour cela, on dérive l'expression de l'algorithme de Monte Carlo utilisé pour calculer la grandeur d'intérêt par le paramètre en question, comme présenté dans les relations Eqs. 1 et 2.

$$A = \int_{D_X} p_X(\mathbf{x}) d\mathbf{x} \int_{D_Y} p_Y(\mathbf{y}|\mathbf{x}) d\mathbf{y} \hat{w}(\mathbf{x}, \mathbf{y}; \pi) \quad (1)$$

$$\partial_{\pi} A = \int_{D_X} p_X(\mathbf{x}) d\mathbf{x} \int_{D_Y} p_Y(\mathbf{y}|\mathbf{x}) d\mathbf{y} \hat{w}_{\pi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}; \pi) \quad (2)$$

En définitif, l'algorithme sur la grandeur est très peu modifié et le temps de calcul supplémentaire est très faible car on utilise les mêmes lois de tirage pour les variables aléatoires.

Toutefois, comme présenté dans [1], on peut classer les calculs de sensibilités en 4 cas distincts en répondant à 3 questions :

1. Est-ce que les lois de tirage dépendent du paramètre π ?
2. Est-ce que le domaine d'intégration dépend de π ?
3. Est-ce que π apparaît à l'intérieur des tests conditionnels de l'algorithme ?

Dans les cas où les réponses aux questions 1 et 2 sont positives, on quitte le domaine des sensibilités paramétriques pour entrer dans celui des sensibilités à la déformation du domaine également appelées sensibilités géométriques. Si la réponse à la question 3 est négative, une méthode a été mise au point dans le cadre de la thèse de M. Roger [2]. Elle repose sur l'introduction d'un champ de vitesse de déformation du domaine. Les résultats sont alors obtenus par un travail de reformulation mathématique sur les expressions.

Si la réponse à la question 3 est positive, il a été montré dans [1] qu'il est possible, par un travail mathématique de reformulation d'obtenir un résultat. Toutefois, si nous sortons des cas académiques, cette méthode présente des difficultés majeures.

1.2 Une démarche originale

Pour cela, nous proposons ici une approche différente pour traiter les problèmes nécessitant un calcul de sensibilité géométrique. Ces problèmes comprennent notamment les problèmes relatifs au design d'installations où les critères géométriques sont prépondérants.

Pour cela, au lieu de chercher à exprimer la grandeur mesurée et sa sensibilité dans le même algorithme, on va poser un modèle sur la grandeur et un modèle sur la sensibilité. La difficulté se reporte sur la recherche des conditions aux limites pour le modèle de sensibilité. C'est une approche nouvelle dans le cadre des méthodes de Monte Carlo. Elle nécessite 2 algorithmes de Monte Carlo mais permet l'obtention d'une sensibilité géométrique.

Un modèle sur la grandeur A

Nous avons donc un algorithme qui permet de connaître l'estimation de notre grandeur d'intérêt A :

$$A = \int_{D_X} p_X(\mathbf{x}) d\mathbf{x} \int_{D_Y} p_Y(\mathbf{y}|\mathbf{x}) d\mathbf{y} \hat{w}(\mathbf{x}, \mathbf{y}; \pi) \quad (3)$$

Un modèle sur la sensibilité à π de la grandeur A

Nous posons la sensibilité S_{π} , la sensibilité de la grandeur A par rapport au paramètre géométrique π :

$$S_{\pi} = \partial_{\pi} A \quad (4)$$

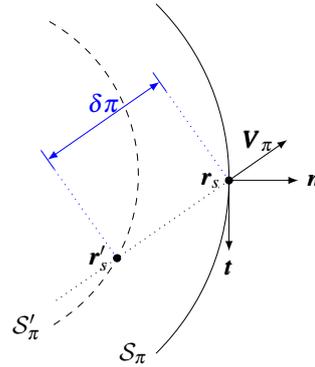


FIGURE 1: Transformation suivant le vecteur vitesse de déformation

2 Aspects géométriques

2.1 Calculs sur la géométrie : définitions

Nous nous plaçons dans un repère en 2D, en considérant l'angle φ connu et fixé, comme présenté sur la figure 2 page suivante. Le repère choisi est un repère de Frénet ayant pour origine le point \mathbf{r}_s que l'on observe. L'abscisse est ainsi selon la tangente à la surface à ce point et l'ordonnée selon la normale à la surface à ce point. La figure 1 reprend cette description. La surface est définie par une fonction paramétrique f , dépendante de l'abscisse et d'un paramètre π . Ce paramètre π fait intervenir une grandeur caractéristique p de la surface et une perturbation infinitésimale $\delta\pi$ de cette grandeur. Un point quelconque $\mathbf{r}(r_x, r_y)$ appartenant à la surface voit donc ses coordonnées répondre à la relation :

$$r_y = f(r_x, \delta\pi) \quad (5)$$

avec :

$$\pi = p - \delta\pi \quad (6)$$

Nous définissons 2 surfaces distinctes :

