



**HAL**  
open science

# Simulation de la signature infrarouge des phénomènes lumineux transitoires en moyenne atmosphère

Frédéric Romand

► **To cite this version:**

Frédéric Romand. Simulation de la signature infrarouge des phénomènes lumineux transitoires en moyenne atmosphère. Optique / photonique. SORBONNE UNIVERSITE, 2018. Français. NNT : . tel-01969510v1

**HAL Id: tel-01969510**

**<https://hal.science/tel-01969510v1>**

Submitted on 4 Jan 2019 (v1), last revised 15 Oct 2019 (v2)

**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.

## Sorbonne Université

École doctorale des Sciences de l'Environnement

*Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales, Département Optique et  
Techniques Associées, unité Modélisation Physique de la Scène Optronique*

&

*Laboratoire ATmosphères, Milieux, Observation Spatiale, équipe Stratosphère, Haute  
Troposphère et Interfaces*

# Simulation de la signature infrarouge des phénomènes lumineux transitoires en moyenne atmosphère

Par Frédéric Romand

Spécialité : Sciences Physiques et Chimie de l'Atmosphère

Dirigée par Sébastien Payan  
Encadrée par Laurence Croizé

Présentée et soutenue publiquement le 03/10/2018

Devant un jury composé de :

Elisabeth BLANC	Directrice de Recherche, CEA	Rapporteuse
Sébastien CELESTIN	Maître de Conférences, Université d'Orléans	Rapporteur
Laurence CROIZE	Chercheur, ONERA	Invitée
Alain HAUCHECORNE	Directeur de Recherche, CNRS	Examineur
Denis PACKAN	Chercheur, ONERA	Examineur
Sébastien PAYAN	Professeur, Sorbonne Université	Directeur de thèse



**Mots clés :** chimie plasma, chimie vibrationnelle, transfert radiatif, rayonnement infrarouge, phénomènes lumineux transitoires, *sprites*, stratosphère, mésosphère, HALESIS

**Résumé :** Les *sprites* sont les plus communs des phénomènes lumineux transitoires (TLEs, *transient luminous events*) en moyenne atmosphère. Leurs émissions radiatives, dans la gamme du visible, du proche infrarouge et du proche ultraviolet, ont principalement été attribuées à l'excitation des états électroniques de  $N_2$  et  $N_2^+$ . Encore jamais observées, des émissions dans l'infrarouge moyen et lointain ont également été prédites et seraient liées aux états vibrationnels de  $CO_2$ . L'intérêt de l'étude du rayonnement infrarouge des *sprites* est dual. Dans les sciences de l'atmosphère, la composition chimique du milieu peut être retrouvée à travers différentes méthodes de télédétection infrarouge. Pour la Défense, l'émission infrarouge des *sprites* pourrait être la cause d'une fausse alarme pour les systèmes de veille optronique satellitaires ou aéroportés. C'est pourquoi il est important de pouvoir caractériser le rayonnement infrarouge des *sprites*.

Le premier objectif de ce travail est de caractériser la chimie vibrationnelle consécutive à ces phénomènes, car, dans ce contexte, celle-ci constitue un mode de production de rayonnement infrarouge encore partiellement expliqué. Le second est de quantifier les émissions radiatives associées, et de les propager à travers l'atmosphère, vers différents types d'observateurs (au sol, en vol, en orbite).

Pour cela, nous avons développé un modèle de cinétique plasma-vibrationnelle, couplé à un modèle de transfert radiatif atmosphérique. Celui-ci permet de simuler les effets énergétiques et chimiques consécutifs à la perturbation électrique des *streamers*, principaux éléments constitutifs des *sprites*.

Grâce à cet outil, nous avons montré que les *streamers* peuvent affecter les concentrations des états vibrationnels de  $CO_2$ , et conduire à de fortes signatures dans l'infrarouge moyen et lointain. Ces signatures devraient être détectables pour un observateur situé dans la stratosphère et dans l'espace. Les effets des incertitudes associées aux principaux paramètres du modèle sur les signatures de sortie ont été hiérarchisés et quantifiés à travers une étude de sensibilité. Ces travaux ont permis de définir des spécifications instrumentales (fréquence d'acquisition, résolution spatiale et spectrale, bandes spectrales...) pour le futur spectro-imageur de la mission HALESIS (*High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro-imagery*), qui aura pour but d'acquérir des images hyperspectrales infrarouges de l'atmosphère localement perturbée par des TLEs.

**Title:** Simulation of the infrared signature of transient luminous events in the middle atmosphere

**Keywords:** plasma chemistry, vibrational chemistry, radiative transfer, infrared radiation, transient luminous events, sprites, stratosphere, mesosphere, HALESIS

**Abstract:** Sprites are the most common type of transient luminous events (TLEs) in the middle atmosphere. In the visible, near infrared and near ultraviolet, their emissions have been related to the excitation of electronic states of  $N_2$  and  $N_2^+$ . Not observed yet, emissions in the middle and far infrared are also suspected and could be related to vibrational excitation of  $CO_2$ . There is a dual interest in the study of infrared emissions following a sprite. In atmospheric sciences, the chemical composition can be retrieved through different remote sensing methods. For the Defense, infrared emissions of sprites could cause false alarms through airborne and spaceborne optronic detection systems. This is why it is necessary to explain infrared emissions of sprites.

The first objective of this work is to characterize the vibrational chemistry consecutive to this phenomenon, which is a partially understood way to produce infrared emissions. The second objective is to quantify these emissions and to propagate them through the atmosphere, toward different kinds of observers (ground based, in flight, in orbit).

To do so, we have developed a model of plasma-vibrational kinetics, coupled to an atmospheric radiative transfer model. We used this model to evaluate the energetic and chemical effects following the electrical perturbation caused by the propagation of streamers, main constituent elements of sprites.

Thanks to this tool, we showed that streamers can affect the concentrations of vibrational  $CO_2$  and lead to strong emissions in the middle and far infrared. These signatures could be detectable for an observer situated in the stratosphere and in space. The effects of the uncertainties of the principal parameters of the model on the output infrared signatures have been ranked and quantified through a sensitivity analysis. This work allowed defining instrumental specifications (acquisition frequency, spectral and spatial resolution, spectral bands...) for the future spectro-imager of the HALESIS (High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro-imagery) mission, which will record hyperspectral infrared images of the atmosphere locally disturbed by TLEs.

# Remerciements

Il aura fallu trois ans pour en arriver là. Trois années extrêmement riches qui, a posteriori, semblent être passées en un éclair. Des années qui resteront inoubliables, entre aventures alpines et scientifiques. Comme dans la plupart des belles aventures, celle que j'ai pu mener entre octobre 2015 et octobre 2018 est marquée de rencontres. Protagonistes d'un jour ou compagnons de toujours, nombreux sont celles et ceux à avoir contribué à ce que j'atteigne mon objectif. Avant de remercier toutes ces personnes, je souhaite consacrer quelques mots à mes antagonistes, sans lesquels une grande aventure serait bien fade. En ne voulant pas parier un centime sur moi, vous m'avez offert une brûlante volonté d'arriver à mes fins. Merci à vous, mes meilleurs ennemis. Dans un ordre qui ne suit aucune logique particulière, je peux d'abord remercier Franck Lefèvre et Antoine Roblin, directeurs du Département Optique et Techniques Associées (DOTA), de l'ONERA, où j'ai passé 90 % de mon temps de travail, ainsi que Philippe Keckhut, directeur du LATMOS, laboratoire partenaire dans la réalisation de mes travaux. J'en profite pour remercier mon organisme cofinanceur, à savoir la DGA, ainsi que Carole Nahum, pour avoir suivi le bon déroulement de ce projet de recherche. Merci également à Eric Defer et Rodolphe Marion, membres de mon comité de thèse, qui ont accepté d'évaluer mes travaux en fin de première, puis de deuxième année, et m'ont orienté vers des pistes de réflexion et d'amélioration qui ont permis d'enrichir ce manuscrit. Ensuite, je souhaite remercier les personnes qui ont contribué à répondre aux nombreuses questions que j'ai pu me poser tout au long de cette thèse. Mathieu Barthélémy, rencontré en conférence à Vienne en 2016, avec qui nous avons collaboré ; Nathalie Carrasco, qui m'a apporté une aide précieuse en ce qui concerne la cinétique chimique ; Yann Ferrec, du bureau d'à côté, spécialiste des questions instrumentales ; Francisco Gordillo-Vazquez, également rencontré à Vienne, et dont les travaux sont mentionnés à de nombreuses reprises dans ce manuscrit ; Nathalie Huret, avec qui nous avons pu discuter chimie atmosphérique ; Julien Labaune et Sébastien Rassou, qui m'ont apporté leur aide sur les aspects plasma ; Mickael Mills, qui a répondu avec grande efficacité à mes sollicitations à propos du modèle WACCM ; Raphael Panchesnyi, pour m'avoir aiguillé dans l'utilisation du code ZDPlaskin ; Valérie Rialland, pour son éclairage sur les aspects Défense ; Anne Vialatte, qui a réalisé certains calculs de transfert radiatif dont je me suis servi par la suite. Je dois également remercier Juliette Hadji-Lazaro, ma tutrice au LATMOS, dont le rôle a été de s'assurer de mon bien-être dans le déroulement de la mission qui m'était confiée. Il faut également que je mentionne l'aide reçue de la part des personnes des différents secrétariats : à l'ONERA, au LATMOS, à l'école doctorale et à l'UFR Terre, Environnement, Biodiversité (TEB). Sans elles, les démarches administratives, les questions logistiques et autres problèmes organisationnels auraient été insurmontables ! J'adresse également un très grand merci à mon jury de thèse : Elisabeth Blanc, Sébastien Célestin, Alain Hauchecorne et Denis Packan. Ils ont consacré beaucoup de temps à examiner mon travail et ont contribué à faire de ma dernière journée de thèse, consacrée à la soutenance, un très grand jour, que je ne risque pas d'oublier. J'adresse également des remerciements tout particuliers à Laurence Croizé, mon encadrante à l'ONERA, et Sébastien Payan, mon directeur de thèse. Le manuscrit que vous tenez entre vos mains est issu d'un travail d'équipe, dont la réussite est particulièrement liée aux rôles qu'ont joués Laurence et Sébastien, qui m'ont toujours fait profiter de leur expérience et de la pertinence de leurs suggestions. Mes relecteurs, Lorraine Bontemps, Hélène Dudziak, Brunehilde Quesne et Thierry Romand, ont permis à ce manuscrit de ne pas être truffé de fautes diverses. Je les en remercie, et j'espère que vous, lecteur, serez d'accord avec moi pour dire qu'ils ont fait un bon travail. De nombreux collègues, de l'ONERA ou du LATMOS, sont désormais devenus des amis. Ensemble, nous avons traversé de nombreuses épreuves : sur les glaciers à 4000 mètres ou bien dans les tréfonds de la Terre. Au laboratoire, nos histoires d'aventures, passées ou à venir, permettaient de s'échapper l'espace d'un instant pour revenir, l'esprit clair comme l'air des montagnes, à nos travaux respectifs. Je souhaite également remercier mes plus vieux amis, que je pourrais davantage qualifier aujourd'hui de frères. Ils se reconnaîtront sans aucun doute. Leur soutien, et leur présence à

elle seule, année après année, est également un aspect crucial de ma réussite aujourd'hui. J'ai construit mon parcours sur un socle extrêmement robuste dont ils font partie. J'ajoute ici un clin d'œil à Lorraine, qui a supporté mon caractère, un brin rude ces derniers mois, de doctorant en fin de thèse. Pour terminer, je remercie ma famille. Elle constitue l'autre partie de ce socle mentionné au-dessus. Depuis ma plus tendre enfance, je leur ai offert de multiples frayeurs. Entre la moto, la boxe, la spéléologie et l'alpinisme, ils ont eu de quoi se faire des cheveux blancs. Ils ont pourtant toujours été présents et ont toujours joué un rôle particulièrement important dans chacune de mes réussites. Je dois accorder une mention spéciale à mes parents, Stéphanie et Thierry Romand qui, comme je le dis parfois, constituent mon principal sponsor. Il y a huit ans, j'ai décidé de reprendre des études afin de devenir scientifique pour deux raisons. La première est que je me suis découvert une passion (tardive) pour les sciences, la seconde est que je voulais faire en sorte que mes parents puissent être fiers de moi. J'espère avoir réussi.

# Liste des acronymes

AFRL	<i>Air Force Research Laboratory</i>
AGU	<i>American Geophysical Union</i>
AIRS	<i>Atmospheric InfraRed Sounder</i>
ALTIUS	<i>Atmospheric Limb Tracker for the Investigation of the Upcoming Stratosphere</i>
ASIM	<i>Atmosphere-Space Interactions Monitor</i>
ATISE	<i>Auroral Thermosphere Ionosphere Spectrometer Experiment</i>
BSO	<i>Ballon Stratosphérique Ouvert</i>
CC	<i>Cloud-to-Cloud</i>
CCD	<i>Charge Coupled Device</i>
CEDRE	<i>Calcul d'Écoulements Diphasiques Réactifs pour l'Énergétique</i>
CG	<i>Cloud-to-Ground</i>
CICLAD	<i>Calcul Intensif pour le Climat, l'Atmosphère et la Dynamique</i>
CMC	<i>Charge Moment Change</i>
CMOS	<i>Complementary Metal Oxyde Semiconductor</i>
CNES	<i>Centre National d'Études Spatiales</i>
DGA	<i>Direction Générale de l'Armement</i>
DOTA	<i>Département Optique et Techniques Associées</i>
DVODE	<i>Variable-coefficient Ordinary Differential Equation Solver</i>
EB	<i>Emission Brightness</i>
EDF	<i>Électricité De France</i>
EEDF	<i>Electron-Energy Distribution Function</i>
EGU	<i>European Geoscience Union</i>
ELF	<i>Extremely Low Frequency</i>
ELVE	<i>Emissions of Light and Very low frequency perturbations due to Electromagnetic pulse Sources</i>
ENVISAT	<i>ENVIronment SATellite</i>
ETL	<i>Équilibre Thermodynamique Local</i>
EXL	<i>Energetics of upper atmospheric eXcitation by Lightning</i>
FASCODE	<i>Fast Atmospheric Signature Code</i>
FPA	<i>Foudre, Plasma et Application</i>
FPS	<i>Frame Per Second</i>
FTIR	<i>Fourier-Transform InfraRed spectroscopy</i>
FWHM	<i>Full Width Half Maximum</i>
GC	<i>Ground-to-Cloud</i>
GEISA	<i>Gestion et Étude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques</i>
GLIMS	<i>Global Lightning and sprlte Measurments</i>
GLM	<i>Global Lightning Mapper</i>

GOES	<i>Geostationary Operational Environmental Satellite</i>
GOMOS	<i>Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars</i>
GPS	<i>Global Positioning System</i>
GRANADA	<i>Generic Radiative traNsfer AnD non-LTE population Algorithm</i>
GRASSP	<i>GRAnada Sprite Spectrograph and Polarimeter</i>
HALESIS	<i>High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro-imagery</i>
HAPS	<i>High-Altitude Platform Stations</i>
HITRAN	<i>High-resolution TRANsmision molecular absorption database</i>
HWHM	<i>Half Width Half Maximum</i>
IASI	<i>Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge</i>
IBC	<i>International Brightness Coefficient</i>
IC	<i>Intra-Cloud</i>
ILAN	<i>Imaging of Lightning And Nocturnal Flashes</i>
ISUAL	<i>Imager of Sprite and Upper Atmospheric Lightings</i>
ISS	<i>International Space Station</i>
JAXA	<i>Japan Aerospace eXploration Agency</i>
LATMOS	<i>Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales</i>
LBLRTM	<i>Line-By-Line Radiative Transfer Model</i>
LI	<i>Lightning Imager</i>
LMD	<i>Laboratoire de Météorologie Dynamique</i>
LPC2E	<i>Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace</i>
LPMA	<i>Limb Profile Monitor of the Atmosphere</i>
LSO	<i>Lightning and Sprite Observations</i>
LWIR	<i>Long Wavelength InfraRed</i>
MEIDEX	<i>Mediterranean Israeli Dust Experiment</i>
μSPOC	<i>micro-SPECTrometer On a Chip</i>
MiPLaSMO	<i>MicroPhysical and Photochemical Lagrangian Stratospheric Model of Ozone</i>
MIRADOR	<i>Moyen InfraRouge Aéroporté pour l'alerte et la Désignation d'Objectif Rapide anti-missile</i>
MODTRAN	<i>MODerate resolution atmospheric TRANsmision</i>
MPSO	<i>Modélisation Physique de la Scène Optronique</i>
MTG	<i>Meteosat Third Generation</i>
MWIR	<i>Mid Wavelength InfraRed</i>
NASA	<i>National Aeronautics and Space Administration</i>
NCAR	<i>National Center for Atmospheric Research</i>
NETL	<i>Non-Équilibre Thermodynamique Local</i>
NIR	<i>Near InfraRed</i>
ONERA	<i>Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales</i>
OSA	<i>Optical Society of America</i>
PC	<i>Personal Computer</i>
PROBA	<i>PRoject for On-Board Autonomy</i>

REPROBUS *REactive Process Ruling the Ozone BUdget in the Stratosphere*  
RMS *Royal Mail Ship*  
SAMM *SHARC and MODTRAN Merged*  
SANSa *South African National Space Agency*  
SHARC *Strategic High Altitude Radiation Code*  
SIR *Signature InfraRouge*  
S/N *Signal-to-Noise ratio*  
SPIRALE *Système Préparatoire InfraRouge pour l'ALerte*  
SPOC *Spectrometer On a Chip*  
SR *Schumann resonance*  
SSH *Schwartz-Slawsky-Herzfeld*  
SSO *Southern Space Observatory*  
STS *Space Transportation System*  
TARANIS *Tool for the Analysis of Radiation from lightNIing an Sprites*  
TLE *Transient Luminous Event*  
TRMM *Tropical Rainfall Measuring Mission*  
UV *Ultra Violet*  
VER *Volume Emission Rate*  
VHF *Very High Frequency*  
WACCM *Whole Atmosphere Community Climate Model*  
WIRO *Wyoming InfraRed Observatory*  
ZDPlaskin *Zero Dimensional Plasma kinetics*



# Introduction

Les phénomènes lumineux transitoires (TLEs, pour *transient luminous events*) sont des éclairs qui se produisent au-dessus des orages, dans la stratosphère, mésosphère, et thermosphère, entre 15 et 90 km d'altitude. On peut en distinguer quatre principaux types : les *blue jets*, les *gigantic jets*, les ELVES, et les *sprites*, qui constitueront le principal objet d'étude de ce travail. Les *sprites* se distinguent par leurs dimensions, plusieurs dizaines de kilomètres de haut, et autant de large, les altitudes qu'ils couvrent, 40 à 90 km, leur structure, en apparence filamentaire, et leur couleur rouge typique. Ils émettent en fait dans le visible, le proche infrarouge et le proche ultraviolet. Ces émissions ont essentiellement été attribuées à l'excitation des niveaux électroniques de  $N_2$  et  $N_2^+$ , et ont été confirmées à travers des campagnes d'observations depuis le sol, aéroportées, ou spatiales. Même s'il n'a jamais été mesuré, l'existence de rayonnement infrarouge (moyen et lointain), qui pourrait persister beaucoup plus longtemps que les émissions visibles, est suspectée par différents auteurs. Tout comme le rayonnement visible provient de l'émission de niveaux électronique de certaines espèces atmosphériques, ces émissions infrarouges pourraient provenir de l'émission des niveaux vibrationnels de  $CO_2$ .

L'infrarouge constitue une gamme spectrale d'intérêt dual. Dans les sciences de l'atmosphère, elle est utilisée pour retrouver la composition chimique du milieu à l'aide de différentes méthodes de télédétection. Or, les *sprites* peuvent affecter le rayonnement infrarouge de l'atmosphère de deux façons. Soit en produisant des espèces dont la signature spectrale se situe dans l'infrarouge, comme les  $NO_x$ , ce que nous appelons une perturbation chimique. Soit en perturbant la répartition des niveaux d'énergie vibrationnels des espèces, ce que nous appelons une perturbation énergétique. Ces deux phénomènes pouvant également être couplés. Dans la deuxième possibilité, les niveaux énergétiques sont peuplés au détriment de l'état fondamental d'une espèce. Les émissions infrarouges augmentent sans pour autant que la concentration totale de l'espèce (somme de l'état fondamental et des états excités) ne soit affectée. La mission HALESIS (*High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro Imagery* (Croize et al. 2015)) aura pour but de mesurer les luminances infrarouges de l'atmosphère localement perturbée par des TLEs, en embarquant un spectro-imageur sous un ballon stratosphérique. Afin d'interpréter correctement de telles mesures, il sera indispensable de pouvoir distinguer la contribution de ces deux mécanismes.

La Défense peut utiliser des capteurs optroniques satellitaires ou aéroportés pour la détection de tirs de missiles balistiques dont l'émission en phase propulsée est maximum dans l'infrarouge en bande II (3-5  $\mu m$ , émission du  $CO_2$ ). Ces capteurs de veille infrarouge s'intègrent dans un Système d'Alerte Avancée (SAA). Ce système est composé de satellites capables de détecter des tirs dès le lancement (caméras infrarouges), d'un radar sol capable de déterminer la trajectoire du missile, même après extinction du propulseur, et d'un système de contrôle C4I (*Command Control Communication Computer Intelligence*). Le démonstrateur SPIRALE (Système Préparatoire InfraRouge pour l'ALerte) est un système expérimental d'alerte avancée constitué de deux microsatsellites lancés en 2009 : il a permis de récolter 2 millions d'images de fonds indispensables à la compréhension des phénomènes naturels (comme les cirrus, nuages de haute troposphère, ou le sommet des cumulonimbus) susceptibles de générer de fausses alarmes lors de la détection des missiles dans leur phase propulsée (<http://optronique.net/defense/pea/spirale>). Le dépouillement de ces images (en partie réalisé à l'ONERA) n'a cependant pas permis de lever le doute sur toutes les sources potentielles de fausses alarmes d'origine naturelle, notamment pour ce qui concerne les événements rares comme les TLEs. Pour ce qui est des systèmes aéroportés, des études menées en France et aux États-Unis ont montré la faisabilité de l'utilisation de drones de haute altitude (12 – 16 km) pour l'alerte avancée (Gautier et al. 2011). En France, on peut citer l'étude de définition MIRADOR (Moyen InfraRouge Aéroporté pour l'alerte et la Désignation d'Objectif Rapide anti-missile) réalisée à l'ONERA (2003-

2008), dans laquelle les TLE ont été identifiés comme une source potentielle de fausse alarme, d'autant plus probable en raison de la proximité du porteur et du lieu de production des TLEs. La caractérisation du rayonnement infrarouge des TLEs permettra de contribuer au dimensionnement du capteur optronique et des traitements du futur système d'alerte avancée de manière à abaisser au minimum le taux de fausses alarmes.

C'est ce qui justifie cette étude qui consiste à apporter des réponses à deux grandes questions : en quoi les *sprites* affectent-ils la chimie vibrationnelle en haute stratosphère et dans la mésosphère ? Dans quelle mesure cette perturbation énergétique peut-elle influencer les luminances infrarouges de l'atmosphère ?

Afin de répondre à ces questions, nous avons modélisé la perturbation électrique causée par la propagation de *streamers*, principaux éléments constitutifs des *sprites*, en atmosphère moyenne, et la perturbation chimique et énergétique consécutive. Ensuite, nous avons évalué la perturbation radiative, en fonction du temps, dans les instants qui suivent la partie visible du *sprite*, en couplant les évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub> à un modèle de transfert radiatif.