1. La surface de référence pour laquelle $\delta\pi = 0$ que l'on désigne par \mathcal{S}_π avec $f(r_x, 0)$;
2. Toute autre surface pour laquelle $\delta\pi > 0$ que l'on désigne par \mathcal{S}'_π avec $f(r_x, \delta\pi)$

Exemple : pour une sphère en 3D, nous nous ramenons à un cercle en 2D où la fonction donne :

$$f(x, \delta\pi) = \sqrt{(R - \delta\pi)^2 - x^2} - R + \delta\pi \quad (7)$$

2.2 Caractériser la déformation

Afin de s'affranchir de cas particuliers, nous cherchons à définir la déformation en toute généralité. Pour cela, nous nous appuyons sur le travail de Maxime Roger [2] relatif au vecteur vitesse de déformation du domaine en introduisant le vecteur \mathbf{V}_π . Ce champ vectoriel représente la déformation du domaine en fonction d'une perturbation $\delta\pi$ du paramètre π . Nous définissons une transformation de la surface \mathcal{S}_π vers la surface \mathcal{S}'_π , qui fait correspondre à une position quelconque \mathbf{r}_s de \mathcal{S}_π , une position \mathbf{r}'_s de \mathcal{S}'_π , comme représenté sur la figure 1 :

$$\mathbf{r}'_s - \mathbf{r}_s = -\text{sign}[\mathbf{V}_\pi \cdot \mathbf{n}] \times \delta\pi \times \mathbf{V}_\pi \quad (8)$$

$$\mathbf{r}'_s - \mathbf{r}_s = -\delta\pi \times \mathbf{V}_\pi \quad (9)$$

$$\mathbf{r}'_s = -\delta\pi \times \mathbf{V}_\pi + \mathbf{r}_s \quad (10)$$

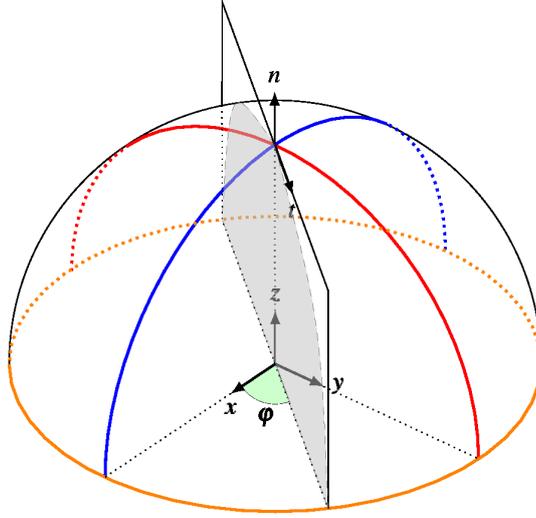


FIGURE 2: Passage de 3D vers 2D

3 Le problème

3.1 Configuration radiative étudiée

Nous sommes en présence d'une configuration radiative donnée, dont la géométrie est définie par un paramètre π . Nous pouvons citer quelques exemples :

- Dans une configuration de *photobioréacteur* :
 - ✓ Le rayon des fibres,
 - ✓ La distance entre les fibres, ...
- Dans une configuration *solaire à concentration* :
 - ✓ La distance focale d'un miroir,
 - ✓ La position du récepteur,
 - ✓ La forme d'une optique beamdown,...

La grandeur d'intérêt est la luminance $L(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi)$ obéissant à l'ETR (Eq. 11) et aux conditions aux limites (Eq. 12) associées au problème étudié. Il faut bien prendre en compte la dépendance de ce domaine au paramètre π .

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}_{\mathbf{r}} L = -k_a L(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + k_d \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' L'(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}'; \pi) p(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (11)$$

$$L(\mathbf{r} \in \partial\Omega(\pi), \boldsymbol{\omega}^+; \pi) \equiv \begin{cases} \text{Fixé} \\ \text{ou} \\ f[L(\mathbf{r} \in \partial\Omega(\pi), \boldsymbol{\omega}^-; \pi)] \end{cases} \quad (12)$$

Nous pouvons alors distinguer de nombreux cas pour nos conditions aux limites :

1. Fixé :
 - Corps noir : $L^+ = L^0(\mathbf{r})\mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r}))$;
 - Corps noir et température homogène : $L^+ = L^0\mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n})$;
 - Laser : $L^+ = L^0(\mathbf{r})\delta(\boldsymbol{\omega}^+ - \boldsymbol{\omega}_s(\mathbf{n}(\mathbf{r})))$;
2. Réflexion :
 - Réflexion diffuse : $L^+ = \rho \int d\boldsymbol{\omega} \frac{1}{4\pi} L(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}^-; \pi) \mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r}))$;
 - Réflexion spéculaire : $L^+ = \rho L(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}^{spec}; \pi)$;

3.2 Modèle de sensibilité

On pose S_π la sensibilité par rapport au paramètre π :

$$S_\pi = \partial_\pi L \quad (13)$$

On dérive directement de l'ETR :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}_{\mathbf{r}} S_\pi(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = -k_a S_\pi(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + k_d \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' S'_\pi(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) p(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (14)$$

Qui s'écrit également :

$$\boldsymbol{\omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}_{\mathbf{r}} \partial_\pi L(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) = -k_a \partial_\pi L(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) + k_d \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}' \partial_\pi L'(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}; \pi) p(\boldsymbol{\omega}|\boldsymbol{\omega}') \quad (15)$$

Il faut maintenant exprimer les conditions aux limites sur une surface qui se déforme. La démarche consiste à chercher, pour $\delta\pi \ll \pi$ l'expression de $L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi)$ en fonction des luminances entrantes dans la sous-couche $L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi)$ solution de la configuration. Nous exprimons ensuite la sensibilité de cette grandeur selon le paramètre géométrique $\partial_3 L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi)$. À ce stade, nous prenons $\delta\pi \rightarrow 0$ pour obtenir $\partial_3 L^+$, les conditions aux limites du problème en sensibilité.

Dans le cadre de ce travail dans un sous-problème (la sous-couche entre S_π et S'_π) avec $\delta\pi$ infinitésimal, nous allons écrire la solution $L(\mathbf{r}_1, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi)$ comme un développement limité en ordre de diffusion :

$$L(\mathbf{r}_1, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi) = L^{(0)}(\mathbf{r}_1, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi) + L^{(1)}(\mathbf{r}_1, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi) + \dots \quad (16)$$

Les termes de diffusion supérieurs ou égales à l'ordre 2 comprendront des termes en $\delta\pi^n$ avec $n \geq 2$. De ce fait, lorsque nous les dériverons et prendrons la limite quand $\delta\pi \rightarrow 0$, ils ne contribueront pas. D'un point de vue physique, nous sommes dans un milieu optiquement mince, nous pouvons dire qu'il n'y aura presque pas de diffusion dans une sous-couche de largeur $\delta\pi$ avec $\delta\pi \rightarrow 0$, donc si il n'y a que peu de diffusion, la probabilité de voir deux diffusions ou plus est inexistante.

Le terme de diffusion simple a été étudié précédemment dans le cas d'une configuration *slab* :

- Il ne pose pas de problème : les conditions aux limites existent ;
- Intuitivement, il n'y a pas de raison que l'introduction de la courbure de S_π introduise de difficulté.

Nous allons donc nous concentrer sur les termes balistiques. En effet, l'étude dans la configuration *slab* met en lumière une difficulté lorsque l'on considère des conditions aux limites avec réflexion en géométrie 2D. De plus, on pressent que la courbure va avoir un effet sur ce terme de par l'existence de 3 cas distincts, comme représenté sur la figure 3 page suivante.

3.3 Contribution des balistiques

Comme indiqué au 2.1 page 1, nous nous plaçons dans un cas 2D. Cela implique que nous prenons une configuration avec un angle φ connu. En toute généralité, il faudrait rajouter une dépendance à la tangente dans les expressions qui vont suivre.

La figure 3 page suivante illustre les différentes contributions que nous pouvons avoir. Nous pouvons ainsi exprimer $L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi)$ comme :

$$\begin{aligned} L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi) = & \mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} > \mu_l(\delta\pi)) [L^0(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))) \\ & + L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi)), \delta\pi)] \exp[-k|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|] \\ & + \mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} < \mu_l(\delta\pi)) L^D(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi) \exp[-k|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|] \end{aligned} \quad (17)$$

Nous dérivons cette expression par $\delta\pi^1$:

1. Un travail précédent sur les intégrales de la luminance nous a amené à la conclusion que l'on pouvait dériver directement l'expression de la luminance