Les travaux réalisés sont présentés en cinq chapitres. Le premier introduit l'environnement dans lequel ont lieu les phénomènes qui nous intéressent : l'atmosphère terrestre, ainsi que les différents types de phénomènes lumineux qui y ont lieu. On y présente également un état de l'art des connaissances actuelles à propos des *sprites*. Dans un second chapitre, nous présentons l'outil développé afin de modéliser la chimie vibrationnelle et les luminances atmosphériques dans les instants qui suivent un *sprite*. On décrit la représentation de l'atmosphère de fond puis le modèle cinétique construit pour simuler les échanges énergétiques et chimiques liés aux *streamers*, et, enfin, la méthode mise en place pour évaluer les luminances spectrales de l'atmosphère perturbée par un *sprite*. Le troisième chapitre présente les résultats de la simulation cinétique. Les évolutions temporelles des concentrations en électrons, espèces électroniques et vibrationnelles sont discutées en détail. Dans une moindre mesure, on présente le cas d'espèces dont la perturbation chimique pourrait conduire à une perturbation radiative : les NO<sub>x</sub> et NO<sup>+</sup>. Le quatrième chapitre est une étude de sensibilité du modèle cinétique. Après avoir défini les concepts indispensables à la compréhension de cette analyse et les outils statistiques utilisés, on présente les deux plans de tests mis en place pour hiérarchiser et quantifier les effets des paramètres les plus influents du modèle. Le cinquième chapitre présente les signatures infrarouges des *sprites*, calculées à partir des perturbations énergétiques des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>. Dans un premier temps, on présente les résultats obtenus pour une simulation que l'on qualifie de « nominale », pour laquelle les paramètres du modèle sont fixés en fonction des hypothèses formulées dans le chapitre 2. Ensuite, on présente des résultats pour lesquels des valeurs alternatives ont été appliquées aux paramètres les plus influents, ce qui permet de relier l'incertitude sur ces paramètres à l'incertitude sur les luminances de sortie. Enfin, on aborde les spécifications instrumentales et mission pour HALESIS, que l'on peut déduire des résultats obtenus, et on présente une perspective qui consistera à exploiter les synergies entre l'étude des TLEs et des aurores polaires. Pour terminer, on conclut en rappelant les principaux résultats obtenus et en présentant différentes perspectives sur l'étude des *sprites* et autres phénomènes lumineux transitoires.

# Table des matières

Remerciements .....	5
Liste des acronymes .....	7
Introduction.....	11
Table des matières .....	13
1. Atmosphère terrestre et phénomènes lumineux transitoires .....	19
1.1. Stratification verticale de l'atmosphère.....	19
1.2. Phénomènes lumineux de haute atmosphère .....	22
1.2.1. Aurores polaires .....	22
1.2.2. Airglow.....	23
1.3. Orages et foudre.....	24
1.3.1. Mode de formation des orages .....	24
1.3.2. Foudre .....	25
1.4. Phénomènes lumineux transitoires de moyenne atmosphère.....	27
1.4.1. Découverte des phénomènes lumineux transitoires .....	27
1.4.2. Sprites.....	29
1.4.3. Halos .....	30
1.4.4. ELVES .....	31
1.4.5. Blue jets, blue starters et gigantic jets .....	31
1.4.6. Autres formes de phénomènes lumineux transitoires.....	34
1.5. État de l'art des connaissances liées aux sprites.....	36
1.5.1. Mécanismes de formation et de propagation.....	36
1.5.1.1. Considérations électriques à grande échelle .....	36
1.5.1.2. Mécanismes à l'échelle des streamers.....	38
1.5.2. Rayonnement associé aux sprites .....	39
1.5.2.1. Campagnes d'observation .....	39
1.5.2.2. Durée et occurrences .....	40
1.5.2.3. Rayonnement visible, ultraviolet et proche infrarouge .....	40
1.5.2.4. Rayonnement infrarouge .....	41
1.5.3. Effets chimiques .....	42
1.5.4. Futures missions et expérience HALESIS .....	43
1.6. Bilan du premier chapitre.....	46

2.	Description du modèle développé pour la simulation de la signature infrarouge consécutive à un sprite.....	49
2.1.	Représentation de l'atmosphère de fond .....	50
2.1.1.	Description de la composition atmosphérique de fond.....	50
2.1.2.	Hypothèse d'initialisation de la concentration des états excités à l'équilibre thermodynamique local .....	52
2.1.2.1.	États électroniques et vibrationnels inclus dans le modèle .....	52
2.1.2.2.	Transitions énergétiques associées aux états électroniques et vibrationnels inclus dans le modèle .....	54
2.1.2.3.	Concept d'équilibre thermodynamique local.....	55
2.2.	Sélection et adaptation d'un modèle cinétique pour la simulation de phénomènes électriques dans l'atmosphère terrestre.....	58
2.2.1.	Descriptions des réactions pour la simulation de plasmas atmosphériques .....	58
2.2.2.	Constantes de réaction associées .....	61
2.2.2.1.	Cas des processus radiatifs.....	61
2.2.2.2.	Interactions entre électrons et espèces atmosphériques.....	63
2.2.2.2.1.	Caractérisation de la distribution d'énergies des électrons.....	63
2.2.2.2.2.	Calcul des constantes de réaction de la chimie des plasmas.....	66
2.2.3.	Modèle électrique de streamer.....	68
2.2.4.	Sélection d'un code pour la résolution du modèle cinétique .....	71
2.3.	Sélection d'un code de transfert radiatif pour le calcul des luminances infrarouges atmosphériques.....	74
2.3.1.	Principes fondamentaux.....	75
2.3.1.1.	Caractérisation d'une source de rayonnement.....	75
2.3.1.2.	Profils de raie.....	76
2.3.1.3.	Transfert radiatif atmosphérique .....	78
2.3.1.4.	Choix d'un code de transfert radiatif .....	79
2.3.2.	Implémentation d'un modèle de sprite sous LBLRTM .....	80
2.4.	Bilan du second chapitre .....	84
2.4.1.	Hypothèses du modèle.....	84
2.4.2.	Paramètres du modèle .....	85
3.	Mise en œuvre du modèle cinétique pour le suivi de l'évolution temporelle des concentrations des espèces perturbées par un streamer entre 40 et 70 km d'altitude .....	87
3.1.	Équilibrage du modèle cinétique.....	87
3.2.	Évolutions temporelles des concentrations en électrons et espèces liées aux émissions visibles et validation du modèle.....	89

3.2.1.	Évolutions temporelles des concentrations en électrons .....	89
3.2.1.1.	Processus de production et consommation des électrons .....	89
3.2.1.2.	Validation des concentrations en électrons.....	91
3.2.2.	Évolutions temporelles des espèces liées aux émissions visibles .....	95
3.2.2.1.	Résultats pour les niveaux électroniques de $N_2$ , $N_2^+$ et NO.....	95
3.2.2.2.	Validation des processus d'émission visible.....	101
3.3.	Évolutions temporelles des concentrations des espèces vibrationnelles liées aux émissions infrarouges .....	103
3.3.1.	Évolutions temporelles des concentrations des états vibrationnels de $N_2$ .....	104
3.3.2.	Évolutions temporelles des concentrations des états vibrationnels de $CO_2$ .....	111
3.4.	Bilan du troisième chapitre .....	116
4.	Analyse de sensibilité préliminaire du modèle cinétique .....	119
4.1.	Vocabulaire et définitions .....	119
4.1.1.	Plans d'expériences .....	120
4.1.2.	Analyse de variance fonctionnelle et indices de Sobol .....	122
4.1.3.	Tests de significativité sur un modèle linéaire .....	124
4.2.	Choix des sorties, facteurs et niveaux à étudier .....	125
4.3.	Plan de screening .....	128
4.3.1.	Présentation des sorties du plan de screening .....	130
4.3.2.	Interprétation des indices de Sobol .....	134
4.4.	Plan factoriel complet .....	136
4.4.1.	Présentation des sorties du plan factoriel complet .....	137
4.4.2.	Indices de Sobol et tests de significativité.....	141
4.5.	Bilan du quatrième chapitre et discussion des résultats obtenus .....	146
5.	Modélisation des luminances infrarouges atmosphériques consécutives à la perturbation de la chimie vibrationnelle de $CO_2$ par un sprite, considérations instrumentales, et signature infrarouge des aurores .....	149
5.1.	Signatures infrarouges des sprites pour des observateurs situés dans la stratosphère.....	150
5.1.1.	Luminances spectrales de l'atmosphère non perturbée.....	150
5.1.2.	Luminances spectrales pour un observateur de type ballon stratosphérique ouvert	153
5.1.3.	Comparaison entre ballon stratosphérique ouvert et high altitude pseudo-satellite	155
5.2.	Effets géométriques sur la signature infrarouge des sprites .....	157
5.2.1.	Effet du diamètre du sprite .....	157
5.2.2.	Effet de l'angle zénithal de la ligne de visée .....	158
5.2.3.	Effet de la distance entre observateur et sprite .....	159

5.3.	Signatures infrarouges préliminaires des sprites pour des observateurs situés dans la troposphère et dans l'espace .....	160
5.3.1.	Luminances calculées pour un observateur situé dans la troposphère .....	160
5.3.2.	Signatures infrarouges calculées pour un observateur situé dans l'espace .....	162
5.4.	Évaluation préliminaire des incertitudes sur les signatures infrarouges des sprites .....	163
5.5.	Spécifications instrumentales pour l'expérience HALESIS .....	166
5.6.	Synergies HALESIS – ATISE et simulation de la signature infrarouge des aurores .....	167
5.6.1.	Contexte de l'expérience ATISE.....	168
5.6.2.	Simulation de la signature infrarouge des aurores .....	169
5.6.2.1.	Phénoménologie des aurores polaires.....	169
5.6.2.2.	Modèle pour la simulation de la signature infrarouge des aurores.....	171
5.6.2.3.	Luminances infrarouges des aurores pour un observateur situé dans la stratosphère .....	171
5.6.2.4.	Conclusion de l'étude des luminances infrarouges des aurores.....	174
5.7.	Bilan du cinquième chapitre.....	174
6.	Conclusion générale et perspectives.....	177
6.1.	Conclusion générale .....	177
6.2.	Perspectives.....	179
6.2.1.	Aspects chimiques.....	179
6.2.1.1.	Chimie atmosphérique .....	179
6.2.1.2.	Chimie plasma et vibrationnelle.....	179
6.2.2.	Amélioration du modèle électrique de streamer.....	180
6.2.3.	Signatures infrarouges d'autres espèces et amélioration du modèle de sprite .....	181
6.2.4.	Perspectives pour HALESIS et aspect Défense .....	182
6.2.5.	Simulation d'autres phénomènes lumineux transitoires .....	182
7.	Annexes .....	183
7.1.	Campagnes d'observation des sprites.....	183
7.2.	Table des réactions.....	187
7.2.1.	Interactions électrons – espèces atmosphériques.....	187
7.2.2.	Processus vibrationnels.....	189
7.2.3.	Chimie des espèces neutres .....	191
7.2.4.	Chimie des états électroniques .....	193
7.2.5.	Recombinaison ion-ion.....	195
7.2.6.	Chimie des cations.....	195
7.2.7.	Chimie des anions.....	197

7.2.8. Processus radiatifs.....	198
7.3. Sections efficaces utilisées pour le calcul des constantes de vitesse des interactions électrons – espèces atmosphériques .....	199
8. Publications et communications .....	201
9. Liste des tableaux et figures.....	203
9.1. Liste des tableaux.....	203
9.2. Liste des figures.....	205
10. Bibliographie.....	211



# 1. Atmosphère terrestre et phénomènes lumineux transitoires

On peut distinguer plusieurs objectifs à ce chapitre. D'abord, il s'agit de présenter l'environnement dans lequel ont lieu les phénomènes auxquels s'intéresse cette étude. Ainsi, l'atmosphère terrestre sera présentée à travers une description des différentes couches qui la constituent. Ensuite, les principaux phénomènes lumineux atmosphériques de haute altitude (aurores, *airglow*), et de basse altitude (éclaircs troposphériques) seront présentés avant d'aborder un autre type de phénomène, bien moins connu, qui a lieu en atmosphère moyenne, et qu'on regroupe sous l'appellation de phénomènes lumineux transitoires (TLE, *transient luminous events*). Par la suite, on présentera en détail un type de TLE en particulier, les *sprites*. Les connaissances actuelles à leur sujet, à propos de leur formation, propagation, effets radiatifs et chimiques seront présentées. Pour finir, nous parlerons des futures missions dédiées à l'observation des TLEs, dont HALESIS, qui aura pour but de réaliser des mesures de télédétection depuis un ballon stratosphérique.

## 1.1. Stratification verticale de l'atmosphère

La structure verticale de l'atmosphère terrestre peut être décrite comme une succession concentrique de couches gazeuses dont les limites sont définies par des inversions de gradient thermique (Figure 1).

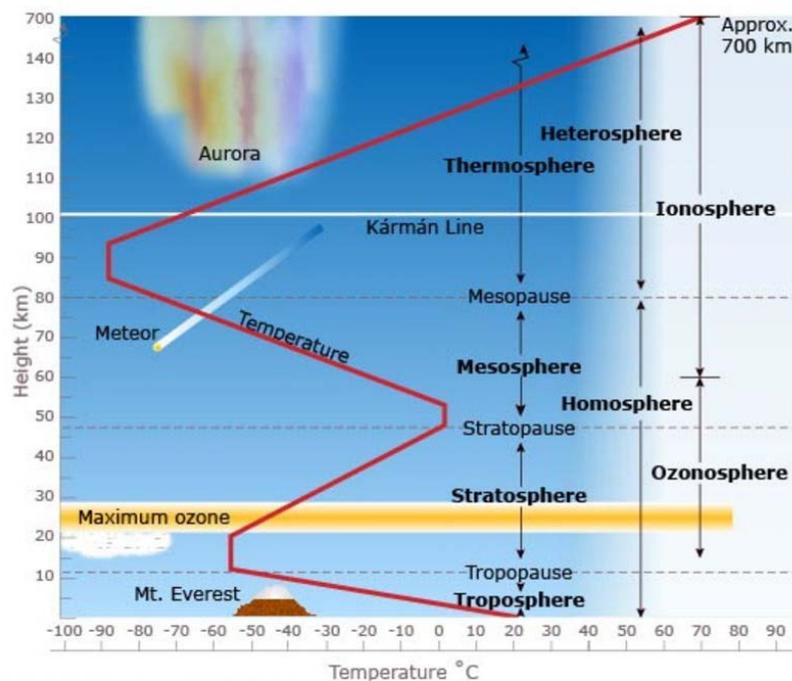


Figure 1 – Structuration verticale de l'atmosphère (©University of Waikato).

La plus basse de ces couches est en contact avec la surface et s'élève jusqu'à 6 à 8 kilomètres d'altitude aux pôles et jusqu'à 20 km au niveau de l'équateur. On l'appelle la troposphère. Il s'y déroule la majorité des phénomènes météorologiques les plus connus : orages, cyclones, éclairs, pluie, tornades... Elle contient environ 80 % de la masse totale de l'atmosphère. Le gradient thermique moyen y est de  $-6.5$  ° par kilomètre et l'enveloppe qui constitue sa limite haute est la tropopause.

Au-delà de cette limite, la température augmente avec l'altitude, c'est la stratosphère. Cette inversion de gradient est la conséquence de l'absorption du rayonnement ultraviolet solaire par les molécules de l'atmosphère, en particulier l'ozone. C'est en effet dans la stratosphère, principalement entre 20 et 25 km<sup>1</sup>, qu'on trouve cette molécule rendue célèbre dans les années 80 par la découverte du « trou » de la couche d'ozone. Le gradient thermique est de  $+1.7$  ° par kilomètre. À une moyenne de 50 kilomètres d'altitude se trouve sa limite haute, la stratopause, où règne une température de  $-3$  °C. Il y a peu de mouvements de convection dans la stratosphère, ce qui lui confère une grande stabilité verticale. Néanmoins, les vents horizontaux peuvent y être particulièrement forts. C'est à cause de cela que, par le passé, d'énormes éruptions volcaniques ont pu provoquer des « hivers volcaniques » à l'échelle du globe. Le dernier en date, provoqué par le Pinatubo en 1991, a d'ailleurs inversé la courbe du réchauffement climatique pendant quelques années (Parker et al. 1996).

Au-delà, la température recommence à diminuer avec l'altitude. On entre dans la mésosphère, qui s'étend jusqu'à 80 km. La température décroît jusqu'à une centaine de degrés en dessous de zéro au niveau de la mésopause. Elle contient seulement 0.1 % de la masse totale de l'atmosphère. La densité est trop faible pour permettre aux avions ou ballons d'y voler (20 et 45 km d'altitude de vol maximale respectivement), mais encore trop forte pour que les satellites puissent être maintenus en orbite. Pour ces raisons, la mésosphère est encore peu connue. Par ailleurs, c'est dans cette couche que se désintègrent la plupart des météores qui entrent dans l'atmosphère, donnant naissance aux étoiles filantes.

La thermosphère débute entre 80 et 120 km, au niveau de la mésopause, et s'étend jusqu'à la thermopause, située entre 600 et 800 km. La température y croît jusqu'à 1000 °C. Elle est parfois confondue avec l'ionosphère, dont les altitudes limites sont globalement communes. La différence étant que le terme thermosphère fait référence au gradient thermique, celui d'ionosphère à la présence d'ions et électrons libres. Les satellites placés en orbite dans la thermosphère subissent un freinage permanent qui oblige à de fréquentes manœuvres de correction d'orbite. Leur durée de vie dans cette couche est donc limitée.

L'ionosphère, située entre 80 et 600 km, comprend les couches D, E et F (Figure 2), dont les altitudes dépendent du rayonnement solaire. La couche D, la plus basse, n'est présente que la journée. Dès le coucher du soleil, les électrons se recombinent et celle-ci disparaît jusqu'au prochain lever de soleil.

---

<sup>1</sup> En maximum de concentration. En rapport de mélange, le maximum se situe autour de 35 km.

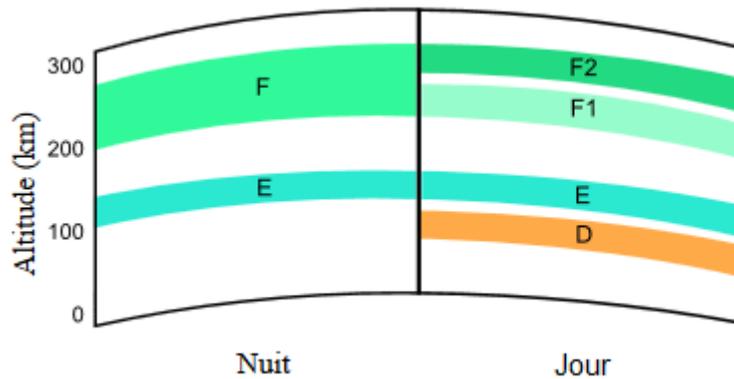


Figure 2 – Les différentes couches de l'ionosphère, de nuit, à gauche, et de jour, à droite (©Wikimedia Commons).

On caractérise les couches de l'ionosphère par leur concentration électronique respective, comprises entre  $10^4$  et  $10^6$   $e^-/cm^3$ . On y trouve, de façon générale, autant d'ions que d'électrons (équilibre électrostatique). La présence de charges libres en fait un plasma. Ce plasma est dit « froid » en raison de la température des ions, similaire à celle des molécules et atomes, et très inférieure à celle des électrons. Un synonyme de « plasma froid » est d'ailleurs « plasma bi-température » (ou encore « plasma non thermique »).

Encore plus haut en altitude, on entre dans l'exosphère. Elle n'a pas de limite franche avec le milieu interplanétaire. La pression y est si faible que les molécules n'entrent pratiquement plus en collision et vont jusqu'à s'échapper dans l'espace. À 5000 km d'altitude, il ne reste plus qu'une centaine de molécules par  $cm^3$ , l'orbite des satellites placés à cette altitude et au-delà est stable pour des centaines voire des milliers d'années.

La structure verticale de l'atmosphère peut également être définie selon d'autres critères. Par exemple, la composition chimique permet de distinguer l'homosphère, entre 0 et 100 km, où les espèces chimiques sont réparties de façon globalement homogène, l'hétérosphère, qui débute à 100 km et où la gravité et les faibles mouvements convectifs conduisent les espèces les plus lourdes à rester à basse altitude tandis que les plus légères demeurent à haute altitude, et, enfin, la géocorona qui est exclusivement composée d'hydrogène et s'étend jusqu'à au moins une quinzaine de rayons terrestres. Le transport vertical permet de distinguer la turbosphère, entre 0 et 100 km, où les espèces sont mélangées par la turbulence, la diffusosphère, où la diffusion moléculaire domine et enfin l'effusosphère, où le faible nombre de collisions permet aux espèces de s'échapper dans l'espace. La gravité permet de distinguer la barosphère, entre 0 et 600 km, et, au-delà, l'exosphère, où la force gravitationnelle n'est plus suffisante pour retenir les espèces qui peuvent alors atteindre la vitesse de libération et s'échapper de l'attraction terrestre.

Maintenant que l'atmosphère terrestre a succinctement été présentée, intéressons-nous aux phénomènes lumineux qui y ont lieu. Dans la section suivante, les phénomènes de haute atmosphère (ionosphère), puis de basse atmosphère (troposphère) sont d'abord décrits. Ce sont les mieux connus. Ensuite, nous nous intéressons à la moyenne atmosphère, région la moins bien connue, où ont lieu les phénomènes lumineux transitoires.

## 1.2. Phénomènes lumineux de haute atmosphère

### 1.2.1. Aurores polaires

Les aurores polaires (Figure 3) sont des phénomènes qui ont lieu principalement entre 90 et 250 km d'altitude. Elles se produisent généralement à haute latitude, au-delà de 60°. Selon qu'elles se produisent dans l'hémisphère nord ou sud, on distingue respectivement les aurores boréales et australes.



Figure 3 – Aurore boréale photographiée à Tromsø, Norvège (©Charlotte Segonne).

Elles présentent différents types de formes et leurs mouvements sont parfois distinguables à l'œil nu si bien que, dès l'Antiquité, on les décrivait comme d'immenses créatures se mouvant dans le ciel. Elles sont à l'origine d'une mythologie aussi vaste que diverse dans les pays nordiques et leur couleur, parfois rouge était associée à la guerre et au sang par les européens du Moyen Âge.

Les aurores se forment lorsque des particules éjectées par un orage solaire sont déviées par le champ magnétique terrestre pour entrer en contact avec les espèces atmosphériques de la Terre à haute altitude, autour des pôles magnétiques Nord et Sud. Les particules solaires, électrons ou protons, excitent et ionisent les espèces ionosphériques. En se désexcitant, celles-ci émettent des photons à différentes énergies et donc de différentes couleurs.

On connaît généralement la couleur verte typique des aurores, associée aux émissions de l'oxygène à 557 nm. Elles peuvent également émettre du rouge (doublet de l'oxygène à 630 et 636 nm et certaines bandes de l'azote) ainsi que du mauve, du bleu ou du violet (émissions de l'azote, de l'hélium et de l'hydrogène).

Une partie de ce manuscrit est réservé à l'étude des émissions infrarouges des aurores. Cet aspect sera traité dans le dernier chapitre, en section « 5.6 ».

## 1.2.2. Airglow

Le terme *airglow* (Figure 4) désigne le rayonnement principalement proche infrarouge (*near infrared*, NIR) émis à haute altitude (entre 80 et 100 km) issu de la molécule OH. Des émissions dans l'ultraviolet (UV) et le visible existent également. Il est ainsi possible d'observer, sous certaines conditions comme depuis l'espace, du rouge, issu de l'oxygène atomique à 630 nm, du vert, également associé à l'oxygène, à 556 nm, et du jaune lié à la raie du sodium à 589 nm.

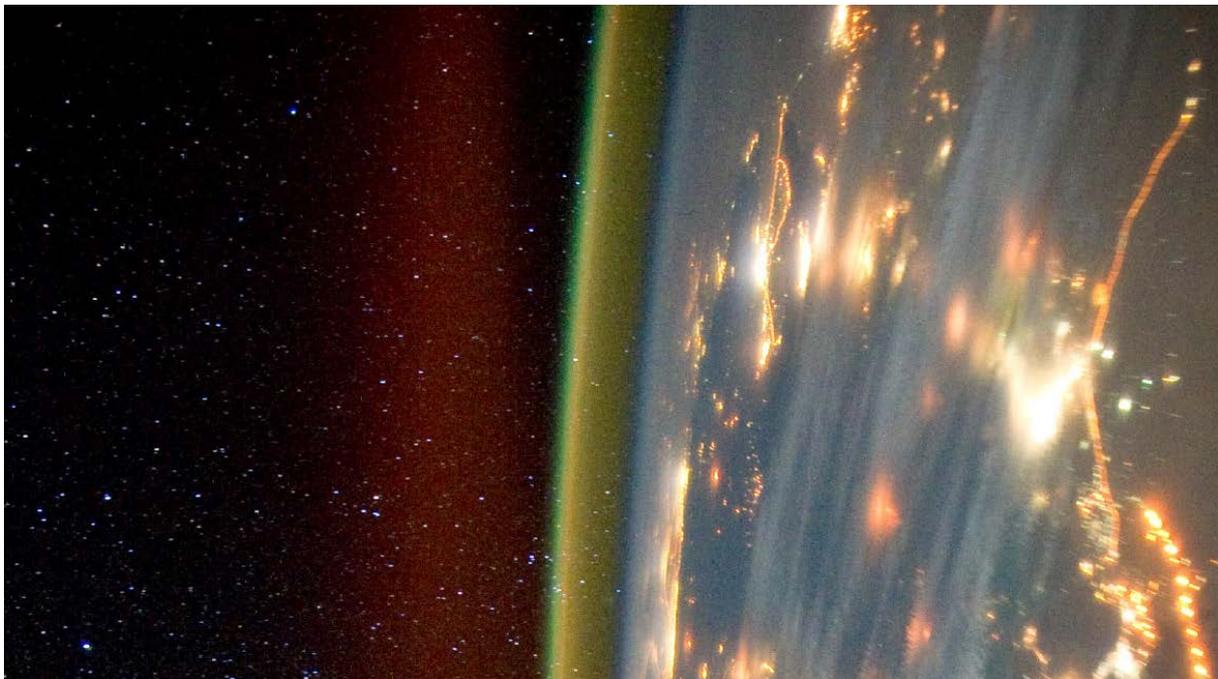


Figure 4 – Photographie de l'airglow depuis l'International Space Station (©NASA).