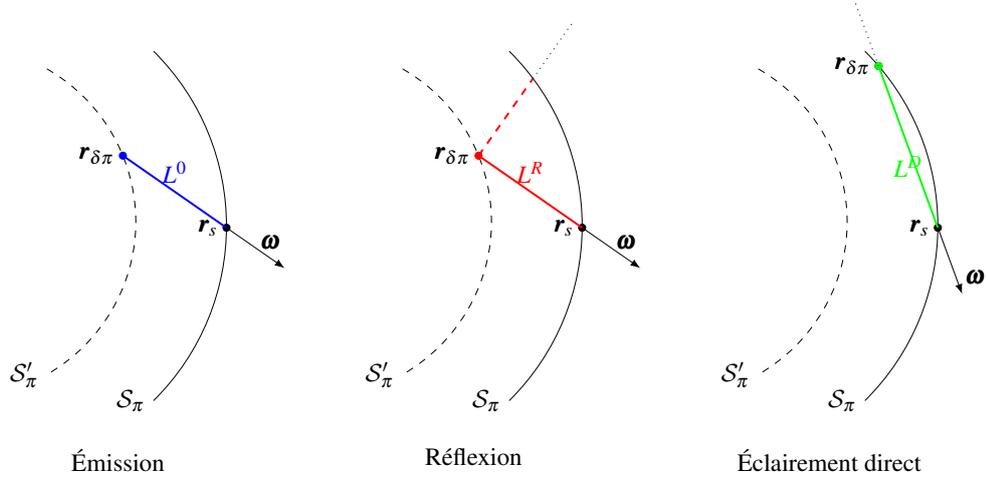


FIGURE 3: Différentes contributions

$$\begin{aligned}
\partial_3 L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^+; \delta\pi) &= \delta(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} = \mu_l(\delta\pi)) \times \partial_{\delta\pi} \mu_l [L^0(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))) + L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))), \delta\pi) \\
&\quad - L^D(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi)] \exp[-k|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|] \\
&\quad + \mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} > \mu_l(\delta\pi)) [-k\partial_{\delta\pi}|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}| (L^0(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi)))) \\
&\quad + L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))), \delta\pi)] \\
&\quad + \partial_{\delta\pi} \mathbf{r}_{\delta\pi} \left(\overrightarrow{\text{grad}}_1 L^0(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))) + \overrightarrow{\text{grad}}_1 L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))), \delta\pi) \right) \\
&\quad + \partial_{\delta\pi} \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}) \left(\overrightarrow{\text{grad}}_3 L^0(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))) + \overrightarrow{\text{grad}}_3 L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))), \delta\pi) \right) \\
&\quad + \partial_4 L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi))), \delta\pi] \exp[-k|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|] + \mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} < \mu_l(\delta\pi)) \\
&\quad \times [-k\partial_{\delta\pi}|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}| L^D(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi) + \partial_3 L^D(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi)] \exp[-k|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|] \quad (18)
\end{aligned}$$

3.4 Limite quand $\delta\pi \rightarrow 0$

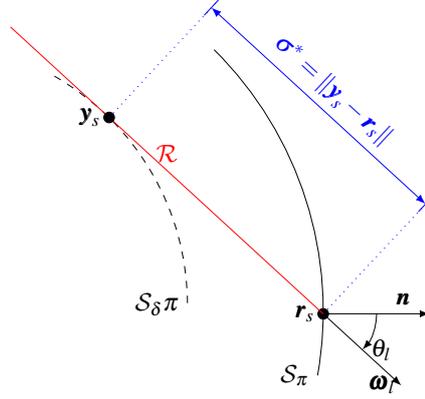
Lorsque nous faisons tendre $\delta\pi$ vers 0, alors, nous avons également $\theta_l \rightarrow 0$ et $\mathbf{r}_{\delta\pi} \rightarrow \mathbf{r}_s$. En utilisant les expressions obtenues par le travail de géométrie (voir 2.1 page 1), nous obtenons :

$$\begin{aligned}
\partial_3 L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) &= \delta(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} = 0) \times \underbrace{\partial_{\delta\pi} \mu_l(0)}_{\substack{-\mathbf{V}_\pi \cdot \mathbf{n} \\ \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} \times c}} \times [L^0(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_s)) + L^R \mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_s)) + L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega})] \\
&\quad + k \underbrace{\partial_{\delta\pi} |\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|}_{(\delta\pi = 0)} \times [L^0(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) + L^R \mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega})] \\
&\quad \left\{ \begin{array}{l} \text{si } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} \neq 0 : \frac{-\mathbf{V}_\pi \cdot \mathbf{n}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}} \\ \text{si } \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} = 0 : 0 \end{array} \right. \\
&\quad + \underbrace{\partial_{\delta\pi} \mathbf{r}_{\delta\pi}}_{(\delta\pi = 0)} \left[\overrightarrow{\text{grad}}_r L^0(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) + \overrightarrow{\text{grad}}_r L^R(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) \right] \\
&\quad \underbrace{\frac{-\mathbf{V}_\pi \cdot \mathbf{n}}{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n}} \times \boldsymbol{\omega}}_{\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} = 0} \\
&\quad + \partial_{\delta\pi} \mathbf{n}(\delta\pi = 0) \left[\overrightarrow{\text{grad}}_n L^0(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) + \overrightarrow{\text{grad}}_n L^R(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) \right] + \partial_3 L^R(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}; 0) \quad (19)
\end{aligned}$$

Nous allons maintenant chercher à expliciter les termes de la relation 19. Nous avons des termes provenant de la réflexion, des termes provenant de l'émission.

3.5 Termes issus de la réflexion

Dans le cas d'une réflexion diffuse.

FIGURE 4: Existence du point \mathbf{y}_s

$$L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi})) = \rho \int_{4\pi} d\boldsymbol{\omega}^- \frac{1}{2\pi} L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi) \mathcal{H}(\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{n} < 0) \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \overrightarrow{\text{grad}}_1 L^R(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi), \boldsymbol{\omega}; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}(\delta\pi)), \delta\pi) &= \rho \int_{h^-(\mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi}))} d\boldsymbol{\omega}^- p(\boldsymbol{\omega} | \boldsymbol{\omega}^-; \mathbf{n}(\mathbf{r}_{\delta\pi})) \\ &\times \left[\overrightarrow{(\partial_{\mathbf{r}_{\delta\pi}} \mathbf{r}_s)} \times \overrightarrow{\text{grad}}_1 L(\mathbf{r}_s(\mathbf{r}_{\delta\pi}), \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi) \right. \\ &\left. - k \overrightarrow{\text{grad}}_{\mathbf{r}_{\delta\pi}} |\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}| \times L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^-; \delta\pi) \right] \exp(-k|\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_{\delta\pi}|) \quad (21) \end{aligned}$$

Lorsque $\delta\pi \rightarrow 0$, alors, nous avons également $\mathbf{r}_{\delta\pi} \rightarrow \mathbf{r}_s$ et $\mathbf{r}'_s \rightarrow \mathbf{r}_s$. De ce fait, nous avons $\overrightarrow{(\partial_{\mathbf{r}_{\delta\pi}} \mathbf{r}'_s)} \rightarrow \mathcal{I}d$. Nous avons la relation :

$$\overrightarrow{\text{grad}}_r L^R(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}) = \rho \int_{h^-(\mathbf{n}(\mathbf{r}_s))} d\boldsymbol{\omega}^- p(\boldsymbol{\omega} | \boldsymbol{\omega}^-; \mathbf{n}(\mathbf{r}_s)) \times \overrightarrow{\text{grad}}_r L(\mathbf{r}_s, \boldsymbol{\omega}^-) \quad (22)$$

4 Intersection et équation de droite

Nous identifions un cas limite lorsque la demi-droite \mathcal{R} passant par \mathbf{r}_s et portant le vecteur $\boldsymbol{\omega}$ est tangente à S'_π en \mathbf{y}_s . Cette configuration est représentée sur la figure 4. Cette demi-droite peut être définie à partir des coordonnées du point \mathbf{r}_s , de la direction $\boldsymbol{\omega}_l$ et d'un réel $\sigma \in [0, +\infty]$. Elle est constituée de l'ensemble des points \mathbf{r} tels que :

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_s - \sigma \boldsymbol{\omega}_l \quad (23)$$

$$= \begin{cases} r_1 - \sigma \sin \theta_l \\ r_2 - \sigma \cos \theta_l \end{cases} \quad (24)$$

Le point \mathbf{y}_s est le point d'intersection entre la demi-droite \mathcal{R} et la surface S'_π défini pour une valeur fixée de $\sigma = \sigma^*$. Ce point appartenant à la surface S'_π , nous pouvons donc écrire :

$$y_2 = f(y_1, \delta\pi) \quad (25)$$

$$y_2 - \sigma^* \cos \theta_l = f(y_1 - \sigma^* \sin \theta_l) \quad (26)$$

Autour de ce cas limite, 2 cas distincts peuvent exister si l'on parcourt les directions possibles suivant les angles $\theta \in [0, \frac{\pi}{2}[$:

- Quand $\theta > \theta_l$, alors $\mathbf{y}_s \in S_\pi$;
- Quand $\theta < \theta_l$, alors $\mathbf{y}_s \in S'_\pi$;

4.1 Cas où $\mathbf{y}_s \in \mathcal{S}_\pi$:

Par définition, nous avons $f(0, p) = 0$, $r_1 < 0$, $\mathbf{r}_s = \mathbf{0}$ et $r_2 = f(r_1, p)$. Nous cherchons à exprimer la distance σ^* . Pour cela, à partir de la relation entre r_1 et r_2 , nous réalisons un développement limité autour de $r_1 = 0$:

$$r_2 = f(r_1, p) \quad (27)$$

$$= f(0, p) + \partial_1 f(0, p)r_1 + \frac{1}{2}\partial_1^2 f(0, p)r_1^2 + \dots \quad (28)$$