De nuit, les émissions *airglow* dans le NIR (appelées *nightglow*) peuvent être utilisées pour les systèmes de vision nocturne et suscite des intérêts militaires notamment. De plus, il permet aux scientifiques de l'atmosphère de disposer d'un traceur de la température et de la dynamique à haute altitude, pour le suivi de la propagation des ondes de gravité par exemple. Ces aspects sont traités dans le manuscrit de thèse de Bellisario (2015).

## 1.3. Orages et foudre

Le principal objet d'étude de cette thèse regroupe différents événements lumineux transitoires qui se produisent dans la stratosphère et la mésosphère. Leur existence est étroitement liée à l'activité électrique de la troposphère. Pour cette raison, quelques éléments nécessaires à la compréhension du mode de formation des orages et de la foudre sont donnés dans cette section.

### 1.3.1. Mode de formation des orages

Les orages sont des perturbations atmosphériques causées par les phénomènes de convection dus aux différences de température entre les couches de l'atmosphère. Ils sont associés à un type de nuage en particulier : les cumulonimbus (Figure 5). Ils se produisent presque exclusivement dans la troposphère, même s'ils atteignent parfois la base de la stratosphère. Ceux-ci peuvent s'étendre verticalement jusqu'à 20 km d'altitude alors que leur base se situe généralement entre 300 mètres et 3 km du sol. Au sein d'un cumulonimbus, on trouve de forts courants chauds ascendants, et des courants froids descendants. Ils peuvent engendrer de fortes pluies, la foudre, suivie du tonnerre et, parfois, des chutes de grêle. Plus rarement peuvent se former des tornades.



Figure 5 – Photographie d'un cumulonimbus, avec sa forme typique d'enclume (Flickr – ©Nicholas A. Tonelli).

Les orages se produisent lorsque certaines conditions d'humidité et d'instabilité de l'air sont présentes. On les retrouve ainsi toute l'année à l'équateur, principalement entre la fin du printemps et le début de l'automne aux latitudes moyennes, et très rarement au-dessus des cercles polaires. Le mode de formation schématisé des orages est le suivant : considérons une parcelle d'air qui se situe dans une couche à haute température et basse altitude, près du sol. Ce qui se produit

typiquement (sous nos latitudes) quand le sol est chauffé par le soleil lors d'une journée d'été. Cette couche est surmontée d'une autre couche à plus basse température et plus faible humidité, généralement en fin de journée. La différence de température et d'humidité<sup>2</sup> peut être telle que la masse volumique de la parcelle considérée devient inférieure à celle de la couche qui la surmonte. Elle entre alors en convection. Elle monte jusqu'à ce que l'air qu'elle contient se condense, formant des gouttes, ce qui libère de la chaleur. L'ascension se poursuit jusqu'à ce que la température de la parcelle ait suffisamment diminué pour égaler celle de l'air environnant. Selon l'altitude, et donc la température, l'eau reste sous forme liquide ou se transforme en glace, ce qui forme un nuage. Par ailleurs, le mouvement de convection peut entraîner avec lui différents types d'aérosols : poussières, suies, pollens, embruns marins, etc. En circulant, ces aérosols ainsi que les gouttes et cristaux nouvellement formés entrent en collisions. Des électrons s'échangent, ce qui crée des charges électriques. Les charges s'accumulent, ce qui engendre un gradient vertical de potentiel électrique entre le nuage et le sol, ou même entre le haut et le bas du nuage. Si suffisamment de charges s'accumulent, une décharge a lieu pour rétablir l'équilibre électrostatique. C'est le phénomène de foudre.

### 1.3.2. Foudre

La foudre est une brusque décharge formée d'une vive lueur, l'éclair (Figure 6), suivie du tonnerre, bruit caractéristique causé par la violente dilatation de l'air localement chauffé par la décharge.



Figure 6 – Éclair ascendant photographié à Miallet, en Dordogne (©Jean-Guillaume Feignon).

---

<sup>2</sup> L'air humide est moins lourd que l'air sec.

Ce phénomène suscite beaucoup d'intérêt de la part de la communauté scientifique et plusieurs missions récentes ou en cours de préparation y sont dédiées. La mission TARANIS (*Tool for the Analysis of Radiation from lightning and Sprites*) (Blanc et al. 2007a) est une mission du CNES (Centre National d'Études Spatiales) dédiée à l'étude des échanges impulsifs d'énergie entre l'atmosphère de la Terre et l'environnement spatial proche. Cette mission, partiellement dédiée à l'étude des phénomènes lumineux transitoires, sera abordée plus en détail dans la partie « 1.5 ». L'instrument GLM (*Global Lightning Mapper*) est embarqué à bord d'un satellite météorologique américain de la série GOES (*Geostationary Operational Environmental Satellite*) lancé en novembre 2016 (GOES-R, ou GOES-16 (Goodman et al. 2013)). Elle est capable de détecter les éclairs de jour comme de nuit et a pour objectif de contribuer à la prévision des orages violents et potentiellement accompagnés de tornades. Un autre GLM est embarqué à bord de GOES-S (ou GOES-17), lancé en mars 2018 afin de compléter la couverture spatiale de la mission. Depuis février 2017, la NASA (*National Aeronautics and Space Administration*) a installé un exemplaire du *Lightning Imaging Sensor* (LIS) à bord de l'ISS (*International Space Station*) qui a, par le passé, permis d'observer l'activité électrique tropicale lors de la *Tropical Rainfall Measuring Mission* (TRMM (Kummerow et al. 1998)). Le LI (*Lightning Imager*) sera lancé à bord du satellite européen *Meteosat Third Generation* (MTG). Il pourra détecter et localiser les éclairs et permettra de compléter les données GLM (Rodriguez et al. 2009).

Les décharges les plus étudiées sont de type nuage-sol. On les appelle *cloud-to-ground* (CG) ou *ground-to-cloud* (GC), selon le sens de propagation. Elles sont principalement connues pour leurs conséquences fâcheuses sur les transports, les communications, les infrastructures et les êtres vivants. On peut distinguer quatre catégories de décharges nuage-sol selon la direction, descendante ou ascendante, et la charge portée par le traceur (*leader*, le canal ionisé qui se forme en premier), négative ou positive. Aux latitudes moyennes, dans les régions au climat tempéré, 90 % des décharges sont déclenchées par un traceur descendant et chargé négativement (-CG). Un peu moins de 10 % des décharges sont déclenchées par des traceurs également descendants, mais chargés positivement (+CG). Enfin, les deux dernières catégories sont constituées par de rares décharges ascendantes qui sont déclenchées par des traceurs négatifs ou positifs (-GC ou +GC). Ces dernières ont lieu principalement en montagne ou au-dessus de hautes structures d'origine anthropique (immeubles, ponts, antennes...). On peut également mentionner l'existence de décharges *intra-cloud* (IC), puisqu'elles ont lieu au sein du nuage, et *cloud-to-cloud* (CC), qui ont lieu d'un nuage à un autre.

La formation du canal entre le nuage et le sol n'a rien de linéaire, le mécanisme physique qui explique ce transfert de charge est d'ailleurs appelé *stepped leader*. La progression du traceur se fait par saccades successives de quelques dizaines de mètres (Dwyer et Uman 2014). La durée typique de propagation de chacun de ces « segments » de plasma est de l'ordre de 50  $\mu$ s près du nuage à 10  $\mu$ s près du sol. La vitesse moyenne de descente des segments de traceur est de l'ordre de  $2 \times 10^5$  m/s.

La propagation de la décharge varie selon son type, et selon les conditions atmosphériques. De même, des ramifications peuvent croître dans des directions variées. Celles-ci correspondent à une recherche du chemin optimal vers les charges opposées, celui qui offre la moindre résistance électrique. Les mécanismes de propagation de la foudre sortant du cadre de ce manuscrit, les lecteurs intéressés par ce sujet peuvent se référer à un ouvrage de référence tel que « *Lightning: Physics and Effects* » de Rakov et Uman (2003).

## 1.4. Phénomènes lumineux transitoires de moyenne atmosphère

Même si elle n'est pas la plus éloignée des observateurs qui, depuis les débuts de l'humanité, dirigent leur regard vers le ciel, l'atmosphère moyenne (stratosphère et mésosphère) demeure la région la moins bien connue de l'atmosphère terrestre. À la suite de l'avènement de l'ère du spatial, elle reste difficilement sondable par les satellites, qui ont un accès privilégié aux couches les plus hautes, et seule sa région la plus basse est accessible aux mesures *in-situ* avec des moyens aéroportés traditionnels (20 km d'altitude maximum pour les avions, 45 pour les ballons). C'est pourquoi, en comparaison avec des phénomènes tels que les éclairs (dans la troposphère) et les aurores (dans l'ionosphère), les phénomènes lumineux qui ont lieu dans la gamme d'altitudes intermédiaires ont autant tardé à être découverts.

### 1.4.1. Découverte des phénomènes lumineux transitoires

En 1886, dans une communication dans *Nature* (Toynbee et Mackenzie, 1886), Henry Toynbee rapporte un témoignage de son collègue T. Mackenzie qui se trouve alors en Jamaïque. En quittant le port de Kingston, le 23 novembre 1885 à bord du RMS (*Royal Mail Ship*) Moselle, Mackenzie décrit la scène suivante : *"... the night was fine and starlit overhead, but about 8 p.m. a heavy bank of cloud obscured the island, and all around the upper edges of this cloud-bank brilliant flashes of light were incessantly bursting forth, sometimes tinged with prismatic hues, while intermittently would shoot vertically upwards continuous darts of light displaying prismatic colours in which the complementary tints, crimson and green, orange and blue, predominated. Sometimes these darts of light were projected but a short distance above the cloud-bank, but at others they ascended to a considerable altitude, resembling until about 9.30 p.m., when all display of light ceased."* Ceci est probablement la première description méticuleuse de ce que nous appelons aujourd'hui phénomène lumineux transitoire.

Presque 17 ans plus tard, en 1903, à nouveau dans *Nature* (Everett 1903), Joseph David Everett rapporte une correspondance avec son collègue W. H. Everett, professeur au Sibpur Engineering College à Howrah, près de Calcutta, en Inde. Le 23 juillet W. H. Everett commence sa lettre : *"We saw some strange lightning yesterday evening at about 9 p.m."*. Après une description des conditions atmosphériques, il réalise une description méthodique de ce qu'il appelle *"rocket lightning"*: *"At intervals of three minutes or so, immediately after a flash – which, as common here, was mostly multiple, lasting a second or so altogether – a luminous trail shot strait up to 15 ° or so, about as fast as, or rather faster than, a rocket, and of very similar appearance, but with minute waves, like ribbon lightning"*. Cette description ressemble de très près à celle de certains des phénomènes observés en 1885 à Kingston. Celle-ci semble désigner ce que nous appellerions aujourd'hui *blue jet*.

Par la suite, la possibilité de l'existence d'éclairs au-dessus des orages est soulevée par C. T. R. Wilson (prix Nobel écossais) en 1924 (Wilson 1924). En considérant un nuage d'un rayon de 10 km, il calcule que le moment électrique serait suffisant pour déclencher une décharge à une altitude de 60 km. En effet, il décrit que la densité diminuant avec l'altitude, le libre parcours moyen des électrons est plus

long, ce qui leur permettrait de gagner plus facilement de l'énergie pour un champ électrique donné. Le champ électrique créé par les charges dans les nuages diminue lentement avec l'altitude alors que la pression diminue exponentiellement. Ainsi, il devrait y avoir une altitude critique à laquelle les électrons libres acquièrent suffisamment d'énergie pour ioniser l'oxygène et l'azote moléculaire et produire davantage d'électrons par effet d'avalanche.

La première preuve de l'existence de ces phénomènes (Figure 7) vient corroborer ces témoignages et prédictions théoriques en 1989 (Franz et al. 1990). Une équipe de chercheurs de l'Université du Minnesota enregistre par accident un *sprite* avec une caméra de télévision à basse lumière. Cet événement ouvre la voie à presque trois décennies d'observation des phénomènes lumineux transitoires.



Figure 7 – Première image d'un *sprite*, enregistrée le 5 juillet 1989 près de Minneapolis (Franz et al. 1990).

De nos jours, les TLEs, sont définis comme des phénomènes optiques et électriques qui ont lieu au-dessus des nuages d'orage entre 15 et 110 km d'altitude (Pasko et al. 2012). Selon leur altitude, durée, taille, forme, énergie et couleur on peut en distinguer cinq types principaux : les *sprites*, les *blue jets*, les *halos*, les *ELVES* et les *gigantic jets* (Figure 8).

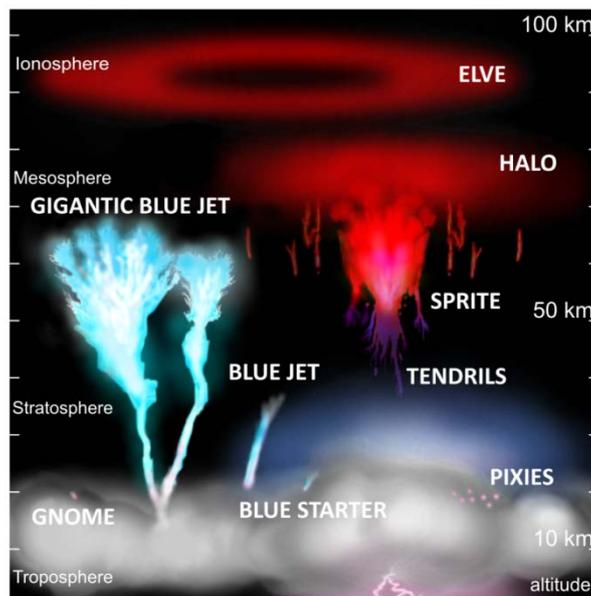


Figure 8 – Illustration des différents types de phénomènes lumineux transitoires et de leurs altitudes (©TRAPPA Group).

Ces différents types de TLEs sont succinctement décrits dans les sections suivantes.

## 1.4.2. Sprites

Les *sprites* (Figure 9), parfois appelés farfadets ou encore sylphes rouges par la communauté francophone, sont de grandes structures lumineuses qui se propagent de la basse ionosphère (90 km) à travers la mésosphère jusqu'à environ 40 km. Ils sont issus d'une soudaine redistribution de charge causée par les éclairs dans la troposphère. Phénomène qui peut conduire à un champ électrique supérieur au champ de claquage dans la mésosphère (Stenbaek-Nielsen et al. 2013). Ils sont déclenchés principalement par des éclairs de type +CG (Pasko et al. 1997).

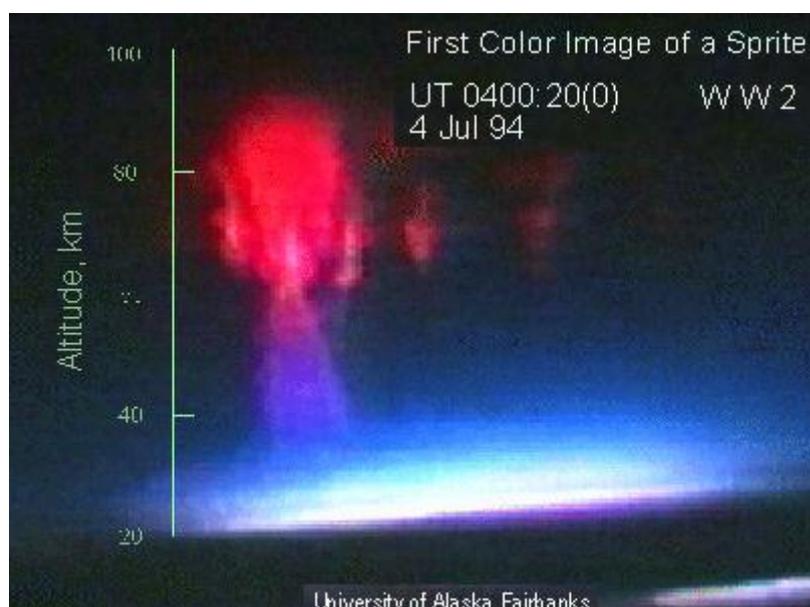


Figure 9 – Première image d'un *sprite* en couleur (©University of Alaska, Fairbanks).

On peut distinguer quatre types de *sprites* selon leur forme :

- les *sprites* en colonne (*C-sprites*, *columniform sprites*), qui s'étendent verticalement en fines colonnes,
- les *sprites* en carotte (*carrot sprites*), qui ont un corps en forme de cœur, d'où s'échappent de multiples filaments,
- les *sprites* en méduse (*jellyfish sprites*), les plus gros, dont le corps volumineux et brillant surmonte une multitude de filaments qui se propagent vers le bas,
- les *angle sprites*, dont certaines structures s'étirent à l'horizontale.

Par ailleurs, les *sprites* se décomposent généralement en trois parties. La région des *streamers* à basse altitude, une région de transition, et une région plus diffuse à haute altitude.

La partie basse des *sprites* est formée par la propagation d'un ensemble de nombreux *streamers*. Ce mouvement, lorsqu'il est enregistré par des caméras classiques avec un taux d'acquisition à 30 images par seconde, est intégré sur un temps suffisamment long pour qu'on ait l'illusion que les *sprites* sont d'immenses structures filamentaires. Or, en imagerie rapide, on peut constater que ce sont plutôt des boules lumineuses qui descendent de la partie basse de l'ionosphère et, parfois, se

propagent latéralement ou vers le haut. Le filament issu du temps d'intégration du mouvement des *streamers* est appelé *tendrils*. Les *streamers* sont des boules de plasmas qui naissent à haute altitude à partir d'hétérogénéités dans les concentrations en électrons à la base de l'ionosphère, vers 80 kilomètres. Leur diamètre typique est de l'ordre de la dizaine à la centaine de mètres selon l'altitude. Ils se déplacent à haute vitesse ( $10^7$  m/s), tout en devenant de plus en plus brillants au cours de leur descente (Marshall et Inan 2005 ; McHarg et al. 2007 ; Montanyà J. et al. 2010 ; Pasko et al. 2012 ; Stenbaek-Nielsen et al. 2007).

Les *sprites* étant notre principal objet d'étude, les connaissances à leur sujet seront décrites plus en détail dans la section « 1.5 ».

### 1.4.3. Halos

Les *halos* (Figure 10) se produisent parfois en association avec les *sprites*, parfois seuls. On les appelle d'ailleurs *sprite halos* lorsqu'ils sont associés. Leur forme est celle d'un disque diffus qui peut atteindre une centaine de kilomètres de diamètre et une dizaine de kilomètres d'épaisseur. On les observe entre 80 et 90 km pendant une durée de l'ordre de la milliseconde (ms).



Figure 10 – De gauche à droite, un *sprite halo*, un *gigantic jet* et deux *sprites*. Ces quatre phénomènes n'ont pas eu lieu en même temps, cette image est construite à partir de la superposition de quatre photographies prises dans un intervalle d'une heure à Cabo Rojo, Porto Rico (©Frankie Lucena).

Ils se déclenchent suite à des éclairs positifs et négatifs de type CG (Barrington-Leigh et al. 2001). Leur mécanisme de déclenchement est similaire à celui des *sprites* et est causé par le champ quasi électrostatique entretenu par l'accumulation de charges au sein des cumulonimbus. Le champ responsable des *halos* est cependant plus faible, c'est pourquoi ils sont moins lumineux et plus difficiles à observer.

#### 1.4.4. ELVES

Autre forme diffuse, les ELVES (*Emissions of Light and Very low frequency perturbations due to Electromagnetic pulse Sources*) ont la forme de disques ou halos et sont bien moins lumineux que les autres TLEs. Ils se développent horizontalement pour atteindre un diamètre de plusieurs centaines de kilomètres (Figure 11).



Figure 11 – ELVE enregistré à Prague (©Martin Poppek)

Ils apparaissent à la base de l'ionosphère et sont observés pour la première fois en 1992 (Boeck et al. 1992), depuis la navette spatiale, et en 1996 depuis le sol (Fukunishi et al. 1996). Leur existence est cependant prédite l'année précédente par Inan et al. (1991), qui estiment que le passage du *pulse* électromagnétique issu d'éclairs troposphériques de type +CG particulièrement intenses, peut suffisamment exciter les électrons entre 90 et 95 km d'altitude pour conduire à des émissions visibles. Ces phénomènes ont généralement lieu avant un *sprite*. Il s'agit du plus bref type de TLE puisqu'il n'est visible que pendant 1 ms.

#### 1.4.5. Blue jets, blue starters et gigantic jets

Auparavant rassemblés sous l'unique appellation « *cloud top discharges* » (Lyons et al. 2003), ces phénomènes se distinguent aujourd'hui en au moins trois catégories : *blue jets*, *blue starters* et *gigantic jets*. La première publication à mentionner leur détection remonte à 1994 (Wescott et al. 1995). La campagne aéroportée lancée à la recherche de *sprites*, *Sprites94*, permet d'enregistrer un type de phénomène encore inédit : les *blue jets* (Figure 12). Quelques années après, Boeck et al.

(1998a) publient des travaux qui montrent que, en réalité, des *blue jets* ont déjà été enregistrés depuis la navette spatiale en 1989.

Les *blue jets* sont des décharges ascendantes qui émergent du sommet des nuages d'orage, entre 15 et 18 km d'altitude. Ils se propagent jusqu'à une quarantaine de kilomètres à des vitesses de l'ordre de 100 km/s (Lyons et al. 2003). Ils ont une forme de cône de 15 ° (angle total au sommet) et leur durée visible est de quelques centaines de ms (Pasko 2010). Leur couleur est issue des émissions du premier système négatif de  $N_2^+$  ( $1NN_2^+$ ), cation préalablement produit par une phase de forte ionisation.



Figure 12 – *Blue jet* photographié en Australie (©Thijs Bors).

Les *blue starters* sont similaires au premier stade de développement des *blue jets* puisqu'ils se propagent vers le haut à partir du sommet de cumulonimbus à des vitesses comprises entre 27 et 153 km/s (Wescott et al. 1996), mais leur progression cesse entre 20 et 30 km d'altitude maximum. Leur observation depuis le sol est rendue difficile par la diffusion Rayleigh<sup>3</sup> de la lumière bleue. Jusqu'à présent, les *blue starters* n'ont été reliés à aucun type d'éclair troposphérique précurseur en particulier.

Au tout début du 21<sup>e</sup> siècle, deux types de phénomènes commencent donc à être bien connus. Les *sprites*, qui se propagent vers le bas depuis la base de l'ionosphère, et les *blue jets*, qui se propagent vers le haut depuis le sommet des nuages d'orage. 80 ans auparavant, (Wilson 1924), parle d'une potentielle liaison électrique entre nuages d'orage et ionosphère. Cependant, jusqu'au début des années 2000, il n'y a toujours aucune observation pour confirmer cette théorie. C'est en 2001, à l'Observatoire d'Arecibo à Porto Rico, que cette preuve est capturée par une caméra CCD (*Charge-Coupled Device*) à 30 images par seconde (*frame per second*, FPS). Les images montrent ce qui semble être un *blue jet* se propager jusqu'à 43 km d'altitude mais, au lieu de s'arrêter là, le phénomène forme ensuite des structures typiques de *sprites* qui s'étendent au-delà de 70 km (Pasko et al. 2002).

<sup>3</sup> Lorsque la longueur d'onde est grande devant la taille des particules diffusantes.

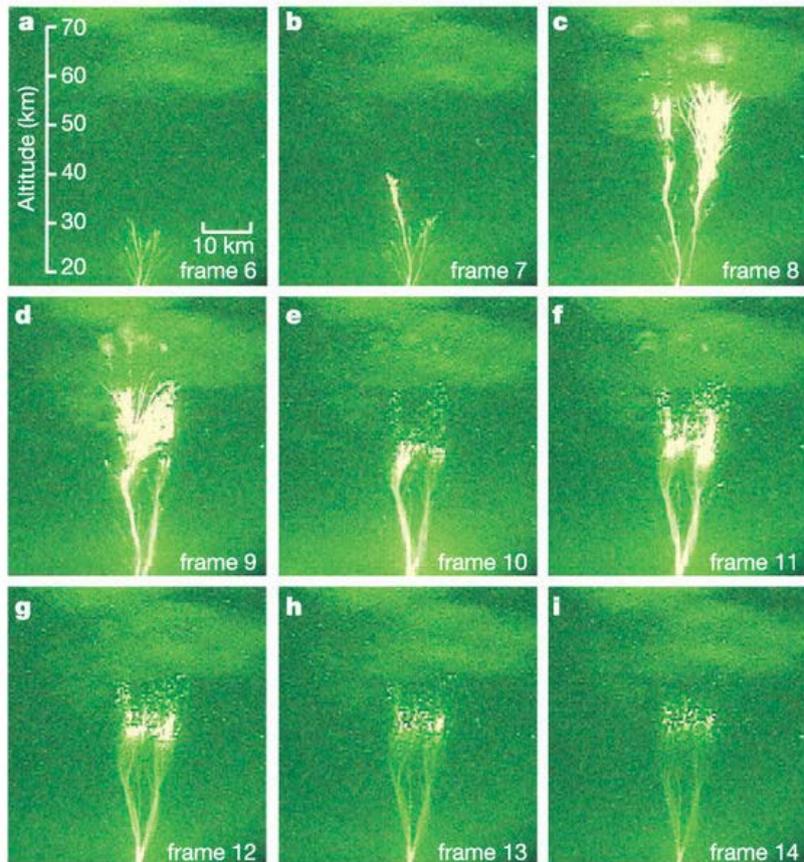


Figure 13 – Dynamique temporelle d'un *gigantic jet* enregistré le 15 septembre 2001 (Pasko et al. 2002).

Les *gigantic jets* (Figure 14) sont suspectés d'être à l'origine de rayonnement  $X^4$  et  $\gamma^5$  détectés depuis l'espace (Moss et al. 2006). Leur vitesse d'ascension typique est de  $5 \times 10^4$  m/s dans la partie basse (< 30 km) à  $2.7 \times 10^5$  m/s dans la partie haute.

<sup>4</sup> Rayonnement de longueur d'onde comprise entre  $10^{-12}$  et  $10^{-8}$  m.

<sup>5</sup> Longueur d'onde inférieure à  $10^{-12}$  m.



Figure 14 – Un *gigantic jet* photographié en Chine, près de la montagne Shikengkong (©Phebe Pan).

#### 1.4.6. Autres formes de phénomènes lumineux transitoires

Différents travaux rapportent d'autres formes de TLEs, encore plus rares. Ils accompagnent parfois d'autres phénomènes plus fréquents, en sont des manifestations développées de façon incomplète, ou bien sont des événements complètement différents. Les connaissances à leurs sujets restent modestes.

Les *trolls* (Figure 15), structures de forme proche de celle d'un *blue jet*, émettent principalement dans le rouge et se propagent jusqu'à 50 km avec une vitesse moyenne de  $1.5 \times 10^5$  m/s. Ils apparaissent après la formation des *tendrils* lors de *sprites* particulièrement forts. Ils présentent une tête brillante, qui se propage vers le haut, et laisse derrière elle une traînée moins lumineuse. Leur vitesse initiale est de 150 km/s. Celle-ci diminue progressivement jusqu'à disparition du phénomène à une cinquantaine de kilomètres (Lyons et al. 2003).

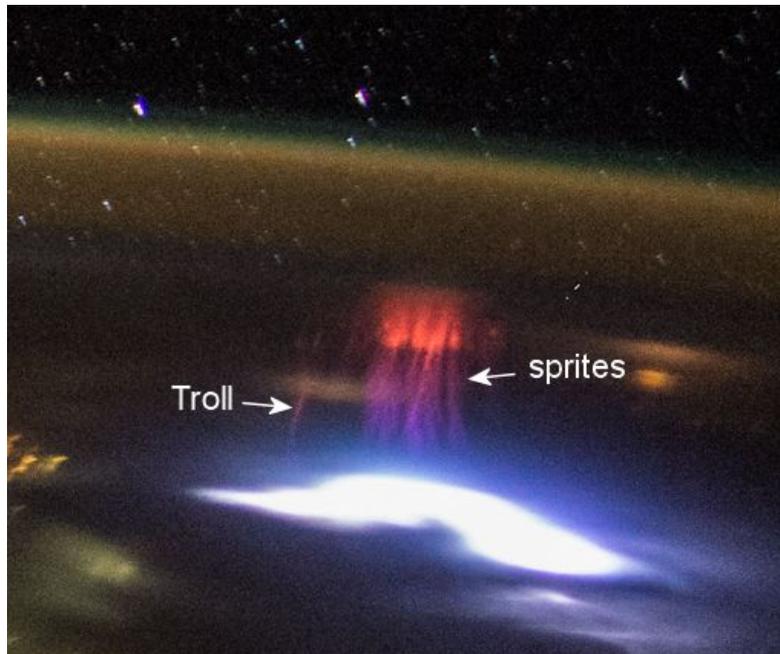


Figure 15 – Image d'un *sprite*, accompagné d'un *troll*, prise depuis l'ISS au-dessus du Mexique (©Tucson News Now).

Les *gnomes* peuvent être une variété plus compacte des *blue jets* et *blue starters* puisqu'ils ont des caractéristiques similaires, mais un développement vertical plus faible, de l'ordre du km. Leur durée varie de 33 à 136 ms et leur largeur est d'environ 200 m. Leur vitesse d'ascension est estimée à  $10^4$  m/s. Ils semblent plus compacts, plus brillants et optiquement plus uniformes que les *blue starters* décrits par Wescott et al. (1996), même s'il est possible qu'ils n'en soient qu'une variété (Lyons et al. 2003).

Les *pixies* ont une forme de globe d'une centaine de mètres de diamètre et d'une durée inférieure à 17 ms. Ils apparaissent au-dessus de super cellules convectives<sup>6</sup>. Leur forme bien particulière semble indiquer qu'il s'agit bien d'un type de TLE distinct. D'après des observations ISUAL (*Imager of Sprite and Upper Atmospheric Lightings*), à bord du satellite Formosat -2, réalisées au-dessus du Nord de l'Australie, leur taux d'occurrence est de 4.2/minute (Kuo C. L. et al. 2015). Ce phénomène peut évoquer un autre, également très rare, qu'on appelle foudre en boule. Ce type d'éclair reste partiellement inexplicé et son existence repose sur des témoignages uniquement, même s'ils ont pu être reproduits en laboratoire. Ils ont lieu à basse altitude, parfois au niveau du sol. Leur dimension est de 20 à 50 cm de diamètre et leur durée est de quelques secondes (Charman 1979).

Un autre type de TLE, nommé *crawler* par Moudry et al. (2003), est décrit comme un phénomène secondaire associé à certains *sprites*, qui a lieu entre leur base et le sommet des nuages d'orage. Les auteurs distinguent ces *crawlers* en trois catégories. Les *smooth crawlers* ressemblent à des perles

<sup>6</sup> Phénomène associé à des orages particulièrement violents, au cours desquels se forment des tornades et où de fortes chutes de grêle ont lieu.

qui se déplacent vers le haut à des vitesses de l'ordre de  $10^5$  m/s. Les *embers* apparaissent parfois dans les *tendrils* des *sprites*, en dessous de 60 km. Ils ont une forme sphérique et se propagent vers le bas en direction des nuages à une vitesse de  $10^6$  m/s. Ils se déplacent sur 2 km et leur durée est d'environ 1 ms. Enfin, les *palm trees*, très similaires aux *gigantic jets*, se propagent vers le haut depuis les nuages et s'étendent latéralement entre 60 et 70 km d'altitude, ce qui leur donne l'apparence de palmier. Leur vitesse est estimée à  $1.5 \times 10^6$  m/s (Marshall et Inan 2007).

On peut par ailleurs citer les entrées de météores (Figure 16), qui, par définition, peuvent être considérées comme des phénomènes lumineux transitoires (d'origine non électrique). Lorsqu'ils entrent dans l'atmosphère, ils créent une traînée lumineuse causée par vaporisation du corps et ionisation de l'air sur leur trajectoire, laissant derrière eux une traînée de plasma. Ce sont les étoiles filantes (Figure 16), que l'on peut fréquemment observer en été lorsque le ciel est dégagé et la pollution lumineuse modérée.

D'après certaines théories, les météores pourraient constituer l'un des phénomènes précurseurs à l'apparition des TLEs (Wescott et al. 2001). Ceci sera discuté dans « 1.5.1 ».



Figure 16 – Entrée de météore dans l'atmosphère, photographiée dans la communauté de Cantabrie, Espagne, le 20 janvier 2016 (©Juan Carlos Munoz / BIOSPHOTO / AFP).

## 1.5. État de l'art des connaissances liées aux sprites

### 1.5.1. Mécanismes de formation et de propagation

#### 1.5.1.1. Considérations électriques à grande échelle

Les *sprites* sont déclenchés par d'intenses décharges troposphériques de type CG (principalement positifs, +CG), qui génèrent un fort champ quasi électrostatique dans la mésosphère et basse ionosphère (Wilson 1924). Les *sprites* peuvent être de polarité négative ou positive. Toutefois, les *sprites* positifs sont beaucoup plus fréquents. Sur 1651 *sprites* enregistrés entre 2008

et 2012 par un système de cinq caméras déployées aux États-Unis, seuls 6 d'entre eux étaient de polarité négative (Li et al. 2012). Ils étaient déclenchés par un type peu commun d'éclairs -CG.

L'éclair qui précède un *sprite* est appelé « éclair parent ». Les deux événements sont séparés de quelques millisecondes à quelques centaines de millisecondes (Li et al. 2008).

Le changement de moment de charge (CMC, *Charge Moment Change*) permet de déterminer le potentiel de production d'un *sprite* d'un éclair parent. Il correspond à la charge retirée par un éclair (Q) multipliée par l'altitude à laquelle cette charge est retirée ( $h_Q$ ). Hu et al. (2002), à partir de l'analyse de 76 *sprites* enregistrés en Amérique du Nord, proposent un seuil de 120 C.km (Coulomb × kilomètre). Ils vont même plus loin et estiment que 90 % des éclairs positifs dont le CMC est supérieur à 1000 C.km, et est retiré en moins de 6 ms, produisent un ou plusieurs *sprites*. De même, pour un CMC < 600 C.km et retiré en moins de 6 ms, le taux de production de *sprite* est inférieur à 10 %. Un autre indicateur, produit des moments de courant ( $I.h_Q$ ) et de charge ( $Q.h_Q$ ), peut également être utilisé. Hiraki et Fukunishi (2006) et Asano et al. (2008) proposent un seuil de  $I.Q.h_Q^2 = 1.6 \times 10^6$  A.C.km<sup>2</sup> (Ampère × Coulomb × kilomètre<sup>2</sup>) pour le déclenchement d'un *sprite*. Leurs résultats montrent également l'importance de la durée de ce retrait de charge, ce qui confirme l'analyse de Barrington-Leigh et al. (2001), qui expliquent qu'un CMC modéré retiré en moins de 1 ms serait suffisant pour causer des émissions diffuses à haute altitude.

À partir d'observations photométriques acquises par l'instrument ISUAL et de données électromagnétiques à très basse fréquence (*Extremely Low Frequency*, ELF) acquises depuis l'observatoire d'Onagawa (Université de Tohoku, Japon), Adachi et al. (2008) montrent que les éclairs à l'origine de *halos* sans *streamers* ont une courte durée de vie de l'ordre de 1 ms avec un CMC relativement faible de 400 C.km, alors que ceux qui produisent *halos* et *streamers* ont une durée similaire mais un CMC proche de 1300 C.km. D'autres part, les éclairs à l'origine de *sprites* sans *halo* ont une durée plus longue de l'ordre de 10 ms et un CMC similaire de 1300 C.km.

Li et al. (2008) comparent les mesures optiques de 83 *sprites* à des mesures de champ électromagnétique liées à leurs 67 éclairs parents, tous de type +CG. Parmi eux, 46 % des *sprites* se déclenchent après un délai supérieur à 10 ms (*sprites* différés). De plus, les *sprites* différés se déclenchent 5 km plus bas que ceux à délai court. Le moment de courant continu ( $I.h_Q$ ) associé aux *sprites* différés est au moins de 11 kA.km entre l'éclair parent et le *sprite*. Le CMC minimum est de 600 C.km, pour initier un *sprite* différé de 15 ms, à 2000 C.km, pour un *sprite* différé de 120 ms. Les *sprites* différés se développent à partir de structures diffuses qui les précèdent, les *halos*, alors que les *sprites* à délai court ne semblent émerger d'aucune structure préexistante et se forment à des altitudes plus basses, autour de 70 km (Stenbaek-Nielsen et al. 2013).

Selon Qin et al. (2012b), des CMC très faibles peuvent être à l'origine de *sprites* en présence d'une inhomogénéité de densité en électrons dans la région D de l'ionosphère, au-delà de 90 km. Dans ces conditions ionosphériques, l'initiation de *sprites* par des décharges +CG est possible pour un CMC de 200 C.km, et celle par des -CG (*sprite* négatif), pour un CMC de 300 C.km.

Parmi les *sprites* les plus couramment observés, on peut en distinguer deux formes : les *C-sprites*, et les *carrot-sprites* (voir « 1.4.2 »). Des observations menées depuis l'observatoire du Pic du Midi, dans les Pyrénées, suggèrent qu'ils peuvent être associés à différents types d'activité électrique au sein de l'orage. Les *C-sprites*, à délai court (< 30 ms de l'éclair parent, de type +CG), sont associés à des émissions VHF (*Very High Frequency*, 30 – 300 mégahertz) réduites, ce qui suggère que l'activité de type IC (*Intra-Cloud*), qui suit le +CG, n'aurait pas de rôle direct dans le transfert de charge. Les *carrot-sprites*, eux, se déclenchent à 200 ms de l'éclair parent +CG et sont accompagnés d'une intense activité VHF, 25 à 75 ms avant la décharge CG (van der Velde et al. 2006). Les *carrot-sprites* présentent à la fois des *streamers* se propageant vers le haut et vers le bas. Les *C-sprites* se

caractérisent par des *streamers* se propageant principalement vers le bas. D'après Qin et al. (2013), les décharges de type +CG, associées à de forts CMC, produisent plutôt des *carrot-sprites*, alors qu'un CMC plus faible produit plutôt des *C-sprites*. LE CMC pour le déclenchement de *sprites* positifs et négatifs est respectivement d'environ 320 et 500 C.km dans des conditions nocturnes typiques. Les auteurs soulignent également que la variabilité dans la morphologie des différents *sprites* serait issue de la variation géographique et temporelle de la conductivité électrique de la basse ionosphère, et de l'activité orageuse, qui conduit à différents types de décharges troposphériques.

### 1.5.1.2. Mécanismes à l'échelle des streamers

Les *sprites* sont principalement composés d'un ensemble de décharges de type *streamer* que l'on peut décrire comme une onde d'ionisation hautement non-linéaire qui se propage dans un champ électrique ambiant inférieur au champ de claquage ( $E_k = 120$  Townsends, avec  $1 \text{ Td} = 10^{17} \text{ Volt.cm}^2$  (Liu et al. 2015)). Les *streamers* forment des filaments de plasma froid, peu conducteurs, qui transportent leur charge vers l'électrode opposée (vers les orages ou vers l'ionosphère dans la nature). Leur partie frontale est couramment appelée la « tête ». Elle correspond à une région où le champ électrique est localement particulièrement fort (jusqu'à 4 à 7 fois  $E_k$ ) et laisse derrière elle ce qu'on appelle « canal » ou « queue » du *streamer*. Ce canal est globalement quasi neutre et le champ électrique y est inférieur à  $E_k$ .

La polarité d'un *streamer* est définie par le signe de la charge nette contenue dans la tête. Un *streamer* positif se propage dans la direction opposée à la dérive des électrons (qui se propagent vers le canal), et dans la direction du champ électrique ambiant. Ils ont donc besoin d'une source d'électrons en avant de la tête afin d'entretenir leur propagation. De plus, de nombreuses collisions ont lieu dans la tête du *streamer*, si bien que les molécules peuvent être ionisées et excitées. Les espèces excitées peuvent se relaxer par émission de photons. Certains de ces photons ont une énergie suffisante pour conduire à des réactions de photoionisation, ce qui fournit de nouveaux électrons et contribue également à leur propagation (Vitello et al. 1994). Un *streamer* négatif se propage dans la même direction que la dérive des électrons, qui sont accélérés depuis le canal vers la tête (Dhali et Williams 1987). Ils se propagent dans la direction opposée aux *streamers* positifs. La pré-ionisation du milieu ou la photoionisation ne sont donc pas aussi importants pour leur propagation que pour les *streamers* positifs. Le champ électrique externe minimum nécessaire à la propagation de *streamers* positifs est de  $E/E_k \sim 0.14$  (Phelps et Griffiths 1976) contre  $E/E_k \sim 0.3$  pour les négatifs (Allen et Ghaffar 1995). Les *streamers* positifs requièrent donc un champ électrique plus faible que les négatifs. C'est pourquoi ils sont plus fréquents dans la nature. Si la propagation des *streamers* est bien comprise, leur initiation est sujette à discussions.

L'observation de *sprites* par imagerie à haute cadence a montré qu'ils peuvent se déclencher dans des champs ambiants de l'ordre de seulement quelques dixièmes de  $E_k$  (Li et al. 2008). Cependant, rien n'indique qu'au déclenchement le champ électrique ambiant ne franchisse un quelconque seuil. Pour des champs électriques inférieurs à  $E_k$ , différents travaux de modélisation ont montré que les *streamers* démarrent à partir d'un milieu pré-ionisés, une inhomogénéité appelée « patch », dans lequel la densité électronique est 2 à 3 ordres de grandeurs supérieure à celle du milieu ambiant (Liu et al. 2012 ; Kosar et al. 2013). Ces inhomogénéités peuvent provenir d'effets de haute atmosphère liés aux orages, d'après Rycroft et Odzimek (2010), le courant continu associé aux éclairs parents pourrait engendrer un champ électrique supérieur à  $E_k$  entre 55 et 67 km d'altitude, ou bien d'entrées de météores, d'ionisation par les rayons cosmiques, ou encore d'ondes de gravité (Liu et al. 2012). Les inhomogénéités pourraient également provenir des vestiges d'un précédent *sprite* trop

peu intense pour être détecté. Ce qui n'expliquerait toutefois pas le déclenchement du premier phénomène. De plus, il a été déterminé que des inhomogénéités de forme verticalement allongée seraient plus favorables au déclenchement de *sprites* (Qin et al. 2014).

L'expérience spatiale ISUAL a permis d'évaluer certaines propriétés électriques associées aux *streamers* des *sprites*. À partir des enregistrements de 5 *sprites*, les rapports de bandes entre les canaux 2 (centré à 337 nm) et 3 (centré à 391.4 nm) de l'instrument ont permis d'estimer l'énergie moyenne des électrons à 6.2 – 9.2 eV. De plus, à 40 et 60 km d'altitude, le champ électrique variait de 243 à 313 et 334 à 443 Td respectivement, soit 2.1 à 3.7  $E_k$  pour la valeur minimale et maximale (Kuo et al. 2005). Ces valeurs sont deux fois plus grandes que les estimations dérivées de la campagne aéroportée EXL98 (*Energetics of upper atmospheric eXcitation by Lightning*, Morrill et al. 2002). Celles-ci étaient basées sur des rapports de bande entre le second système positif de  $N_2$  ( $2PN_2$ ) et le premier système négatif de  $N_2^+$  ( $1NN_2^+$ ). Sachant que l'altitude de vol de l'avion était de 15 km, cette dernière bande se trouvait partiellement absorbée, d'où une sous-estimation de l'énergie des électrons. Par ailleurs, Celestin et Pasko (2010), ont montré que le champ électrique maximal dans les têtes de *streamers* pourrait être sous-estimé lorsqu'il est évalué à partir de mesures d'émissions spatialement intégrées. La densité électronique et le champ électrique ayant une grande variabilité spatiale dans les têtes de *streamers*, le champ électrique maximal devrait être corrigé d'un facteur  $> 1.4$  pour les *streamers* positifs, et  $> 1.5$  pour les *streamers* négatifs.

## 1.5.2. Rayonnement associé aux sprites

### 1.5.2.1. Campagnes d'observation

Plusieurs campagnes d'observation des *sprites* ont successivement été lancées depuis leur découverte, il y a presque trente ans. Certaines ont été menées depuis le sol, aux États-Unis, dans les états du Nebraska, Colorado, Nouveau-Mexique et Wyoming, dans les années 90 et 2000 (Barrington-Leigh et al. 2001 ; Gerken et al. 2000 ; Lyons 1994 ; Rairden et Mende 1995 ; Stenbaek-Nielsen et McHarg 2008). D'autres ont été menées au Brésil (Thomas et al. 2007), en Hongrie (Bór 2013), en Afrique du Sud (Nnadih et al. 2016), en Espagne (Passas et al. 2016), et depuis l'Observatoire du Pic du Midi (Soula et al. 2014).

On peut mentionner différentes campagnes aéroportées : *Sprites'94* (Sentman et al. 1995), *Sprites'96*, (Armstrong et al. 1998), et EXL98 (Heavner et al. 2010).

Plusieurs vols de la navette spatiale américaine ont également été mis à contribution (*STS-32* et *STS-31*, (Boeck et al. 1998b), *STS-107*, (Yair et al. 2003)). Des expériences ont été placées à bord de l'*International Space Station (ISS) : Lightning and Sprite Observations* (Blanc et al. 2007b), et *Global Lightning and sprite Measurements* (GLIMS, (Sato et al. 2013)). D'autres missions satellitaires ont partiellement ou intégralement été dédiées à l'étude des TLEs : ISUAL, à bord du satellite Formosat-2 (Adachi et al. 2008 ; Kuo et al. 2005 ; Liu et al. 2006), le SPRITE-SAT (Takahashi et al. 2010), lancé par la *Japan Aerospace eXploration Agency (JAXA)*, et Tatiana-2 (Garipov et al. 2013), satellite de l'Université de Moscou.

On peut aussi mentionner l'utilisation de ballons pour la réalisation de mesures de champ électrique (*Sprite Balloon Campaign* 1999, (Bering et al. 2004 ; Bhusal et al. 2004)). La liste chronologique, et pratiquement exhaustive, des campagnes d'observation dédiées aux *sprites* est donnée dans l'annexe « 7.1 ».

### 1.5.2.2. Durée et occurrences

La grandeur que l'on attribue généralement à la durée des *sprites* correspond à la durée du flash visible. Selon les auteurs, celle-ci varie de la dizaine à la centaine de ms. Sentman et Wescott (1993) annoncent une durée inférieure à 17 ms pour une brillance de 10 à 50 kilo Rayleigh (kR), l'équivalent d'une aurore assez intense, en se basant sur des images vidéo ; 19 événements de type « flashes de haute atmosphère » sont observés, mais la distinction n'est pas faite entre les différents types de TLEs. Lyons (1994), décrit un ensemble de phénomènes stratosphériques dont la durée est comprise entre 33 et 283 ms. Ces durées sont estimées à partir de l'enregistrement de 248 événements au cours d'une seule nuit d'observation d'un orage au-dessus des hautes plaines aux États-Unis. La distinction entre les différents TLEs n'est toujours pas faite. Rairden et Mende (1995), estiment la durée totale des *sprites* entre 20 à 25 ms et, plus récemment, Bór (2013), propose une durée de 20 à 140 ms basée sur l'enregistrement de près de 500 événements. Il distingue également les différents types de *sprites*.

Bien qu'encore inobservée, la durée du rayonnement infrarouge consécutif aux *sprites*, issue de la désexcitation radiative du CO<sub>2</sub>, est estimée à plusieurs dizaines de secondes par Gordillo-Vázquez (2008) et (Parra Rojas 2015). Sentman et al. (2008), font une estimation similaire.