Le point \mathbf{y}_s appartient à de la surface \mathcal{S}'_π donc ces coordonnées vérifient la relation $y_2 = f(y_1, p)$ avec

$$y_2 = f(y_1, p) \quad (29)$$

$$-\sigma^* \omega_2 = f(-\sigma^* \omega_1, p) \quad (30)$$

Nous avons une racine triviale pour $\sigma^* = 0$, soit $\mathbf{r}_s = \mathbf{y}_s$. La solution à notre problème nécessite d'aller à l'ordre 2. Nous les injectons à la relation 28 pour obtenir :

$$-\sigma^* \omega_2 = f(0, p) + \partial_1 f(0, p)(-\sigma^* \omega_1) + \frac{1}{2}\partial_1^2 f(0, p)(-\sigma^* \omega_1)^2 + \dots \quad (31)$$

$$-\sigma^* \omega_2 = \frac{1}{2}\partial_1^2 f(0, p)(-\sigma^* \omega_1)^2 + \dots \quad (32)$$

$$\sigma^* = -\frac{2}{\partial_1^2 f(0, p)} \times \frac{\omega_2}{\omega_1^2} \quad (33)$$

$$\sigma^* = -\frac{2}{\mathcal{C}} \times \frac{\cos \omega}{1 - \cos^2 \omega} \quad (34)$$

où \mathcal{C} est la courbure au point \mathbf{r}_s .

4.2 Cas où $\mathbf{y}_s \in \mathcal{S}'_\pi$:

Nous avons maintenant la surface \mathcal{S}'_π dont les points sont définis par la relation $f(r_1, \pi)$ pour $\delta\pi > 0$. Nous réalisons, comme précédemment un développement limité autour de $r_1 = 0$:

$$r_2 = f(r_1, \delta\pi) \quad (35)$$

$$= f(0, \delta\pi) + \partial_1 f(0, \delta\pi)r_1 + \frac{1}{2}\partial_1^2 f(0, \delta\pi)r_1^2 + \dots \quad (36)$$

Par la suite, nous réalisons un développement limité autour de $\delta\pi = 0$:

$$\begin{aligned} r_2 &= f(0, 0) + \partial_2 f(0, 0)\delta\pi + \partial_2^2 f(0, 0)\delta\pi^2 \\ &+ [\partial_1 f(0, 0) + \partial_2 \partial_1 f(0, 0)\delta\pi + \partial_2^2 \partial_1 f(0, 0)\delta\pi^2] \times r_1 \\ &+ \frac{1}{2} [\partial_1^2 f(0, 0) + \partial_2 \partial_1^2 f(0, 0)\delta\pi + \partial_2^2 \partial_1^2 f(0, 0)\delta\pi^2] \times r_1^2 + \dots \end{aligned} \quad (37)$$

Nous allons introduire des notations afin de simplifier les expressions et leur lecture :

$$\begin{aligned} r_2 &= \underbrace{f(0, 0) + \partial_2 f(0, 0)\delta\pi + \partial_2^2 f(0, 0)\delta\pi^2}_{P_0 = a_0 + b_0 \delta\pi + c_0 \delta\pi^2} \\ &+ \left[\underbrace{\partial_1 f(0, 0) + \partial_2 \partial_1 f(0, 0)\delta\pi + \partial_2^2 \partial_1 f(0, 0)\delta\pi^2}_{P_1 = a_1 + b_1 \delta\pi + c_1 \delta\pi^2} \right] \times r_1 \\ &+ \frac{1}{2} \left[\underbrace{\partial_1^2 f(0, 0) + \partial_2 \partial_1^2 f(0, 0)\delta\pi + \partial_2^2 \partial_1^2 f(0, 0)\delta\pi^2}_{P_2 = a_2 + b_2 \delta\pi + c_2 \delta\pi^2} \right] \times r_1^2 + \dots \end{aligned} \quad (38)$$

Dans ce cas, le point y_s appartient à une surface pour laquelle $\delta\pi > 0$ donc à la surface \mathcal{S}'_π . Ses coordonnées vérifient la relation :

$$y_2 = f(y_1, \pi) \quad (39)$$

$$-\sigma^* \omega_2 = f(-\sigma^* \omega_1, \delta\pi) \quad (40)$$

Nous pouvons injecter les coordonnées du point y_s dans la relation 38 page précédente :

$$-\sigma^* \omega_2 = P_0 + P_1 \times (-\sigma^* \omega_1) + P_2 \times (-\sigma^* \omega_1)^2 \quad (41)$$

$$P_0 + (\omega_2 - P_1 \omega_1) \times \sigma^* + P_2 \times \omega_1^2 \sigma^{*2} = 0 \quad (42)$$