L'occurrence des *sprites* est estimée à partir de différents types d'observations. Détections optiques, réalisées depuis des instruments au sol ou en orbite, et détection des phénomènes de résonance de Schumann (SR, *Schumann resonance*) à très basse fréquence (ELF, *Extremely Low Frequency*) qui accompagnent les éclairs qui précèdent généralement les *sprites*. Sato et Fukunishi (2003), estiment l'occurrence globale des *sprites* à 0.5/min (720/jour). Cette valeur repose sur la détection des SRs effectuée à la station Syowa, en Antarctique, et à l'observatoire Onagawa, au Japon, et la probabilité définie empiriquement par Hu et al. (2002), qui relie l'apparition des *sprites* au moment de charge des éclairs parents. À partir des observations menées durant la campagne MEIDEX (*Mediterranean Israeli Dust Experiment*), conduite à bord de la navette spatiale Columbia lors de la mission STS-107, Yair et al. (2004), proposent un taux d'occurrence de quelques *sprites*/min au niveau des tropiques. Cette estimation est basée sur 6 heures d'enregistrements durant 21 orbites. Ignaccolo et al. (2006) présentent une formule qui permet d'estimer le nombre annuel moyen de *sprites* (et même de n'importe quel événement observé par téledétection). Celle-ci prend en compte le nombre d'événements détectés par un instrument, l'efficacité de ce détecteur, ainsi que des termes d'efficacité spatiale et temporelle, directement reliés à la couverture spatiale et temporelle de l'instrument. Ainsi, les auteurs proposent une estimation de 2.8 *sprites* par minute avec une incertitude d'un facteur 2 à 3. Selon Chen et al. (2008), les données acquises par ISUAL, à bord du satellite Formosat -2, ont permis d'enregistrer 633 *sprites* entre juillet 2004 et juin 2007. Notons que pendant ce même intervalle, plus de 5400 *ELVES*, 650 *halos* et 13 *gigantic jets* ont également été détectés. Pendant l'été (de l'hémisphère nord) ISUAL couvrait les latitudes entre 45 °S et 25 °N, et 25 °S à 45 °N l'hiver. Sur cette région géographique, le taux de *sprite* est de 0.5/min. Afin d'estimer le taux à l'échelle du globe, les auteurs proposent d'appliquer un facteur 2, qui conduit à une estimation de 1 *sprite*/min en moyenne.

### 1.5.2.3. Rayonnement visible, ultraviolet et proche infrarouge

Les différentes campagnes d'observation, associées à de nombreux travaux de simulation, sont à l'origine de nos principales connaissances à propos du rayonnement visible, ultraviolet et

proche infrarouge des *sprites*. Les premiers spectres, mesurés en 1995 par deux équipes différentes, l'une du *Lockheed Martin Palo Alto Research Laboratory*, l'autre de l'Université d'Alaska à Fairbanks, identifient le premier système positif de  $N_2$  ( $1PN_2 : N_2 (B^3\Pi_g) \rightarrow N_2 (A^3\Sigma_u^+)$ ) comme principal responsable des émissions entre 500 et 850 nm (Hampton et al. 1996 ; Mende et al. 1995). Les émissions dans le proche ultraviolet et le bleu, entre 230 et 460 nm, sont issues du second système positif de  $N_2$  ( $2PN_2 : N_2 (C^3\Pi_u) \rightarrow N_2 (B^3\Pi_g)$ ). Elles sont pour la première fois identifiées lors de la campagne EXL98, menée en juillet 1998 (Heavner et al. 2010), et sont confirmées par Pasko et al. (1997), puis Morrill et al. (1998), qui utilisent des modèles de champ quasi électrostatique pour calculer les principales bandes d'émission des *sprites*. Certains enregistrements montrent parfois un pic à 428 nm, issu du premier système négatif de  $N_2^+$  ( $1NN_2^+ : N_2^+(B^2\Sigma_u^+) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$ ), mais il est rarement observable (Armstrong et al. 1998). La présence de bandes de Meinel ( $N_2^+(A^2\Pi_u) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$ ) est discutée et suspectée par différents auteurs (Armstrong et al. 1998 ; Morrill et al. 1998 ; Pasko et al. 1997) avant d'être formellement reconnue par (Bucselá et al. 2003). Ces bandes apparaîtraient plutôt à basse altitude, entre 50 et 60 km. Des travaux de simulation ont également prédit la présence potentielle de bandes NO- $\gamma$  ( $NO(A^2\Sigma^+) \rightarrow NO(X^2\Pi)$ ) et Lyman-Birge-Hopfield (LBH,  $N_2(a^1\Pi_g) \rightarrow N_2(X^1\Sigma_g^+)$ ) dans l'UV (Liu et Pasko 2004). Les émissions LBH ont par ailleurs été détectées par l'expérience ISUAL (Mende et al. 2006) alors que l'existence des bandes NO- $\gamma$  n'est à ce jour pas confirmée.

#### 1.5.2.4. Rayonnement infrarouge

Jusqu'à présent (2018), aucune mission d'observation ne s'est intéressée au rayonnement infrarouge des *sprites* au-delà de quelques microns (proche infrarouge). Les travaux concernant les émissions dans l'infrarouge moyen et lointain ne sont donc que théoriques et reposent sur des simulations numériques. Les travaux menés dans cette gamme de longueurs d'onde étant relativement rares, les principaux résultats de ceux-ci sont présentés de façon exhaustive.

L'effet des orages sur les émissions infrarouges de la mésosphère et thermosphère sont étudiés depuis que Picard et al. (1997) ont calculé la production de rayonnement consécutif à l'excitation des électrons de la basse ionosphère par le champ électrique causé par les orages dans la troposphère (de l'ordre de 30 Td). Il a été estimé que le rayonnement à 4.26  $\mu\text{m}$  pouvait être accru d'un facteur deux par rapport au rayonnement ambiant nocturne habituel entre 80 et 130 km d'altitude. Ce travail n'étudiait pas véritablement les *sprites*, mais plutôt les effets d'un champ quasi stationnaire entre orage et ionosphère sur les populations des niveaux vibrationnels de  $N_2$  et  $CO_2$  dans des conditions atmosphériques pouvant conduire à l'apparition de *sprites*.

Milikh et al. (1998) ont considéré la production de niveaux vibrationnels de  $N_2$  par impact avec les électrons ionosphériques accélérés par un champ électrique. L'intensité de ce champ était déduite à partir d'observations des bandes d'émission du  $N_2$ . Le transfert d'énergie vers l'espèce  $CO_2(001)$  et les émissions infrarouges consécutives à 4.26  $\mu\text{m}$  étaient calculées puis propagées à travers l'atmosphère. Ceci a montré qu'une éventuelle détection pourrait être réalisée depuis l'espace. Cependant, l'énergie moyenne des électrons considérés dans ce modèle était de l'ordre de quelques dixièmes d'eV, ce qui est inférieur d'un ordre de grandeur aux estimations basées sur les mesures ISUAL.

Dix ans plus tard, Gordillo-Vázquez (2008), a proposé un modèle de cinétique plasma-vibrationnelle de près de 500 réactions. En considérant indépendamment les niveaux vibrationnels de  $N_2$  et  $CO_2$ , il a explicitement évalué les émissions optiques de  $CO_2$  à 63, 68 et 78 km d'altitude. Ce modèle simulait

l'effet chimique du passage de la tête d'un *streamer* à une altitude donnée, phénomène appelé *pulse*, d'une durée fixée à 5  $\mu$ s. Cette hypothèse correspond donc à la partie basse des *sprites*, composée d'une multitude de *streamers* qui se propagent principalement vers le bas. Le maximum d'émission était atteint 1 ms après le passage de la tête de *streamer* à 63 km, et 10 ms à 68 et 78 km. L'intensité du rayonnement augmentait de trois ordres de grandeur à 78 km et plus de six ordres de grandeur à 63 km, mettant en évidence l'effet de la pression. La principale critique que l'on peut formuler à l'égard de ce modèle concerne la durée du *pulse*, de 5  $\mu$ s, constante avec l'altitude. La densité électronique atteinte à une altitude  $h$  suite au passage d'un *streamer* peut être décrite par une loi de similitude (Pasko et al. 1998), qui sera discutée plus en détail dans la section « 2.2.3 ». Au regard de cette loi, la quantité d'électrons trouvée par Gordillo-Vázquez (2008) est correcte à 63 km, mais sous-estimée à 68 et 78 km. Une durée de *pulse* variable permettrait d'atteindre la quantité d'électrons correcte à chaque altitude.

Siefring et al. (2010), proposent les premières images dans le proche infrarouge de *sprites* acquises lors de la campagne aéroportée EXL98 (*Energetics of upper atmospheric eXcitation by Lightning*). Le suivi des émissions *airglow* (OH), qui peuvent être utilisées comme traceurs de la propagation des ondes de gravité dans l'atmosphère, permet de mettre en évidence une corrélation entre ces ondes et la localisation des *sprites*. La caméra, utilisée auparavant pour l'étude des aurores, ne permet cependant pas de couvrir l'infrarouge moyen ni lointain.

Des spectres dans le proche infrarouge et le proche ultraviolet de *sprites* et de halos ont été calculés par Gordillo-Vázquez et al. (2012). Les auteurs ont ainsi montré que ces phénomènes peuvent être distingués par leur signature proche infrarouge à 1046 et 1231 nm (1PN<sub>2</sub>) même s'ils ont des spectres similaires dans le visible. Quatre altitudes d'observation différentes ont été étudiées : 3.25 km (montagne), 14 km (avion), 35 km (ballon) et depuis l'espace pour une visée au nadir. Ces différentes géométries ont montré que la signature proche IR et proche UV pourrait être observable depuis l'espace, mais aussi depuis des ballons ou même des avions. Ces travaux de simulation n'ont toutefois pas cherché à estimer la signature des *sprites* dans l'infrarouge moyen ou lointain.

Actuellement, les études les plus récentes sur les émissions IR des *sprites* sont issues des travaux de thèse de Parra Rojas (2015). Un modèle pseudo 1-D a été développé pour étudier la chimie et les effets thermiques d'un *streamer* dans la mésosphère. Son modèle cinétique est basé sur celui de Gordillo-Vázquez (2008) et est complété avec une chimie vibrationnelle de CO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> plus complexe. Les émissions de CO<sub>2</sub> à 4.26  $\mu$ m ont été estimées à 10 giga Rayleigh (GR) en dessous de 65 km d'altitude. Ces résultats suggèrent qu'il serait possible de détecter certaines émissions dans l'infrarouge thermique depuis l'espace ou depuis les airs. Cependant, ses travaux n'abordent pas les aspects de propagation du rayonnement qui permettraient de véritablement étudier la détectabilité de telles émissions.

### 1.5.3. Effets chimiques

Les NO<sub>x</sub> interviennent dans les réactions qui influencent la concentration d'ozone et du radical OH dans l'atmosphère (Rakov et Uman 2003). La quantification des différentes sources et puits de NO<sub>x</sub> est donc capitale à la compréhension du bilan chimique atmosphérique. Les éclairs sont connus pour en être des sources importantes dans la troposphère. Le rôle des TLEs dans la production de NO<sub>x</sub>, à plus haute altitude, est une question encore très ouverte (Pasko et al. 2012).

Différents travaux de simulation, réalisés en conditions nocturnes, ont tenté d'apporter des éléments de réponse à cette question. Peterson et al. (2009), réalisent des expériences de laboratoire afin d'étudier l'effet de décharges électriques sur la production de NO<sub>x</sub> dans l'atmosphère. Les expériences sont réalisées à différentes pressions représentatives des altitudes auxquelles on rencontre les *blue jets* et les *sprites*. De cette façon, ils proposent une estimation de  $6.8 \times 10^{23}$  à  $6.3 \times 10^{27}$  molécules de NO<sub>x</sub> produites par *sprite*. En se basant sur le taux d'occurrence global estimé par Ignaccolo et al. (2006), la production de NO<sub>x</sub> par les *sprites* est donc comprise entre  $7 \times 10^{23}$  et  $2 \times 10^{28}$  molécules par seconde, soit  $5.2 \times 10^{-1}$  à  $14 \times 7$  Tg (téragramme) de NO<sub>x</sub> par an. Cependant, cette estimation, accompagnée d'une incertitude de 5 ordres de grandeur, est ensuite critiquée par Nijdam et al. (2010). Les auteurs pointent différentes erreurs et maladresses telles que le type de décharge utilisé pendant l'expérimentation, l'application grossière de certaines lois de similarité, une confusion entre *streamer* et *sprite*, une surestimation de la durée du *sprite* ou encore des erreurs de calcul dans la mise à l'échelle des résultats. Peterson et al. (2010), répondent par la suite à chacune de ces critiques. Ils reconnaissent une erreur de calcul qui ne change pas le résultat fondamental de leur étude, à savoir que les *sprites* et *blue jets* contribuent de façon négligeable à la production de NO<sub>x</sub>, et mentionnent une incompréhension entre communautés de chimistes et de physiciens. La même année, Rodger et al. (2008), confirment l'absence d'effets significatifs des *sprites* sur le bilan global des NO<sub>x</sub> en étudiant les mesures de GOMOS (*Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars*), à bord d'ENVISAT (*ENVironment SATellite*). Enell et al. (2008) utilisent un modèle plasma-cinétique et les valeurs de champ électrique issues d'observations ISUAL pour estimer une production de NO<sub>x</sub> de  $5.5 \times 10^{-5}$  à  $5.5 \times 10^{-4}$  Tg par an. D'autres estimations sont proposées par Sentman et al. (2008). Avec leur modèle de *streamer*, ils estiment la production de NO<sub>x</sub> à  $5 \times 10^{19}$  molécules par *streamer*. Arnone et al. (2014), considèrent qu'un *sprite* est composé de 4500 *streamers*. On obtient alors une estimation de l'ordre de  $2 \times 10^{23}$  molécules par *sprite*. Le modèle plasma-cinétique de Gordillo-Vázquez (2008), conduit à une augmentation de la concentration de moins d'un ordre de grandeur pour NO et NO<sub>2</sub> contre 3 ordres de grandeur pour NO<sub>3</sub>, à 63 km d'altitude. Hiraki et al. (2008), toujours d'après un modèle de *streamer*, montrent que les NO<sub>x</sub> (NO et NO<sub>2</sub>) produits peuvent persister pendant environ une heure à 60 km d'altitude.

Les *sprites* sont également à l'origine d'autres espèces chimiques à plus ou moins longue durée de vie. Sentman et Stenbaek-Nielsen (2009), simulent la chimie-plasma d'un *streamer* et étudient les concentrations de différentes espèces à la suite du passage de la tête, dans le canal du *streamer*. Ils obtiennent une augmentation des espèces électroniques O(<sup>3</sup>P), O(<sup>1</sup>D) et N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) d'un facteur 2 par rapport aux concentrations de fond, d'un facteur 3 pour O<sub>2</sub>(a<sup>1</sup>Δ<sub>g</sub>), et d'un facteur 5 pour l'oxygène atomique. Gordillo-Vázquez (2008), suit un ensemble de 77 espèces chimiques et étudie l'impact de l'humidité de l'air. Il démontre que 4 ppm d'H<sub>2</sub>O peuvent affecter le comportement des anions CO<sub>4</sub><sup>-</sup>. Il conclut que l'effet de cette même perturbation n'est pas significatif sur les NO<sub>x</sub>.

#### 1.5.4. Futures missions et expérience HALESIS

Deux missions dédiées à l'observation des TLEs ont été ou sont sur le point d'être lancées. ASIM (*Atmospheric-Space Interaction Monitor*), projet de l'Agence Spatiale Européenne (ESA, *European Space Agency*) est un observatoire déployé sur l'ISS (International Space Station). La mission est dédiée à l'étude des TLEs et flashes gamma terrestres. ASIM est composée d'un jeu de 4 caméras à bande étroite dans le visible et 4 photomètres en visée au limbe, ainsi qu'un capteur de rayons X, 2 caméras, et 2 photomètres en visée au nadir (Neubert et al. 2006). Le lancement a été

effectué en avril 2018 dans le cadre de la mission SpaceX CRS<sup>7</sup>-14. TARANIS<sup>8</sup> (*Tool for the Analysis of Radiations from lightNings and Sprites*) est un micro-satellite du CNES (Centre National d'Etudes Spatiales). Son objectif principal est d'étudier les transferts impulsifs d'énergie entre l'atmosphère de la Terre et l'environnement spatial (Farges et al. 2017). Elle devrait être lancée entre fin 2019 et fin 2020. D'autres missions, dont l'objectif principal n'est pas l'observation de TLEs, pourraient cependant apporter des informations intéressantes puisqu'elles effectueront des mesures de la stratosphère et mésosphère. On peut citer ALTIUS (*Atmospheric Limb Tracker for The Investigation of the Upcoming Stratosphere*), première mission spatiale belge pour l'étude de l'atmosphère terrestre. Son objectif est de mesurer les principaux composants atmosphériques avec une résolution verticale inférieure à 1 km, et une résolution horizontale améliorée grâce à l'imagerie hyperspectrale (Dekemper et al. 2014). L'expérience sera embarquée à bord d'une plateforme de type PROBA (*PRoject for On-Board Autonomy*), microsatellite à faible coût.

Certains TLEs comme les *blue jets* et les *gigantic jets* pourraient être accessibles pour des mesures in situ en utilisant des ballons. Cependant, cette stratégie reste très aléatoire puisqu'il est particulièrement difficile de voler directement au-dessus des orages et que la probabilité que le ballon se trouve dans la région d'atmosphère perturbée par le TLE lorsqu'il se produit est très faible. De plus, l'altitude maximale de vol étant de 45 km environ, il serait très difficile d'acquérir des mesures pour les *sprites*, dont les *streamers* ne descendent pas toujours jusqu'à cette altitude, et impossible pour les *halos* et ELVES, trop hauts (Croize et al. 2015).

Le projet HALEGIS, pour *High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro imagery*, propose l'alternative de réaliser des mesures de télédétection depuis un ballon stratosphérique. Le vol sous ballon a en effet différents avantages. Le coût, d'abord, ne représente qu'une fraction de ce qu'une mission satellite peut représenter. Ensuite, un ballon peut atteindre plus de deux fois l'altitude maximale d'un avion. Cette altitude permet de se trouver au-delà de la troposphère et donc de limiter l'absorption par la vapeur d'eau. De plus, la distance entre l'observateur et le phénomène est réduite.

L'objectif d'HALEGIS est de mesurer les luminances atmosphériques infrarouges localement perturbées par un TLE, dans les instants qui suivent la partie visible du phénomène. Cela permettra, en utilisant des méthodes d'inversion, d'estimer la perturbation chimique, c'est-à-dire la production de différentes espèces par le phénomène, ainsi que la perturbation sur la chimie vibrationnelle, c'est-à-dire l'effet sur la répartition des niveaux d'énergie vibrationnels d'une espèce. La réussite de l'expérience sera conditionnée par l'acquisition de données fiables, spatialement et spectralement résolues des effets des TLEs.

Couplée à un instrument de type spectro-imageur basé sur le principe de spectroscopie par transformée de Fourier (*Fourier transform in the infrared*, FTIR), cette méthode présente plusieurs avantages. Les images hyperspectrales acquises permettront de distinguer latéralement les spectres d'une région perturbée (pixels au centre de l'image) avec ceux de l'atmosphère de fond (pixels en périphérie de l'image). En retirant le spectre perturbé au spectre de fond, on obtiendra ce qu'on appelle la signature. En balayant l'image verticalement, on pourra également obtenir une information sur la distribution de cette signature en fonction de l'altitude.

L'instrumentation sera intégrée dans une nacelle dont le pointage sera géré par une centrale inertielle pour s'assurer que la visée de la caméra reste verrouillée dans la direction souhaitée, là où a lieu le TLE. Dans un premier temps, la nacelle sera prépointée dans la direction d'un orage. Ensuite, une caméra panchromatique à basse lumière sera utilisée afin de détecter le TLE et affiner le

---

<sup>7</sup> *Commercial Resupply Service*.

<sup>8</sup> Taranis est un dieu de la mythologie celtique gauloise, associé au ciel et aux orages.

pointage pour placer le phénomène au centre du champ de vue du spectro-imageur (Croize et al. 2015). Ceci pourra être réalisé en moins d'une seconde après détection. L'objectif sera alors d'acquérir une série de cubes d'images. Cette procédure sera répétée autant de fois que possible et pilotée par un PC (*Personal Computer*) embarqué. De la petite instrumentation de type sondes de température, de pression, GPS (*Global Positioning System*), sera également embarquée. Davantage de précisions sur la mission et l'instrumentation envisagée seront présentées dans la section « 5.5 ».

La principale plateforme envisagée pour la mission HALESIS est de type ballon stratosphérique ouvert (BSO). Les BSOs sont des ballons à gaz dont l'enveloppe est ouverte sur l'extérieur par des manches d'évacuation qui permettent l'équilibre entre la pression du gaz et la pression atmosphérique (Figure 17).



Figure 17 – Gonflage d'un ballon stratosphérique ouvert à Kiruna (©CNES/N. Journo).

Ces ballons sont les moins chers et les plus utilisés pour les vols de quelques heures à quelques jours. Leurs dimensions sont très variables et ils peuvent embarquer quelques dizaines de kilos à deux tonnes jusqu'à une altitude maximale de 45 km. Les nacelles et chaînes de vol sont très généralement récupérées en fin d'expérience. Davantage de détails sont donnés sur le site du Centre National d'Études Spatiales (CNES, <https://ballons.cnes.fr>).

Une alternative envisagée est l'utilisation d'un nouveau type de plateforme, appelé *High-Altitude Pseudo Satellite* (HAPS), dont on peut citer l'exemple de Stratobus™ (Figure 18). Stratobus™ devra voler à 20 km d'altitude et pourra embarquer 250 kg de charge utile. Sa dimension sera de 100 mètres de longueur pour 33 mètres de diamètre maximal (Figure 18). Sa durée de vie dans la stratosphère est estimée à 5 ans avec une maintenance et mise à jour de la charge utile annuelle, en étant exclusivement alimenté par énergie solaire. Le projet a pour objectif de faire voler un démonstrateur en 2020, à 20 km d'altitude, soit au-dessus de la zone réservée au trafic aérien et au-dessus du *jet stream*. La plateforme aura différents objectifs civils et militaires : télécommunication, observation, surveillance (Baurreau et al. 2015).

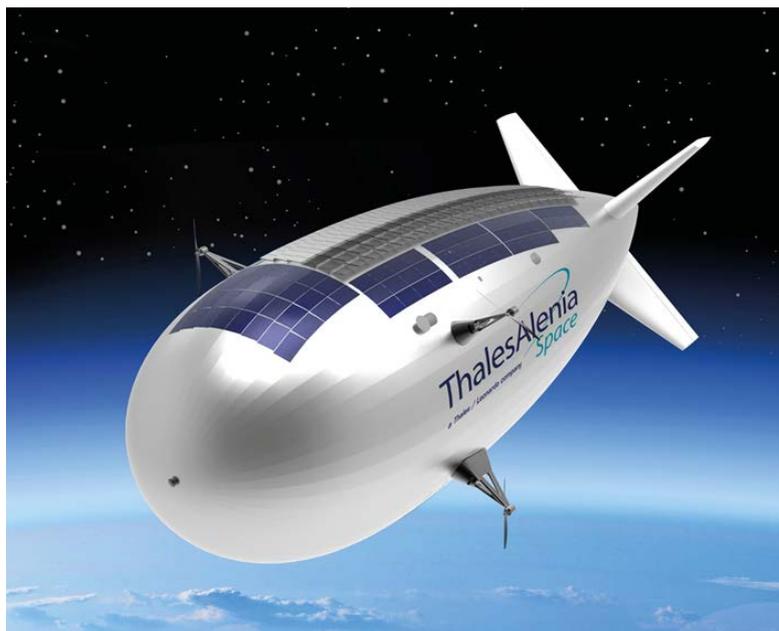


Figure 18 – Illustration d'un Stratobus™ (©Thales Alenia Space).

## 1.6. Bilan du premier chapitre

On a vu que les éclairs de type -CG sont les plus fréquents des CG (~ 90 %) et que les *sprites* sont déclenchés principalement par des éclairs de type +CG. De plus, les *sprites* positifs sont beaucoup plus fréquents que les *sprites* négatifs (< 1 %). Le seuil de *Charge Moment Change* pour le déclenchement d'un *sprite* est, selon l'état de la basse ionosphère, d'environ 200 C.km, et la durée du flash visible associé est comprise entre ~ 20 et ~ 140 ms.

La région entre 40 et 70 km d'altitude des *sprites* est principalement composée de *streamers*, que l'on peut définir comme des ondes d'ionisation filamenteuses, dont la plupart sont descendants et de polarité positive. Les *streamers* forment des filaments de plasma froid, où l'agitation des électrons est très grande devant celle des espèces chimiques. D'après les données de l'expérience ISUAL, l'énergie moyenne des électrons dans les têtes des *streamers* est de 6.2 à 9.2 eV, et le champ électrique entre 243 et 443 Td. Leur déclenchement nécessite une pré-ionisation du milieu, qui peut être causée par le champ électrique des orages, les rayons cosmiques, des ondes de gravité, ou même des entrées de météores.

Quelques centaines à quelques milliers de *sprites* se produiraient chaque jour à l'échelle du globe. Les principales émissions radiatives des *sprites* correspondent au premier et second système positif de N<sub>2</sub>, au premier système négatif de N<sub>2</sub><sup>+</sup>, et, dans une moindre mesure, aux bandes de Meinel. Dans l'infrarouge, des émissions à 4.26 μm pourraient être causées par l'excitation vibrationnelle de N<sub>2</sub>, puis au transfert de vibration vers CO<sub>2</sub>, ces émissions pourraient durer plusieurs dizaines de secondes. Du point de vue chimie atmosphérique, selon les auteurs, les *sprites* produiraient de 5.5 × 10<sup>-5</sup> à 14.7 Tg de NO<sub>x</sub> par an.

Enfin, on a vu que le projet HALESIS aura pour but d'enregistrer les luminances atmosphériques infrarouges perturbées par un TLE, depuis une plateforme stratosphérique dans les instants qui suivent le flash visible, afin de remonter à la perturbation chimique. La plateforme envisagée pour cette mission est de type BSO. Les HAPS peuvent présenter une alternative. La mission embarquera une caméra pour la détection des TLEs, un spectro-imageur pour l'acquisition de cubes hyperspectraux. Le pointage sera géré par une centrale inertielle. Le tout sera piloté par un PC embarqué qui devra gérer l'ensemble de la séquence d'acquisition.



## 2. Description du modèle développé pour la simulation de la signature infrarouge consécutive à un sprite

Comme présentés dans l'introduction générale, les deux principaux objectifs sont de calculer la perturbation sur les niveaux d'énergie vibrationnels des molécules causée par un *sprite*, et de caractériser l'évolution temporelle de la signature infrarouge consécutive, selon la position de l'observateur. La stratégie mise en place pour répondre à ces objectifs est présentée en Figure 19.

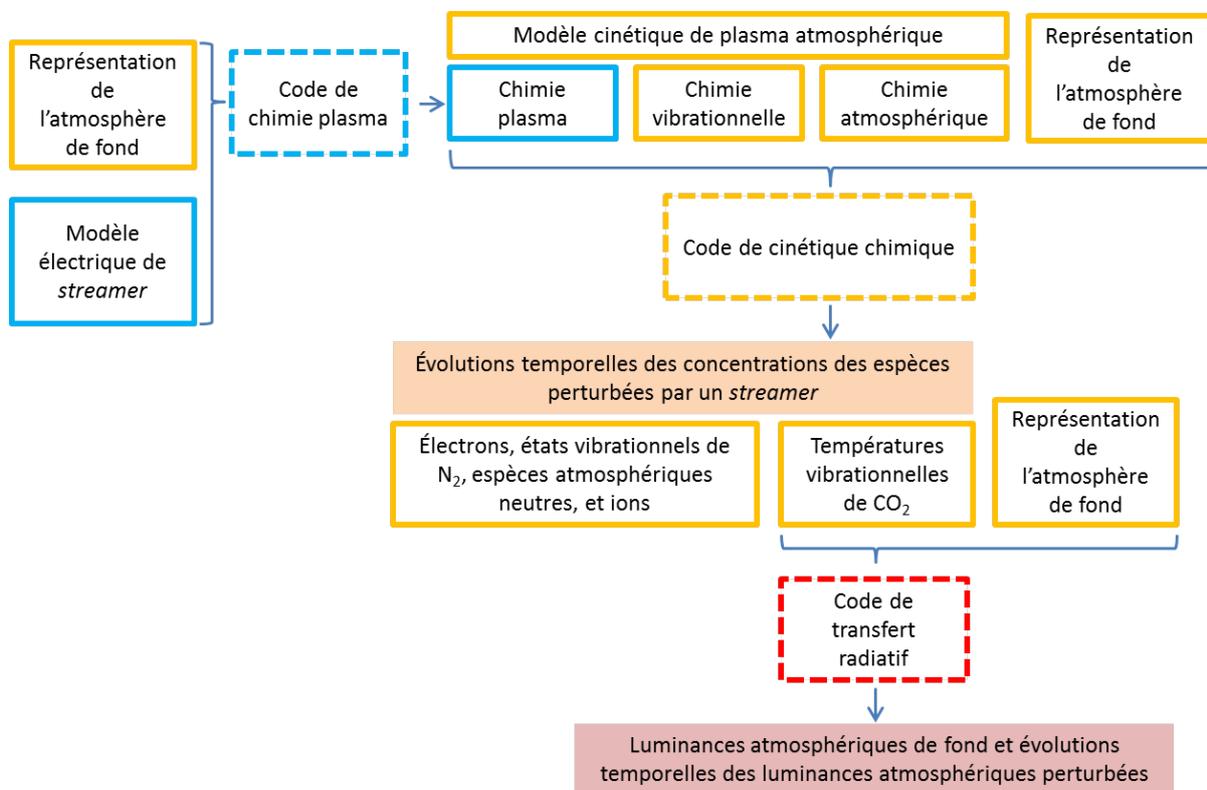


Figure 19 – Représentation schématique du modèle utilisé pour la simulation de la signature infrarouge d'un *sprite*. En bleu, les aspects qui relèvent de la physico-chimie des plasmas, en jaune, des aspects liés à la chimie et à la cinétique chimique, en rouge, du transfert radiatif. Le modèle fait intervenir 3 codes, un code de chimie des plasmas, un code de cinétique chimique, et un code de transfert radiatif.

On a vu dans l'état de l'art que les émissions visibles sont issues de l'excitation électronique de certaines espèces ( $N_2$  principalement) par les électrons produits lors de la propagation des *streamers*. De la même façon, il pourrait exister des émissions infrarouges associées à l'excitation des niveaux vibrationnels de  $CO_2$  et, indirectement, aux niveaux vibrationnels de  $N_2$  (voir « 1.5.2.4 Rayonnement infrarouge »). Le rayonnement consécutif aux *sprites* s'explique donc par l'émission issue de la désexcitation de niveaux énergétiques dont les populations s'écartent de l'équilibre thermodynamique local, concept qui sera défini par la suite (voir « 2.1.2 »). Pour décrire ces

populations, il est indispensable de considérer les niveaux énergétiques individuellement et de suivre l'évolution temporelle de leurs concentrations à la suite de la perturbation électrique d'un *streamer*.

Pour cela, nous avons développé un modèle cinétique qui prend à la fois en compte la chimie des plasmas, c'est-à-dire les interactions entre électrons et les différentes espèces atmosphériques, la chimie vibrationnelle, pour décrire la population des espèces excitées qui jouent un rôle dans les émissions infrarouges, et la chimie des états électroniques, pour évaluer les émissions visibles, bien connues, et s'en servir pour valider le modèle. Une fois l'évolution temporelle des populations des espèces qui rayonnent dans l'infrarouge calculée (les états vibrationnels de CO<sub>2</sub>), on peut s'en servir pour évaluer la perturbation radiative associée, et la propager à travers l'atmosphère jusqu'à des observateurs situés au sol, en vol (dans la troposphère ou la stratosphère), ou encore dans l'espace.

Afin de décrire le modèle développé, on présente d'abord la construction d'une représentation de l'atmosphère non perturbée, que l'on appellera également atmosphère de fond. Ensuite, on décrit le modèle cinétique de *streamer* utilisé et l'outil de simulation sélectionné. Enfin, on décrit la méthode pour simuler un *sprite* et le code de transfert radiatif utilisé.

## 2.1. Représentation de l'atmosphère de fond

La modélisation cinétique de phénomènes électriques atmosphériques nécessite d'adopter une représentation de l'atmosphère de fond. On choisit des conditions atmosphériques nocturnes standard : minuit heure locale, à 45 ° de latitude, 0 ° de longitude. Des profils verticaux de concentrations moyennes estivales (période la plus favorable aux orages) sont utilisés pour définir l'abondance des différents constituants atmosphériques. Pour la description des températures, on utilise un profil vertical qui correspond aux moyennes sur cette même période. Les conditions nocturnes sont nécessaires afin de s'affranchir des effets du soleil<sup>9</sup>.

### 2.1.1. Description de la composition atmosphérique de fond

Les profils atmosphériques de concentration des principales molécules et atomes sont issus du *Whole Atmosphere Community Climate Model* (WACCM, (Marsh et al. 2013)) et nous sont fournis par le *National Center for Atmospheric Research* (NCAR). WACCM est un modèle atmosphérique qui traite les aspects chimiques, dynamiques et radiatifs de l'atmosphère terrestre depuis la surface jusqu'à la thermosphère. Les espèces pour lesquels les profils verticaux de concentrations nous sont fournis sont CO, CO<sub>2</sub>, H, H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, HO<sub>2</sub>, N, N<sub>2</sub>O, NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, O, O<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, et OH. De plus, on inclut l'argon en adoptant un rapport de mélange (rapport entre la concentration d'une espèce et la concentration totale) constant de 10<sup>-2</sup> et l'on considère que le reste est constitué de diazote (~ 78 %, selon l'altitude). Les profils verticaux des concentrations de toutes ces espèces sont présentés en Figure 20 :

---

<sup>9</sup> Dans le projet HALESIS, la détection des TLEs sera réalisée de nuit.

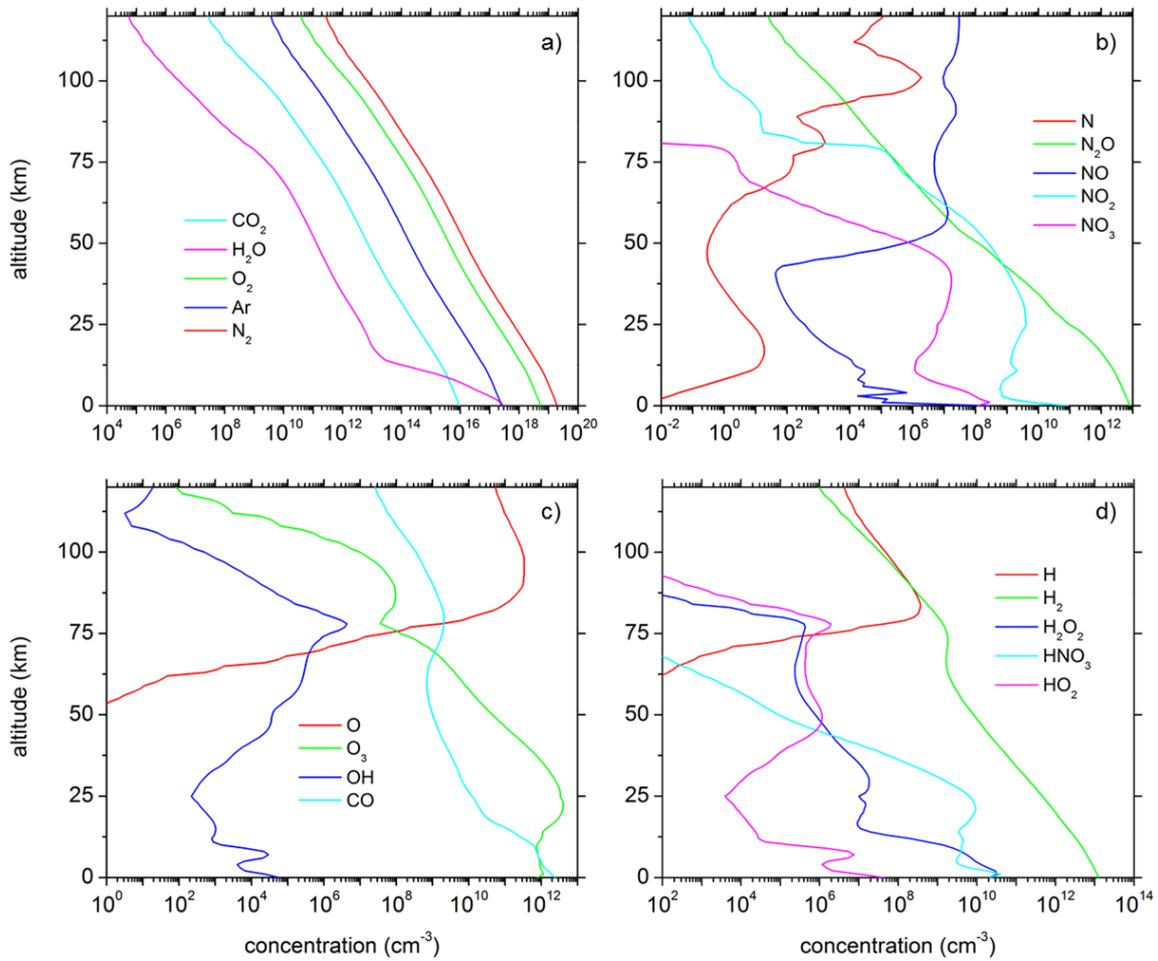


Figure 20 – Profils de concentration des espèces incluses dans la représentation de l’atmosphère de fond. En a), on retrouve les principaux composants, en b), les composés azotés, en c), les composés oxygénés, et en d), les composés hydrogénés.

Le profil de température utilisé, également issu de WACCM, est présenté en Figure 21.

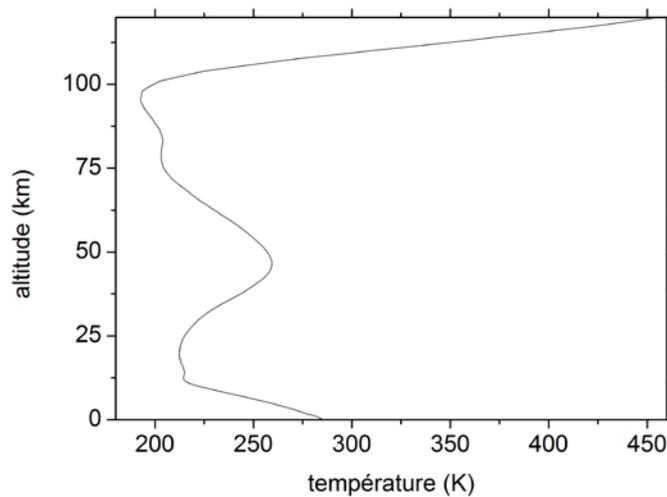


Figure 21 – Profil de température associé à la représentation chimique de l’atmosphère de fond.

Comme discuté en section « 1.5 », pour déclencher un *sprite*, il est nécessaire qu'une certaine quantité d'électrons soit initialement présente. Dans les publications sur la modélisation des *streamers*, on les appelle « *seed electrons* », ou « *patch* ». On utilise le profil de Hu et al. (2007) (Figure 22), qui décroît exponentiellement avec l'altitude.

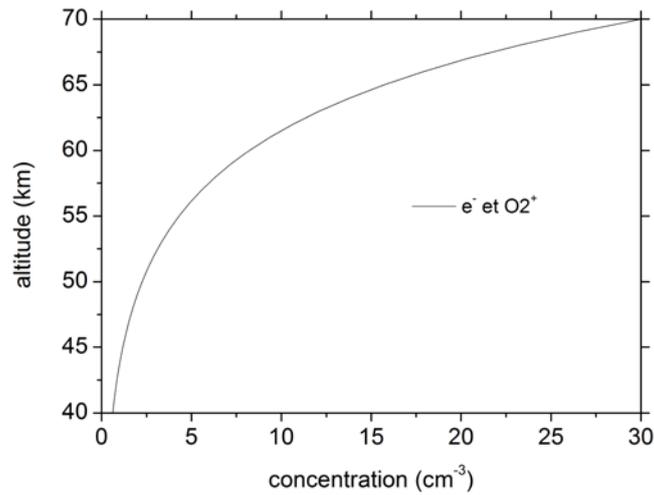


Figure 22 – Profil de concentration initiale en électrons de Hu et al. (2007), utilisé avec la représentation de l'atmosphère de fond.

On définit un profil d' $O_2^+$ , identique à celui des électrons, afin que la charge globale de l'atmosphère soit neutre (Équation 1).

$$\sum_j n_j^+ = n_e + \sum_k n_k^-, \quad \text{Équation 1}$$

Avec :

- $n_j^+$  le nombre total d'ions positifs,
- $n_e$  le nombre d'électrons,
- $n_k^-$  le nombre d'ions négatifs.

## 2.1.2. Hypothèse d'initialisation de la concentration des états excités à l'équilibre thermodynamique local

### 2.1.2.1. États électroniques et vibrationnels inclus dans le modèle

Nous incluons une série de niveaux électroniques et vibrationnels (Tableau 1, Tableau 2, et Tableau 3) à la description de l'atmosphère de fond. Leur présence est cruciale puisque ceux-ci sont

responsables des principales émissions dans l’ultraviolet, le visible et l’infrarouge, de l’atmosphère soumise à un *sprite*. Dans ce manuscrit, les niveaux électroniques seront mentionnés avec leur notation simplifiée (Tableau 1, colonne du milieu). La valeur d’énergie seuil, donnée pour chaque espèce, correspond à l’énergie à apporter à l’état fondamental pour qu’il puisse atteindre cet état excité.

Niveau	Notation simplifiée	Énergie seuil (eV)
$N_2(A^3\Sigma_u^+)$	$N_2(A3)$	6.17
$N_2(a^1\Pi_g)$	$N_2(a1)$	8.55
$N_2(a'^1\Sigma_u^-)$	$N_2(a'1)$	8.4
$N_2(B^3\Pi_g)$	$N_2(B3)$	7.35
$N_2(C^3\Pi_u)$	$N_2(C3)$	11.03
$N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$	$N_2^+(B2S)$	18.8
$Ar(^3P)$	$Ar(3P)$	1.15
$O_2(a^1\Delta_g)$	$O_2(a1D)$	0.977
$O_2(b^1\Sigma_g^+)$	$O_2(b1S)$	1.627
$O(^1D)$	$O(1D)$	1.968
$O(^1S)$	$O(1S)$	4.192
$N(^2P)$	$N(2P)$	10.7
$N(^2D)$	$N(2D)$	12.4
$NO(A^2\Sigma^+)$	$NO(A2S)$	5.48

Tableau 1 – Principaux niveaux électroniques à l’origine de rayonnement visible, UV, et proche infrarouge, lors de phénomènes lumineux transitoires.

Pour une molécule diatomique, comme le  $N_2$ , il n’y a qu’un seul mode de vibration, qu’on appelle élongation (ou *stretching*). Le Tableau 2 présente l’énergie seuil associée aux 8 premiers niveaux d’excitation vibrationnelle de  $N_2$ .

Niveau	Énergie seuil (eV)
$N_2(v_1)$	0.291
$N_2(v_2)$	0.59
$N_2(v_3)$	0.88
$N_2(v_4)$	1.17
$N_2(v_5)$	1.47
$N_2(v_6)$	1.76
$N_2(v_7)$	2.06
$N_2(v_8)$	2.35

Tableau 2 – Niveaux vibrationnels de diazote inclus dans la représentation de l’atmosphère de fond.

On choisit d'inclure les 8 premiers niveaux seulement car, à notre connaissance, il n'existe pas de modèle cinétique de chimie vibrationnelle capable de décrire l'ensemble des interactions qui font intervenir des niveaux d'énergie plus élevés. Les aspects cinétiques seront décrits par la suite, dans la section « 2.2 ».

Comme elle est à l'origine du rayonnement infrarouge issu des *sprites* (voir « 1.5.2.4 »), la molécule de CO<sub>2</sub> nous intéresse tout particulièrement. Elle est symétrique et linéaire. Son centre de symétrie correspond à l'atome de carbone et elle ne possède pas de moment dipolaire permanent. Elle a 4 modes de vibration : élongation symétrique ( $\nu_1$ ), déformation d'angle dans le plan (aussi appelé pliage,  $\nu_2$ ), élongation antisymétrique ( $\nu_3$ ), et déformation d'angle hors du plan. Seuls les 3 premiers possèdent un moment dipolaire, et sont donc actifs dans l'infrarouge. Les différents types de notation que l'on peut trouver dans la littérature pour désigner ces niveaux sont donnés dans le Tableau 3, ainsi que l'énergie seuil associée.

Notation Herzberg	Notation HITRAN	Notation simplifiée CO <sub>2</sub> ( $\nu_1, \nu_2, \nu_3$ )	Énergie seuil (eV)
CO <sub>2</sub> (01 <sup>1</sup> 0)	CO <sub>2</sub> (01101)	CO <sub>2</sub> (010)	0.083
CO <sub>2</sub> (10 <sup>0</sup> 0)	CO <sub>2</sub> (10001)	CO <sub>2</sub> (100)	0.167
CO <sub>2</sub> (00 <sup>0</sup> 1)	CO <sub>2</sub> (00011)	CO <sub>2</sub> (001)	0.291

Tableau 3 – Niveaux vibrationnels de dioxyde de carbone inclus dans la représentation de l'atmosphère de fond.

### 2.1.2.2. Transitions énergétiques associées aux états électroniques et vibrationnels inclus dans le modèle

Les principales transitions électroniques à l'origine de rayonnement dans le visible, proche ultraviolet et proche infrarouge, dans le cadre de phénomènes électriques atmosphériques, sont données dans le Tableau 4 :

Dénomination	Abréviation	Niveau supérieur	Niveau inférieur
Premier système positif de N <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> (1PG) ou 1PN <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> (B <sup>3</sup> Π <sub>g</sub> )	N <sub>2</sub> (A <sup>3</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> )
Second système positif de N <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> (2PG) ou 2PN <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> (C <sup>3</sup> Π <sub>u</sub> )	N <sub>2</sub> (B <sup>3</sup> Π <sub>g</sub> )
Premier système négatif de N <sub>2</sub> <sup>+</sup>	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (1NG) ou 1NN <sub>2</sub> <sup>+</sup>	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (B <sup>2</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> )	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (X <sup>2</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> )
Bande de Meinel	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (M)	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (A <sup>2</sup> Π <sub>u</sub> )	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (X <sup>2</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> )
Bande de Vegard-Kaplan	N <sub>2</sub> (VK)	N <sub>2</sub> (A <sup>3</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> )	N <sub>2</sub> (X <sup>1</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> )
Premier système négatif d'O <sub>2</sub> <sup>+</sup>	O <sub>2</sub> <sup>+</sup> (1NG)	O <sub>2</sub> <sup>+</sup> (b <sup>4</sup> Σ)	O <sub>2</sub> <sup>+</sup> (X <sup>2</sup> Π <sub>g</sub> )
Bande de Lyman-Birge-Hopfield	N <sub>2</sub> (LBH)	N <sub>2</sub> (a <sup>1</sup> Π <sub>g</sub> )	N <sub>2</sub> (X <sup>1</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> )
Bande NO gamma	NO-γ	NO(A <sup>2</sup> Σ <sup>+</sup> )	NO(X <sup>2</sup> Π)

Tableau 4 – Principales transitions électroniques à l’origine de rayonnement visible, UV, et proche infrarouge, lors de phénomènes lumineux transitoires.

Les principales transitions vibrationnelles de CO<sub>2</sub> à l’origine de rayonnement dans l’infrarouge moyen et lointain sont données dans le Tableau 5 :

Transition	Nombre d’onde (cm <sup>-1</sup> )	Longueur d’onde (μm)
CO <sub>2</sub> (001) → CO <sub>2</sub> (100) + hv <sub>1</sub>	1063	9.41
CO <sub>2</sub> (001) → CO <sub>2</sub> (000) + hv <sub>2</sub>	2347	4.26
CO <sub>2</sub> (100) → CO <sub>2</sub> (010) + hv <sub>3</sub>	719	13.9
CO <sub>2</sub> (010) → CO <sub>2</sub> (000) + hv <sub>4</sub>	671	14.9

Tableau 5 – Principales transitions vibrationnelles du dioxyde de carbone à l’origine de rayonnement infrarouge.

### 2.1.2.3. Concept d’équilibre thermodynamique local

Les concentrations initiales de ces niveaux (électroniques et vibrationnels) sont définies selon une statistique de Maxwell-Boltzmann. On fait l’hypothèse de l’équilibre thermodynamique local (ETL, Équation 2).

$$n_E = n_0 \frac{g_E}{g_0} \exp\left(\frac{-E}{k_b T}\right) \quad \text{Équation 2}$$

Avec :

- $E$  l’énergie d’un niveau, en J,
- $n_E$  la concentration d’un niveau excité  $E$ , en cm<sup>-3</sup>,

- $n_0$  la concentration de l'état fondamental, en  $\text{cm}^{-3}$ ,
- $g_E$  et  $g_0$  les dégénérescences (nombre d'états de même énergie) respectives, sans dimension,
- $k_b$  la constante de Boltzmann,  $1.38064852 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$
- $T$  la température cinétique, en K.

La température cinétique correspond à la vitesse quadratique moyenne des particules. On l'exprime à partir de l'expression (Équation 3) :

$$\frac{3}{2} k_b T = \frac{1}{2} m \overline{v^2} \quad \text{Équation 3}$$

Avec :

- $m$  la masse de la particule, en Kg,
- $\overline{v^2}$  la vitesse quadratique moyenne de ces particules, en  $(\text{m/s})^2$ .