Nous avons un polynôme de degré 2 en σ^* . Pour obtenir l'expression de σ^* , nous avons seulement besoin du premier ordre. En effet, seule la première intersection entre la demi-droite et la surface \mathcal{S}'_π nous intéresse. Nous avons donc :

$$P_0 + (\omega_2 - P_1 \omega_1) \times \sigma^* = 0 \quad (43)$$

$$\sigma^* = \frac{-P_0}{\omega_2 - P_1 \omega_1} \quad (44)$$

Nous recherchons maintenant l'expression de l'angle caractéristique θ_l définissant la tangente issue de r_s à la surface $\mathcal{S}_\delta\pi$, comme présentée sur la figure ... Pour cela, nous allons chercher le racine double de la relation 42. En effet, pour obtenir θ_l nous ne pouvons avoir qu'une seule et unique valeur pour σ^* puisque nous n'avons qu'une intersection avec la tangente. Nous recherchons le discriminant :

$$\Delta = (\omega_2 - P_1 \omega_1)^2 - 4P_0P_2\omega_1^2 \quad (45)$$

Comme nous l'avons dit, nous recherchons la distance σ^* entre les points r_s et y_s . Nous recherchons l'expression de θ_l pour $\Delta = 0$:

$$(\omega_2 - P_1 \omega_1)^2 - 4 \times P_0 \times P_2 \times \omega_1^2 = 0 \quad (46)$$

$$(\cos \theta_l - P_1 \sin \theta_l)^2 - 4P_0P_2 \sin^2 \theta_l = 0 \quad (47)$$

$$\cos^2 \theta_l - 2P_1 \cos \theta_l \sin \theta_l + P_1^2 \sin^2 \theta_l - 4P_0P_2 \sin^2 \theta_l = 0 \quad (48)$$

$$[P_1^2 - 4P_0P_2] \times \tan^2 \theta_l - 2P_1 \tan \theta_l + 1 = 0 \quad (49)$$

Nous obtenons une équation du second degré en $\tan \theta_l$. Nous recherchons ses racines :

$$\Delta' = P_1^2 - P_1^2 + 4P_0P_2 \quad (50)$$

$$= 4P_0P_2 \quad (51)$$

$$S_1 = \frac{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}}{P_1^2 - 4P_0P_2} \quad (52)$$

$$S_2 = \frac{P_1 - \sqrt{4P_0P_2}}{P_1^2 - 4P_0P_2} \quad (53)$$

Nous savons, par définition que $\theta_l \in \left[0, \frac{\pi}{2}\right]$, de ce fait, nous avons une contrainte pour évaluer la valeur de $\tan \theta_l \in [0, +\infty[$. Nous allons rechercher quelle racine répond à cette contrainte. Les racines sont de la forme :

$$S = \frac{a \pm b}{a^2 - b^2} \quad (54)$$

$$= \frac{a \pm b}{(a - b) \times (a + b)} \quad (55)$$

où $a = P_1$ et $b = \sqrt{4P_0P_2}$.

Cas 1 : Signe +

Nous avons alors :

$$S^+ = \frac{a+b}{(a-b) \times (a+b)} \quad (56)$$

$$= \frac{1}{(a-b)} \quad (57)$$

Cas 2 : Signe –

Nous avons alors :

$$S^- = \frac{a-b}{(a-b) \times (a+b)} \quad (58)$$

$$= \frac{1}{(a+b)} \quad (59)$$

En nous appuyant sur la géométrie (figure ...), lorsque $\theta_l \rightarrow \frac{\pi}{2}$ nous recherchons la racine positive :

$$\lim_{\delta\pi \rightarrow 0} S = +\infty \quad (60)$$

Nous avons :

$$S = \frac{1}{P_1 \pm \sqrt{4P_0P_2}} \quad (61)$$

Nous développons cette expression puis nous la divisons par $\sqrt{\delta\pi}$:

$$S = \frac{1}{b_1 \delta\pi \pm \sqrt{4 \times b_0 \delta\pi \times (a_2 + b_2 \delta\pi)}} \quad (62)$$

$$= \frac{1/\sqrt{\delta\pi}}{\pm 2\sqrt{a_2 b_0} + 2 \times \sqrt{\delta\pi} (b_1 \pm \sqrt{b_0 b_2})} \quad (63)$$

Soit en prenant la limite de S pour $\delta\pi \rightarrow 0$:

$$\lim_{\delta\pi \rightarrow 0} S = \frac{\overbrace{1/\sqrt{\delta\pi}}^{\rightarrow +\infty}}{\underbrace{\pm 2\sqrt{a_2 b_0}}_{>0} + \underbrace{2 \times \sqrt{\delta\pi} (b_1 \pm \sqrt{b_0 b_2})}_{\rightarrow 0}} \quad (64)$$

Nous en déduisons l'expression de $\tan \theta_l$:

$$\tan \theta_l = \frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \quad (65)$$