L'équilibre thermodynamique local (ETL) est un concept particulièrement utilisé dans les sciences de l'atmosphère. On peut le définir de la façon suivante : de nuit, à basse altitude, et dans des conditions standard de température, les phénomènes de collision entre molécules sont presque exclusivement responsables de la population de leurs niveaux excités. Il existe des phénomènes d'absorption et d'émission de rayonnement, mais ceux-ci sont peu importants par rapport aux collisions. On peut donc négliger la contribution du rayonnement pour décrire la population des niveaux excités des molécules. C'est une situation d'ETL. Ces populations suivent une distribution de Maxwell-Boltzmann (Équation 2). Le rapport entre la concentration d'une espèce excitée et la concentration de son état fondamental peut s'exprimer en termes de gains et pertes par collisions (Équation 4) :

$$\frac{[M^*]}{[M]} = \frac{Pc}{Lc} \quad \text{Équation 4}$$

Avec :

- $M^*$  la concentration de l'état vibrationnellement excité,
- $M$  la concentration de l'état fondamental,
- $Pc$  et  $Lc$  les termes de production et perte de  $M^*$  par collisions.

On peut considérer que l'ETL est valide jusqu'à plusieurs dizaines de kilomètres d'altitude. Au-delà, entre 50 et 150 kilomètres environ, les effets radiatifs deviennent généralement importants et les collisions ne suffisent plus à expliquer correctement les populations des niveaux excités. On parle de non-équilibre thermodynamique local (NETL). En conditions nocturnes, les principaux effets radiatifs sont le pompage couche à couche, c'est-à-dire l'absorption et la réémission de rayonnement d'une couche d'atmosphère à une autre, et le pompage lié au rayonnement infrarouge terrestre ascendant. En conditions dites « NETL », les phénomènes radiatifs et collisionnels doivent être pris en compte pour décrire les populations énergétiques des espèces (Équation 5) :

$$\frac{[M^*]}{[M]} = \frac{(Pc + J)}{(Lc + A)} \quad \text{Équation 5}$$

Avec :

- $J$  le pompage radiatif causé par le rayonnement de la surface de la Terre, de l'atmosphère et du Soleil (si conditions diurnes),
- $A$  le terme de pertes radiatives (émission spontanée et stimulée, concepts définis en « 2.2.2.1 »).

À plus haute altitude, au-delà de 150 km, les collisions se font rares, jusqu'à devenir négligeables. Il suffit alors de connaître les processus radiatifs (absorption, émission) pour décrire les populations des niveaux excités. On appelle cette situation l'équilibre radiatif (Équation 6) :

$$\frac{[M^*]}{[M]} = \frac{J}{A} \quad \text{Équation 6}$$

Admettons que l'on mesure la concentration d'un niveau excité sans savoir si l'on se trouve dans une situation où l'ETL est valable ou non. À partir de la statistique de Maxwell-Boltzmann (Équation 2), on peut exprimer la température d'un niveau excité ( $T^*$ ) en fonction de son énergie, de sa concentration, de celle de l'état fondamental, de leurs degrés de dégénérescences respectives, et de la constante de Boltzmann (Équation 7) :

$$T^* = \frac{-E}{k_b \ln \left( \frac{n_E g_0}{n_0 g_E} \right)} \quad \text{Équation 7}$$

Avec :

- $E$  l'énergie d'un niveau, en J,
- $n_E$  la concentration d'un niveau excité  $E$ , en  $\text{cm}^{-3}$ ,
- $n_0$  la concentration de l'état fondamental, en  $\text{cm}^{-3}$ ,
- $g_E$  et  $g_0$  les dégénérescences (nombre d'états de même énergie) respectives, sans dimension,
- $k_b$  la constante de Boltzmann,  $1.38064852 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$
- $T$  la température cinétique, en K.

Si un niveau énergétique est à l'ETL, alors sa température  $T^*$  est égale à la température cinétique  $T$ . La différence entre  $T^*$  et  $T$  indique l'amplitude de la déviation par rapport à l'ETL. Dans des conditions standard, la molécule de  $\text{N}_2$  ne dévie pas de l'ETL. Pour le  $\text{CO}_2$ , par contre, au-delà de 40 km, la température des niveaux excités n'est plus strictement égale à celle du niveau fondamental. Afin d'estimer cette déviation à l'ETL, on peut comparer le profil de température cinétique avec les profils de température vibrationnelle de chacun des niveaux vibrationnels de  $\text{CO}_2$  de López-Puertas

et Taylor (2001). Pour les niveaux (010) et (100) l'écart n'excède jamais quelques dixièmes de degrés. On considère que l'hypothèse de l'ETL est satisfaisante. Pour le niveau (001) cet écart atteint 1 K à 70 km (Figure 23).

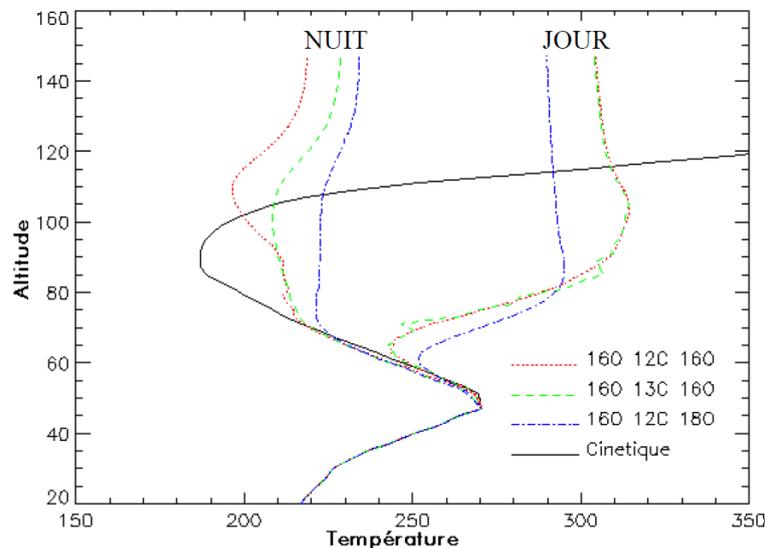


Figure 23 – Profils de températures cinétique et vibrationnelles pour les trois principaux isotopes de CO<sub>2</sub>(001), de jour et de nuit. On remarque que, en conditions nocturnes, la déviation à l'ETL est mineure jusqu'à 70 km d'altitude (Castelain 2000).

Cette différence reste modeste et nous choisissons de conserver la population de ce niveau à l'ETL. Cette hypothèse simplificatrice permet de s'affranchir d'un couplage chimie – radiatif qui nécessiterait une étape de modélisation supplémentaire complexe.

La représentation de l'atmosphère de fond décrite dans cette section va permettre d'alimenter le modèle cinétique présenté dans la prochaine (« 2.2 »), et le modèle de transfert radiatif, présenté en « 2.3 ».

## 2.2. Sélection et adaptation d'un modèle cinétique pour la simulation de phénomènes électriques dans l'atmosphère terrestre

### 2.2.1. Descriptions des réactions pour la simulation de plasmas atmosphériques

Nous avons choisi d'adopter une approche cinétique des *streamers* pour simuler la chimie consécutive à un *sprite*. Une représentation de la composition atmosphérique de fond a donc été

construite afin de définir les conditions initiales de cette simulation. Nous allons maintenant définir un ensemble de réactions pour décrire les différents types d'interactions qui peuvent se produire dans un plasma atmosphérique. Distinguons les interactions en quatre grandes familles :

- La chimie des plasmas, qui va décrire l'ensemble des échanges d'énergie entre électrons et autres espèces : atomes, molécules et ions. Parmi ces interactions, on a l'ionisation, l'excitation, la recombinaison, l'attachement, la dissociation. Ces interactions peuvent également être combinées (Tableau 6).
- On a ensuite la cinétique des niveaux énergétiques électroniques et vibrationnels. La partie vibrationnelle étant capitale ici puisque nous cherchons à caractériser la signature infrarouge des *sprites*, qui dépendra des populations de certains niveaux vibrationnels en particulier. On peut distinguer les processus de type Vibration – Translation (V-T), échanges d'énergie cinétique et vibrationnelle, une forme de *quenching* donc, et les échanges Vibration – Vibration (V-V). La cinétique vibrationnelle est étroitement liée à la chimie des plasmas puisque les électrons vont influencer la population des niveaux vibrationnels (Tableau 6).
- Dans une troisième catégorie, on rassemble la chimie des espèces neutres, dans leur état fondamental, ainsi que la chimie ionique. Cette chimie permettrait d'évaluer la production par les *sprites* de molécules telles que les NO<sub>x</sub> ou NO<sup>+</sup>. Cet aspect ne sera pas traité dans ce manuscrit.
- Enfin, on trouve les processus radiatifs, qui sont généralement utilisés pour caractériser l'émission spontanée des espèces excitées. Ces processus nous permettront également de placer le plasma en condition initiale d'équilibre radiatif.

Ionisation	$A + e^- \rightarrow A^+ + e^- + e^-$
Excitation par impact	$A + e^- \rightarrow A^* + e^-$
Recombinaison	$A^+ + e^- \rightarrow A$
Attachement	$A + e^- \rightarrow A^-$
Dissociation	$AB + e^- \rightarrow A + B + e^-$
Ionisation dissociative	$AB + e^- \rightarrow A^+ + B + e^- + e^-$
Recombinaison dissociative	$AB^+ + e^- \rightarrow A + B$
Attachement dissociatif	$AB + e^- \rightarrow A^- + B$
Détachement associatif	$A^- + B \rightarrow AB + e^-$
Détachement collisionnel	$A^- + B^* \rightarrow A + B + e^-$
Recombinaison ion-ion	$A^- + B^+ \rightarrow A + B$
Transfert de charge	$A^+ + B \rightarrow A + B^+$
Transfert d'énergie	$A^* + B \rightarrow A + B^*$
<i>Quenching</i>	$A^{**} + B \rightarrow A^* + B$
Substitution	$AB + C \rightarrow AC + B$
Processus radiatifs	$A + h\nu \leftrightarrow A^*$

Tableau 6 – Les différents types de réactions dans un modèle cinétique de plasma atmosphérique. Les symboles (\*) et (\*\*) désignent des états excités.

Dans la littérature, on trouve plusieurs modèles cinétiques qui modélisent ces différents types de réactions. Certains ont même déjà été utilisés pour la simulation des TLEs. Le modèle de Kossyi et al. (1992) comprend environ 450 réactions, interactions électrons-molécules et chimie de l'azote et de l'oxygène confondus. L'excitation des niveaux électroniques de N<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> y est décrite, mais le schéma ne tient pas compte de l'excitation vibrationnelle des espèces. Le modèle cinétique de Sentman et al. (2008) comprend plus de 80 espèces chimiques et 800 réactions. Il inclut de nombreuses espèces neutres, états fondamentaux et électroniques, anions et électrons, ainsi que de nombreux cations. Pour ce qui est de la chimie vibrationnelle, il considère les 4 premiers niveaux de N<sub>2</sub>, mais aucun de CO<sub>2</sub>. Le modèle cinétique de Gordillo-Vázquez (2008) comprend près de 500 réactions pour 77 espèces. Comme les modèles cités précédemment, il décrit l'excitation électronique de différentes espèces (N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, NO, O, N, Ar), mais aussi l'excitation vibrationnelle de N<sub>2</sub> et de CO<sub>2</sub> (8 premiers niveaux pour N<sub>2</sub> et premier niveau de chaque mode actif dans l'infrarouge pour CO<sub>2</sub>).

Nous choisissons de fonder le modèle cinétique que nous utiliserons sur ce dernier. Il manque cependant certains processus vibrationnels de types V-V et V-T qui peuvent influencer significativement la concentration des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>, et donc les émissions infrarouges qui y sont liées. Nous les trouvons dans la thèse de Parra-Rojas (2015). Le modèle contient au total plus de 700 réactions et est une mise à jour de celui de Gordillo-Vázquez (2008). À des fins de simplicité et de stabilité numérique, nous choisissons de ne pas inclure le jeu de réactions correspondant à la chimie de la vapeur d'eau (une centaine de réactions). La concentration en eau est en effet très faible au-delà de la tropopause (voir Figure 20).

En résumé, le modèle cinétique que nous utilisons comprend 423 réactions. Avec les numérotations des publications originales, celles-ci sont :

- Les 1 à 366 et 476 à 486 de Gordillo-Vázquez (2008),
- les processus V-V 544, 556, 571 à 578 de Parra-Rojas (2015),
- Les processus V-T 453, 459, 468, 472, 475, 485, 488, 498, 501, 511, 514, 539 de Parra-Rojas (2015).

L'ensemble des réactions utilisées est listé dans l'annexe « 7.2 ». L'ensemble des espèces associées est récapitulé dans le Tableau 7.

Neutres fondamentaux	Neutres excités	Anions et électrons	Cations
CO, CO <sub>2</sub> , H, H <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, N, N <sub>2</sub> O, NO, NO <sub>2</sub> , NO <sub>3</sub> , O, O <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , Ar, N <sub>2</sub> , OH	N <sub>2</sub> (A <sup>3</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> ), N <sub>2</sub> (a <sup>1</sup> Π <sub>g</sub> ), N <sub>2</sub> (a <sup>1</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>-</sup> ), N <sub>2</sub> (B <sup>3</sup> Π <sub>g</sub> ), N <sub>2</sub> (C <sup>3</sup> Π <sub>u</sub> ), Ar( <sup>3</sup> P), O <sub>2</sub> (a <sup>1</sup> Δ <sub>g</sub> ), O <sub>2</sub> (b <sup>1</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> ), O( <sup>1</sup> D), O( <sup>1</sup> S), N( <sup>2</sup> P), N( <sup>2</sup> D), NO(A <sup>2</sup> Σ <sup>+</sup> ), N <sub>2</sub> (v <sub>1</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>2</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>3</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>4</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>5</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>6</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>7</sub> ), N <sub>2</sub> (v <sub>8</sub> ), CO <sub>2</sub> (010), CO <sub>2</sub> (100), CO <sub>2</sub> (001)	e <sup>-</sup> , O <sup>-</sup> , O <sub>2</sub> <sup>-</sup> , O <sub>3</sub> <sup>-</sup> , NO <sup>-</sup> , NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , H <sup>-</sup> , OH <sup>-</sup> , CO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , CO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (B <sup>2</sup> Σ <sub>u</sub> <sup>+</sup> ), N <sub>2</sub> <sup>+</sup> , N <sub>4</sub> <sup>+</sup> , O <sup>+</sup> , O <sub>2</sub> <sup>+</sup> , O <sub>3</sub> <sup>+</sup> , O <sub>4</sub> <sup>+</sup> , NO <sup>+</sup> , NO <sub>2</sub> <sup>+</sup> , N <sub>2</sub> O <sup>+</sup> , N <sub>2</sub> O <sub>2</sub> <sup>+</sup> , H <sub>2</sub> O <sup>+</sup> , Ar <sup>+</sup>

Tableau 7 – Liste des 64 espèces considérées dans le modèle cinétique.

On peut noter que certaines espèces (les ions) dont on n'a pas intégré les profils de concentration à la représentation de l'atmosphère de fond (« 2.1 ») sont présentes dans le modèle cinétique. En conditions standard nocturnes, en moyenne atmosphère, leurs concentrations sont quasi nulles, on a

donc fait l'hypothèse qu'il n'y en a pas<sup>10</sup>. Par la suite, lorsque nous ferons référence à des réactions, nous utiliserons la numérotation de l'annexe « 7.2 », et non celle des publications originales.

## 2.2.2. Constantes de réaction associées

Les réactions d'un modèle cinétique s'accompagnent de constantes de vitesse. Pour les réactions de type chimie des états électroniques et vibrationnels, chimie ionique, et chimie des espèces neutres à l'état fondamental, la constante de vitesse peut être exprimée par une constante, ou bien dépendre de la température du gaz ( $T_g$ ). Les expressions et paramètres d'ajustement utilisés pour ces réactions sont recensés dans l'annexe « 7.2 ». Le cas des interactions électrons – molécules (chimie des plasmas), et des processus radiatifs est traité différemment. On présente d'abord la méthode de calcul des constantes de vitesse pour les processus radiatifs, puis celle pour la chimie des plasmas.

### 2.2.2.1. Cas des processus radiatifs

Le modèle cinétique comprend des processus radiatifs d'émission spontanée. Ces phénomènes émettent des photons et permettent de dépeupler et peupler certains niveaux par phénomène de cascade radiative : un niveau de haute énergie, lorsqu'il émet spontanément un photon, se retrouve dans un état d'énergie inférieure. Cet effet est à prendre en compte afin de décrire plus précisément l'évolution des populations des états d'énergie électroniques et vibrationnels inclus dans le modèle. La probabilité qu'une transition radiative ait lieu, à une certaine longueur d'onde, est donnée par le coefficient d'Einstein généralement noté « A ».

Dans des conditions atmosphériques nocturnes standard, les niveaux excités de certaines molécules, dont l'énergie seuil est assez basse, peuvent être peuplés dans des proportions importantes. C'est le cas, par exemple, des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>. En prenant en compte l'émission spontanée dans le modèle, phénomène beaucoup plus rapide que celui de collision, la concentration de ces niveaux décroît jusqu'à tendre vers zéro. Le modèle n'est donc pas équilibré. Cette perte radiative doit être contrebalancée. On calcule alors un autre coefficient, qui correspond à l'absorption. Ceci permet de s'assurer que, en condition non perturbée, le modèle est dans un équilibre chimique et collisionnel, mais également radiatif. Par ailleurs, on ne s'intéresse pas au comptage des photons, ceux-ci ne sont pas considérés comme une espèce à part entière du modèle. Il n'y a pas de couplage chimie – radiatif pendant la phase cinétique.

Pour placer les états vibrationnels de CO<sub>2</sub> en équilibre radiatif, on introduit donc le coefficient d'Einstein d'absorption, mais aussi celui d'émission spontanée (ou induite). À partir de là, on peut calculer ce qu'on appelle l'équilibrage détaillé (*detailed balancing*, ou principe de microréversibilité). Notons le coefficient d'Einstein de l'émission spontanée  $A_{21}$ , pour le rendre plus explicite. L'indice « 21 » indique le passage d'un état excité « 2 » à un état excité « 1 » de moindre énergie, avec émission de photon. Le coefficient de l'absorption se note alors  $B_{12}$ , l'absorption d'un photon permet de passer d'un état « 1 » à un état « 2 », de plus haute énergie. Enfin, le coefficient d'émission

---

<sup>10</sup> À l'exception d'O<sub>2</sub><sup>+</sup>, espèce utilisée pour imposer la neutralité de l'atmosphère suite à l'introduction d'un profil vertical d'électrons

induite se note  $B_{21}$ . L'émission induite correspond à l'émission d'un photon provoquée par un photon incident (phénomène utilisé pour la conception de lasers). Avec le coefficient  $A_{21}$  (que l'on trouve dans la littérature), on peut calculer les deux autres coefficients à partir des relations suivantes :

$$\frac{A_{21}}{B_{21}} = F(\nu) \quad \text{Équation 8}$$

$$\frac{B_{21}}{B_{12}} = \frac{g_1}{g_2} \quad \text{Équation 9}$$

Avec :

- $g_1$  et  $g_2$  les dégénérescences du niveau bas et haut respectivement.

Et :

$$F(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \quad \text{Équation 10}$$

Avec :

- $h$  la constante de Planck, en J.s,
- $\nu$  la différence d'énergie entre les deux niveaux, en J,
- $c$  la vitesse de la lumière, en m/s.

On peut associer à chacun de ces coefficients une constante de vitesse  $K_{A_{21}}$ ,  $K_{B_{21}}$  et  $K_{B_{12}}$  que l'on exprime sous la forme :

$$K_{A_{21}} = A_{21} \quad \text{Équation 11}$$

$$K_{B_{21}} = B_{21}\rho(\nu, T) = A_{21} \frac{1}{F(\nu)}\rho(\nu, T) \quad \text{Équation 12}$$

$$K_{B_{12}} = B_{12}\rho(\nu, T) \quad \text{Équation 13}$$

Avec :

$$\rho(\nu, T) = F(\nu) \frac{1}{e^{h\nu/k_b T} - 1} \quad \text{Équation 14}$$

Comme cette étape nous sert uniquement à équilibrer émission et absorption, et qu'on ne s'intéresse ni au nombre ni à l'énergie des photons émis, on admet que :

$$K_{\text{émission}} = K_{A_{21}} + K_{B_{21}} \quad \text{Équation 15}$$

Ces coefficients sont dépendants de l'altitude puisqu'ils sont dépendants de la température cinétique de fond.

## 2.2.2.2. Interactions entre électrons et espèces atmosphériques

L'énergie des électrons contenus dans un plasma est dépendante du champ électrique, et la réactivité chimique du milieu dépend de l'énergie des électrons. Il est alors nécessaire de caractériser le chauffage des électrons pour ensuite calculer les coefficients de l'ensemble des réactions qui les font intervenir (Tableau 6).

### 2.2.2.2.1. Caractérisation de la distribution d'énergies des électrons

De façon générale, les constantes de vitesse des processus électroniques ne sont donc pas directement disponibles dans la littérature. Leur estimation nécessite de résoudre l'équation de transport de Boltzmann (Équation 16) qui permet de calculer la distribution d'énergie des électrons (Figure 25) dans un plasma froid, faiblement ionisé, soumis à un champ électrique :

$$\left( \frac{\partial}{\partial t} + \frac{eE(t)}{m_e} \nabla_v \right) f(v, t) = \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{collisions}} \quad \text{Équation 16}$$

Avec :

- $f(v, t)$  la fonction de distribution des électrons, en  $eV^{-3/2}$ , à la vitesse  $v$ , à un temps  $t$ , dont l'énergie correspond à  $\varepsilon = 1/2mv^2$  en J,
- $e$  la charge de l'électron, en C,
- $m_e$  sa masse, en Kg,
- $E$  le champ électrique, en V/m,
- $\nabla_v$  le gradient de vitesse.

On caractérise les échanges d'énergie entre électrons et espèces chimiques à l'aide de sections efficaces, grandeurs historiquement utilisées en physique des particules. Elles sont une expression de la probabilité d'interaction entre une particule et une cible. Leur dimension est celle d'une surface. Dans le cadre de la chimie des plasmas atmosphériques, la particule est l'électron, et la cible peut

être une molécule, un atome ou un ion. Il existe différents types d'interactions et donc différents types de sections efficaces associées. Une collision élastique n'entraîne pas de changement d'énergie interne, l'énergie cinétique est donc conservée. Au contraire, lors d'une collision inélastique, l'énergie cinétique n'est pas conservée, une partie est convertie en énergie interne.

Le transfert total de moment entre électron et cible correspond à ce qu'on appelle « section efficace effective ». C'est-à-dire la probabilité totale d'interaction entre particule et cible. Les sections efficaces effectives doivent être prises en compte dans le calcul de la distribution d'énergie des électrons afin de considérer l'énergie totale cédée par les électrons aux atomes, molécules et ions. Les sections efficaces effectives des principaux composants atmosphériques sont représentées en Figure 24.

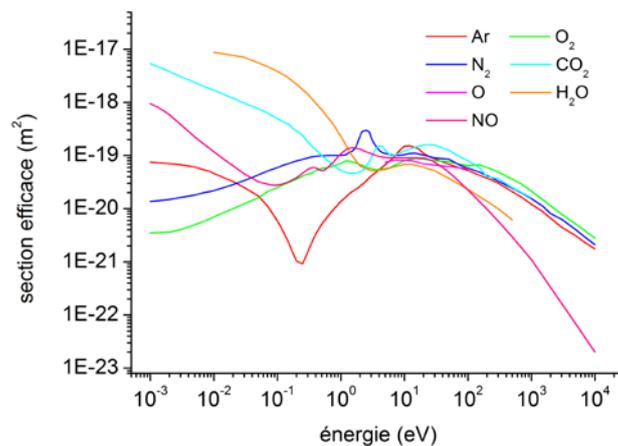


Figure 24 – Sections efficaces effectives utilisées dans le modèle ([www.lxcat.net](http://www.lxcat.net)).

Les électrons sont aussi soumis à des interactions avec les autres électrons. Celles-ci peuvent affecter la répartition d'énergie. Dans le cas des *sprites*, plasma faiblement ionisé, cet effet est mineur<sup>11</sup> et ce type d'interaction sera négligé par la suite.

Nous choisissons de résoudre l'équation pour une gamme de champs électriques réduits ( $E/N$ , champ électrique divisé par la concentration en espèces neutres) compris entre 5 et 500 Townsends ( $1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ V.m}^2$ ). Cette gamme couvre la valeur du champ quasi électrostatique entretenu au-dessus des nuages d'orages, voir Picard et al. (1997), et celle du champ intense local au sein des têtes de *streamers*, voir les sections «1.5.2.4» et «1.5.1.2».

Les distributions d'énergie des électrons (EEDF, *electron energy distribution function*) calculées pour des champs électriques réduits de 30 et 400 Td sont tracées en Figure 25. Ces valeurs correspondent à des champs typiques qui seront utilisés par la suite comme valeurs nominales (voir « 2.2.3 »).