Nous pouvons maintenant exprimer l'angle limite θ_l :

$$\theta_l = \arctan \left[\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right] \quad (66)$$

Nous avons besoin de l'expression de la dérivée de l'angle limite θ_l par selon la déformation infinitésimale $\delta\pi$, soit $\partial_{\delta\pi} \theta_l$. D'après la relation 66, nous pouvons écrire :

$$\partial_{\delta\pi}\theta_l = \frac{1}{1 + \left[\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right]^2} \times \partial_{\delta\pi} \left[\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right] \quad (67)$$

$$= \frac{1}{1 + \tan^2 \theta_l} \times \partial_{\delta\pi} \left[\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right] \quad (68)$$

Nous avons $\lim_{\delta\pi \rightarrow 0} \partial_{\delta\pi}\theta_l = \infty$ or, nous allons démontrer que $\partial_{\delta\pi}\theta_l$ tend vers l'infini comme $\frac{1}{\cos \theta_l}$ (on a vu que θ_l tend vers $\frac{\pi}{2}$ lorsque $\delta\pi$ tend vers 0 ce qui nous est nécessaire pour l'écriture des conditions aux limites.

Nous pouvons donc écrire :

$$\partial_{\delta\pi}\theta_l = \frac{1}{\cos \theta_l} \frac{1}{[1 + \tan^2 \theta_l]^{3/2}} \times \partial_{\delta\pi} \left[\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right] \quad (69)$$

$$= \frac{1}{\cos \theta_l} \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right)^2 \right]^{3/2}} \times \partial_{\delta\pi} \left[\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right] \quad (70)$$

$$= \frac{1}{\cos \theta_l} \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right)^2 \right]^{3/2}} \times \frac{-1}{(P_1 + \sqrt{4P_0P_2})^2} \times \partial_{\delta\pi} [P_1 + \sqrt{4P_0P_2}] \quad (71)$$

$$= \frac{1}{\cos \theta_l} \frac{-\tan^2 \theta_l}{[1 + \tan^2 \theta_l]} \times \underbrace{\frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right)^2}}}_{A} \times \partial_{\delta\pi} [P_1 + \sqrt{4P_0P_2}] \quad (72)$$

Nous développons :

$$\partial_{\delta\pi} [P_1 + \sqrt{4P_0P_2}] = b_1 - \frac{b_0a_2 + 2b_0b_2\delta\pi}{\sqrt{b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2}} \quad (73)$$

$$1 + \left(\frac{1}{P_1 + \sqrt{4P_0P_2}} \right)^2 = 1 + \left[\frac{1}{b_1\delta\pi + 2\sqrt{b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2}} \right]^2 \quad (74)$$

$$A = \frac{b_1 - \frac{b_0a_2 + 2b_0b_2\delta\pi}{\sqrt{b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2}}}{\sqrt{1 + \left[\frac{1}{b_1 + \sqrt{4(b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2)}} \right]^2}} \times \frac{\sqrt{b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2}}{\sqrt{b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2}} \quad (75)$$

$$= \frac{b_1\sqrt{b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2} - 2b_0b_2\delta\pi - b_0a_2}{\left[b_0a_2\delta\pi + b_0b_2\delta\pi^2 + \left[\frac{1}{1 + \frac{b_1\sqrt{\delta\pi}}{\sqrt{b_0a_2 + b_0b_2\delta\pi}}} \right]^2 \right]^{1/2}} \quad (76)$$

Nous avons donc :

$$\partial_{\delta\pi}\theta_l = \frac{-1}{\cos \theta_l} \frac{\tan^2 \theta_l}{1 + \tan^2 \theta_l} \times A \quad (77)$$

Nous recherchons la limite de $\partial_{\delta\pi}\theta_l$ quand $\delta\pi \rightarrow 0$:

$$\lim_{\delta\pi \rightarrow 0} \frac{\tan^2 \theta_l}{1 + \tan^2 \theta_l} = \lim_{\delta\pi \rightarrow 0} \frac{x}{1+x} = 1 \quad (78)$$

$$\lim_{\delta\pi \rightarrow 0} A = -b_0 a_2 \quad (79)$$

On obtient donc :

$$\lim_{\delta\pi \rightarrow 0} \partial_{\delta\pi} \theta_l = \frac{1}{\cos \theta_l} b_0 a_2 \quad (80)$$

Bibliographie

- [1] J. DE LA TORRE. *Calculs de sensibilités par la méthode de monte-carlo pour la conception de procédés à énergie solaire concentrée*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2011.
- [2] M. ROGER. *Modèles de sensibilité dans le cadre de la méthode de Monte-Carlo : illustrations en transfert radiatif*. PhD thesis, Ecole doctorale : Transferts, Dynamique des fluides, Énergétique et Procédés Spécialité : Énergétique et transferts.