<sup>11</sup> Cette hypothèse a été vérifiée à l'aide du code utilisé pour réaliser les calculs des paramètres plasma. Au niveau de précision de ce code, il n'y a aucune différence entre un calcul où les interactions de Coulomb sont considérées et un autre où elles ne le sont pas. La référence de ce code est donnée en fin de section.

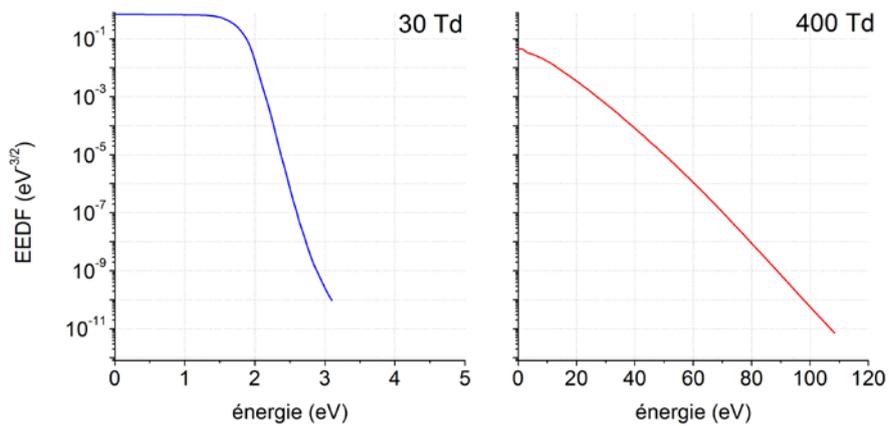


Figure 25 – Exemples de distributions d'énergie des électrons pour des champs électriques réduits de 30 Td, à gauche, et de 400 Td, à droite. À 30 Td, la densité plasma (rapport entre concentration en électron et concentration en espèces neutres) est inférieure à  $10^{-5}$  ppb (*part per billion*), à 400 Td, elle est approximativement de 10 ppb.

Les EEDF présentées, qui seront utilisées par la suite, sont stationnaires<sup>12</sup>. On les note  $f_0$ . À partir de  $f_0$ , on peut calculer l'énergie moyenne des électrons  $\langle \varepsilon \rangle$  :

$$\langle \varepsilon \rangle = \int_0^{\infty} \varepsilon^{3/2} f_0 d\varepsilon \quad \text{Équation 17}$$

Avec :

- $\varepsilon$  l'énergie des électrons, en eV.

L'énergie moyenne des électrons en fonction d'E/N est présentée en Figure 26.

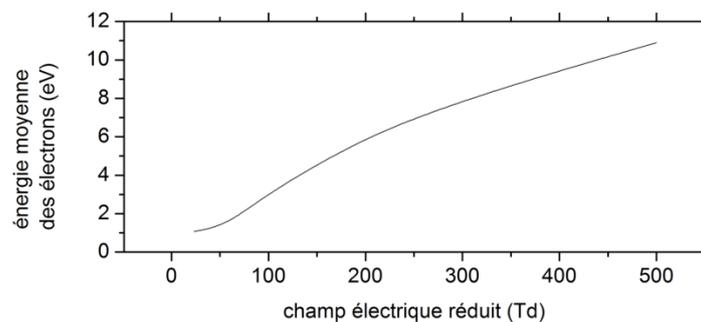


Figure 26 – Énergie moyenne des électrons entre 5 et 500 Td.

<sup>12</sup> Cette hypothèse est discutée par Gordillo-Vazquez (2010), et en section « 2.2.3 ».

À 30 et 400 Td, on trouve respectivement  $\langle \varepsilon \rangle = 0.900$  et  $9.435$  eV. Cette énergie moyenne peut également être exprimée comme une « température » électronique ( $T_e$ , en eV) :

$$T_e = \frac{2}{3} \langle \varepsilon \rangle \quad \text{Équation 18}$$

#### 2.2.2.2.2. Calcul des constantes de réaction de la chimie des plasmas

La constante de vitesse des processus électroniques peut s'exprimer de deux façons :

- L'une est dite «  $T_e$ -dépendante »,
- l'autre, « EEDF-dépendante ».

Les coefficients des réactions 53 à 97 (annexe « 7.2.1 ») s'expriment en fonction de la température électronique ( $T_e$ ) :

$$k(T_e) = aT_e^b e^{-c/T_e} \quad \text{Équation 19}$$

Avec :

- $a$ ,  $b$  et  $c$  des paramètres d'ajustement. Ces paramètres et leurs références sont donnés dans l'annexe « 7.2 ».

Lorsqu'on ne dispose pas des paramètres d'ajustement nécessaires à ce type d'approximation, on calcule  $k$  en fonction de  $f_0$  :

$$k(f_0) = \gamma \int_0^{\infty} \varepsilon \sigma_k f_0 d\varepsilon \quad \text{Équation 20}$$

Avec :

- $\gamma = \left(\frac{2e}{m_e}\right)^{1/2}$ , en  $\text{C}^{1/2}\text{Kg}^{-1/2}$ ,
- $\sigma_k$  la section efficace du processus considéré, en  $\text{m}^2$ .

La connaissance des constantes de vitesse de l'ensemble des processus qui font intervenir les électrons permet de calculer les fréquences totales d'ionisation (Équation 21) et d'attachement (Équation 22) réduites, en fonction d'E/N :

$$\frac{\nu_{ionis}}{N} = \gamma \int_0^{\infty} \sum_{k-ionis} x_k \varepsilon \sigma_k f_0 d\varepsilon \quad \text{Équation 21}$$

$$\frac{\nu_{attach}}{N} = \gamma \int_0^{\infty} \sum_{k-attach} x_k \varepsilon \sigma_k f_0 d\varepsilon \quad \text{Équation 22}$$

Avec :

- $\nu_{ionis}$  la fréquence totale d'ionisation, en  $\text{cm}^3/\text{s}$ ,
- $\nu_{attach}$  la fréquence totale d'attachement, en  $\text{cm}^3/\text{s}$ ,
- $N$  la concentration en espèces neutres, en  $\text{cm}^{-3}$ ,
- $k - ionis$  les constantes de vitesse d'ionisation,
- $k - attach$  les constantes de vitesse d'attachement,
- $x_k$  la concentration de l'espèce avec laquelle l'électron interagit, en  $\text{cm}^{-3}$ .

Ces fonctions sont présentées en Figure 27.

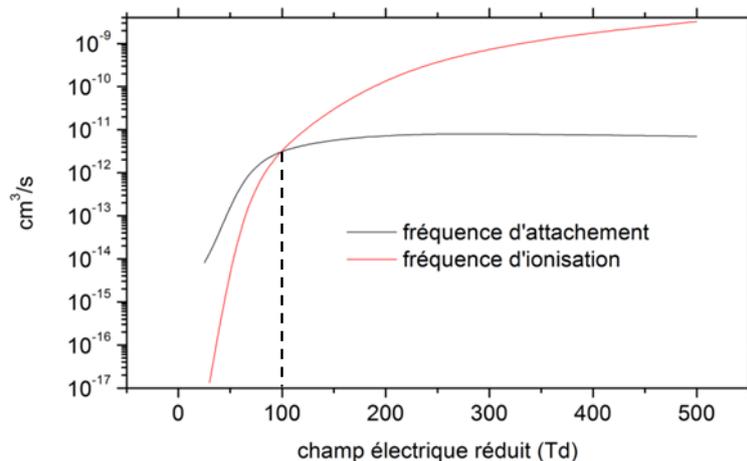


Figure 27 – Fréquences totales d'ionisation et d'attachement entre 5 et 500 Td.

On constate qu'en dessous de 100 Td, la fréquence d'attachement est supérieure à celle d'ionisation. Au-delà, c'est l'inverse. Cela signifie qu'en dessous de 100 Td, on bouleverse faiblement l'équilibre alors qu'au-delà il y a divergence du nombre d'électrons produits (avalanche électronique).

Les sections efficaces de l'ensemble des processus dont la constante de vitesse est fonction de l'EEDF ( $f_0$ ) sont présentées en annexe « 7.3 », en Figure 94 et Figure 95. Leurs références sont indiquées dans le tableau des réactions, en annexe « 7.2.1 », dédiée aux interactions entre électrons et espèces atmosphériques.

De plus, on prend en compte le sens inverse des différents types de collisions. La prise en compte du sens inverse des collisions prend de l'importance lorsque la population d'un état excité est élevée. On qualifie les collisions qui ont lieu à la fois en sens direct et inverse, de superélastiques. Dans

l'annexe « 7.2 », on écrit ces réactions avec une flèche double ( $\leftrightarrow$ ). On peut calculer leurs coefficients inverses à l'aide d'une section efficace inverse, ou bien avec l'équation :

$$k^{inv} = \gamma(g^{low}/g^{up})_k \int_0^{\infty} \sigma(\varepsilon + U_k)^2 f_0(\varepsilon) d\varepsilon \quad \text{Équation 23}$$

Avec :

- $\sigma$  la section efficace du processus direct, en  $m^2$ ,
- $k^{inv}$  la constante de vitesse de la réaction inverse du processus superélastique, en  $cm^3/s$ ,
- $g^{low}$  et  $g^{up}$  les dégénérescences des niveaux d'énergie inférieurs et supérieurs respectivement, sans dimension,
- $U_k$  l'énergie seuil du processus collisionnel, en eV.

L'ensemble des opérations décrites dans cette section est réalisé avec le solveur d'équation de Boltzmann BOLSIG+ version 03/2016 (Hagelaar et Pitchford 2005). Toutes les espèces, réactions et constantes de vitesses décrites dans les sections « 2.1 » et « 2.2 », constituent le modèle cinétique que nous utiliserons. Les conditions qui seront appliquées à ce modèle, afin de s'en servir pour simuler un *streamer*, sont décrites dans la section suivante.

### 2.2.3. Modèle électrique de streamer

Le modèle décrit dans les sections précédentes est un modèle de chimie des plasmas. Ce type de modèle est utilisé dans des domaines aussi différents que l'étude des décharges électriques, les entrées atmosphériques (météores, engins spatiaux), les lasers, la purification de l'eau... (Fridman 2008). Pour faire d'un modèle cinétique de plasma un modèle de *sprite*, on lui applique des conditions électriques particulières.

Notre approche consiste à considérer un *sprite* comme un ensemble de *streamers*. Ce qui est particulièrement juste dans la région des *streamers*, entre 40 et 70 km. On choisit de modéliser la cinétique d'un *streamer* positif descendant, cas le plus répandu (voir section «1.5.1»), et pratiquement exclusif à ces altitudes.

Selon l'altitude, un *streamer* positif descendant a un diamètre typiquement compris entre la dizaine et la centaine de mètres. De même, sa vitesse est de l'ordre de  $10^7$  m/s (voir la section «1.5.1.2»). Considérons une parcelle d'atmosphère située à une altitude donnée, entre 40 et 70 km. Lorsque le *streamer* se propage, il met un temps de l'ordre de la  $\mu s$  pour traverser cette parcelle. L'atmosphère est donc sous l'influence du champ électrique de la tête du *streamer* pendant cette même durée. On appelle cette phase le *pulse*. C'est l'approche utilisée par Gordillo-Vázquez (2008) et Sentman et al. (2008) notamment. Gordillo-Vázquez (2008), modélise le passage de la tête du *streamer* à une altitude donnée comme l'application d'un champ électrique constant (de 400 Td) pendant une durée de 5  $\mu s$  (fonction porte). Il utilise cette même durée sur les trois altitudes étudiées : 63, 68, et 78 km. Sentman et al. (2008), appliquent un champ électrique temporellement variable (fonction Gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de 10 ms), et réalisent leurs calculs à une seule altitude,

de 70 km. Dans chacun de ces deux cas, le passage de la tête du *streamer* a pour premier effet d'ioniser l'atmosphère, créant une certaine quantité d'électrons qui interagissent ensuite avec les autres espèces. Cette quantité d'électrons constitue un paramètre critique et fera l'objet d'une attention particulière lors de la discussion des résultats.

La simulation de *streamers* en laboratoire, à une pression de  $\sim 1000$  hPa (une atmosphère, que l'on notera 1 atm), montre que la densité électronique suite au passage de la tête ( $e_0$ ) est toujours de l'ordre de  $10^{14}$   $\text{cm}^{-3}$  (Liu et Pasko 2004 ; Raizer et al. 1998). De plus, il a été montré que cette densité électronique, à une altitude  $h$ , est proportionnelle au carré du rapport entre densité moléculaire à l'altitude zéro et à cette altitude (Pasko et al. 1998) :

$$e_h \propto \left(\frac{N_h}{N_0}\right)^2 \quad \text{Équation 24}$$

Avec :

- $e_h$  la concentration en électrons à l'altitude  $h$ ,
- $N_h$  la concentration en espèces neutres à cette même altitude,
- $N_0$  la concentration en espèces neutres à l'altitude zéro.

En multipliant par la condition à l'altitude zéro ( $e_0$ ) on a :

$$e_h = e_0 \cdot \left(\frac{N_h}{N_0}\right)^2 \quad \text{Équation 25}$$

À l'aide de cette relation, on peut calculer la quantité d'électrons qui doit être atteinte à chaque altitude (Figure 28) après passage d'une tête de *streamer*. Celle-ci varie, entre 40 et 70 km, de  $8.5 \times 10^8$  à  $2 \times 10^5$   $\text{e}^-/\text{cm}^3$  respectivement.

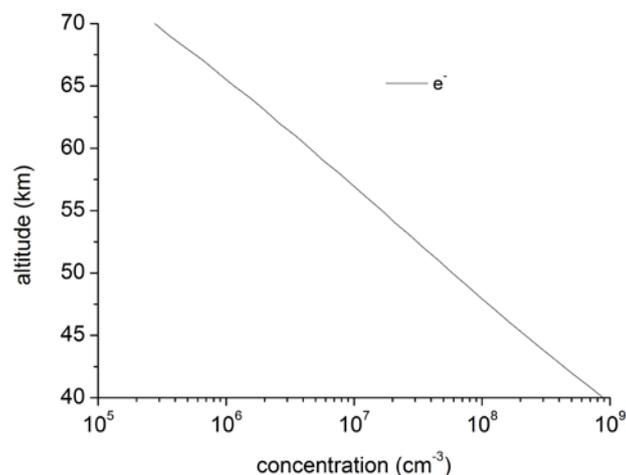


Figure 28 – Concentrations en électrons atteinte suite au passage de la tête d'un *streamer* en fonction de l'altitude.

Notre approche est basée sur celle de Gordillo-Vázquez (2008). Nous choisissons également d'appliquer un champ constant de  $400 \text{ Td}^{13}$  pendant le *pulse* car cette valeur est comprise dans la gamme des champs électriques réduits évalués à partir des données acquises par l'expérience ISUAL (voir section « 1.5.1.2 »). Cette valeur, pourvu qu'elle soit supérieure à la limite d'ionisation, est en fait peu importante puisque, dans le modèle utilisé ici, elle sert essentiellement à produire une quantité d'électrons connue par avance<sup>14</sup> (Figure 28).

Contrairement à Gordillo-Vázquez (2008), nous utilisons une durée de *pulse* variable selon l'altitude. On détermine le temps d'application du champ choisi nécessaire à la production de la quantité d'électrons prévue par la loi de similitude (Équation 25), et présentée en Figure 28. La durée du *pulse* à chaque altitude est donnée en Figure 29. Celle-ci varie de  $4 \times 10^{-7}$  à  $9 \times 10^{-6}$  s entre 40 et 70 km.

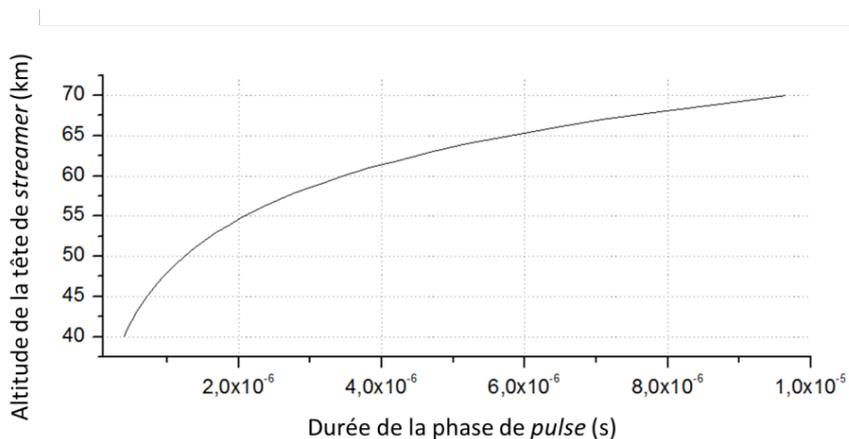


Figure 29 – Durée de passage de la tête de *streamer* (*pulse*) à une altitude donnée, en fonction de l'altitude, pour un champ électrique réduit de  $400 \text{ Td}$ .

La première phase de la simulation cinétique consiste donc à lancer la résolution du modèle de 423 réactions en présence d'un champ électrique réduit de  $400 \text{ Td}$ , pendant une durée de  $0,4$  à  $9 \mu\text{s}$  selon l'altitude (phase de *pulse*). Ensuite, le champ sera réduit à  $30 \text{ Td}$  jusqu'à la fin de la simulation, qui durera encore quelques centaines de secondes<sup>15</sup> (Figure 30). On choisit cette valeur car elle est nettement en dessous de la limite d'ionisation, elle permettra donc de consommer les électrons produits en phase de *pulse*. Ce champ est par ailleurs utilisé par Picard et al. (1997), pour décrire le champ quasi électrostatique entretenu au-dessus des nuages d'orages, et par Gordillo-Vázquez (2010) pour la même application que celle décrite ici. L'effet de la valeur de ce champ sera étudié à travers une analyse de sensibilité (voir chapitre « 4 »).

<sup>13</sup> On rappelle que l'on parle de champ électrique réduit ( $E/N$ ), constant en Townsend. Si on l'exprime en  $\text{V/m}$ , celui-ci varie avec l'altitude comme la concentration de l'atmosphère en espèce neutre.

<sup>14</sup> Si le principal objectif de cette étude était de caractériser les émissions visibles, il faudrait réaliser une analyse de sensibilité sur la valeur de ce champ pendant cette phase. Par exemple, en appliquant une variation basée sur les observations ISUAL.

<sup>15</sup> Les travaux présentés dans l'état de l'art, section « 1.5.2.4 », montrent que la signature infrarouge des *sprites* pourrait persister pendant plusieurs dizaines de secondes. On souhaite pouvoir couvrir cette durée.

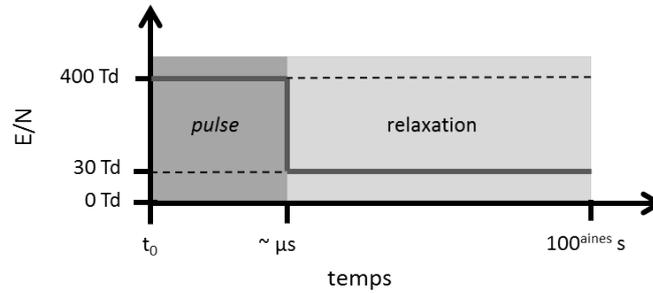


Figure 30 – Champ électrique réduit (E/N) en fonction du temps, pour les phases de *pulse* et de *relaxation*.

Le suivi des concentrations des espèces chimiques du modèle dans ces conditions électriques nous permettra de caractériser l'effet chimique du passage d'un *streamer* à une altitude donnée, pour les altitudes comprises entre 40 et 70 km, pendant quelques minutes après le *pulse* électrique.

## 2.2.4. Sélection d'un code pour la résolution du modèle cinétique

Le suivi de la concentration des différentes espèces incluses dans le modèle cinétique est permis par la résolution de l'Équation 26. La méthode est identique que l'on parle d'espèces dans leur état fondamental ou bien excitées (électroniquement ou vibrationnellement).

$$\frac{d[N_i]}{dt} = \sum_{j=1}^{j_{max}} Q_{ij}(t) \quad \text{Équation 26}$$

Avec :

- $N_i$  la concentration de l'espèce  $i$ , avec  $i = 1 \dots 64$ , par unité de volume,
- $t$  le temps, et  $dt$  le pas de temps,
- $Q_{ij}$  le terme source (gain ou perte) correspondant à chaque espèce et aux différentes réactions  $j = 1 \dots j_{max}$ .

Considérons par exemple une réaction impliquant les espèces  $A$ ,  $B$  et  $C$  :



Avec :

- $a$ ,  $b$ ,  $a'$  et  $c$  les nombres stœchiométriques des espèces  $A$ ,  $B$  et  $C$ .

Associée au taux de réaction  $R_j$  :

$$R_j = k_j[A]^a[B]^b \quad \text{Équation 28}$$

Avec :

- $k_j$  la constante de vitesse du processus  $j$ .

Les termes sources sont alors :

$$Q_A = (a' - a)R \quad \text{Équation 29}$$

$$Q_B = -bR \quad \text{Équation 30}$$

$$Q_C = cR \quad \text{Équation 31}$$

Il existe différents codes capables de résoudre de tels systèmes d'équations différentielles non linéaires dans le cadre de simulations en chimie atmosphérique. On peut citer, par exemple, MiPLaSMO (*MicroPhysical and Photochemical Lagrangian Stratospheric Model of Ozone*, décrit dans Riviere et al. (2000)), modèle Lagrangien développé au Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace (LPC2E), qui permet de calculer l'évolution chimique des principales espèces stratosphériques, ou encore REPROBUS (*REactive Process Ruling the Ozone BUdget in the Stratosphere*, décrit dans Lefevre et al. (1994)), code de chimie-transport à trois dimensions. Nos exigences ne nous permettent cependant pas d'utiliser ces outils. Nous avons besoin de pouvoir :

- prendre en compte autant d'espèces chimiques que nécessaire (certains codes ont un nombre d'espèces limité),
- inclure toutes les catégories d'espèces définies dans la section «2.1» : électrons, ions, atomes, molécules, états électroniques et vibrationnels,
- inclure tous les types de réactions définies dans la section «2.2.1»,
- choisir le pas de temps de la résolution et pouvoir le faire varier en cours de simulation,
- utiliser n'importe quel type d'expression des constantes de vitesse. Certains codes imposent un formalisme particulier. Par exemple, SAMM2 (*SHARC<sup>16</sup> And MODTRAN<sup>17</sup> Merged 2<sup>e</sup> version* (Dothe et al. 2004)), développé pour simuler à la fois la chimie et le transfert radiatif NETL en conditions aurorales, permet d'exprimer les constantes de vitesse avec un formalisme unique, de type Arrhenius-SSH (Schwartz-Slawsky-Herzfeld). Il n'est pas possible de définir une dépendance des constantes de vitesse au champ électrique ou de directement utiliser les différents formalismes associés aux réactions du modèle cinétique utilisé ici (voir annexe « 7.2 » pour les différentes formes d'expression des constantes de vitesse).

---

<sup>16</sup> *Strategic High Altitude Radiation Code.*

<sup>17</sup> *MODerate resolution atmospheric TRANsmission.*

Notre choix se porte sur ZDPlaskin (*Zero Dimensional Plasma kinetics*, (Pancheshnyi et al. 2008)). C'est un module développé pour suivre l'évolution temporelle de la concentration d'espèces chimiques et de la température du gaz dans un plasma non thermique sans limites au niveau du nombre de réactions ou d'espèces. Le modèle cinétique est entré dans un fichier texte, dans un format facilement compréhensible et éditable. Les coefficients des réactions peuvent être constants, dépendants de la température, ou encore des conditions du plasma (champ électrique, température électronique ...), et sont spécifiés par l'utilisateur. Le solveur d'équation de Boltzmann BOLSIG+, utilisé pour le calcul d'EEDF et des constantes de vitesses des interactions électrons – molécules (voir section «2.2.2.2»), est également inclus dans ce module. Ce qui permettrait, si nous le souhaitions, de recalculer les paramètres électriques du plasma en cours de simulation. Le système d'équation (Équation 26) est intégré, pour chaque espèce, au choix, avec le solveur DVODE F90 (*Variable-coefficient Ordinary Differential Equation Solver*) ou bien avec une routine d'intégration explicite, qui permet de choisir les critères de convergence.

Pendant la phase de *pulse*, l'évolution de la concentration des différentes espèces sera très rapide. On sait en effet qu'une grande quantité d'électrons (et donc de cations) va être produite en l'espace de quelques  $\mu\text{s}$ . Les réactions d'excitation électronique entre électrons et espèces atmosphériques seront également très rapides. On a donc besoin de définir un pas de temps très court pour la résolution. On fixe celui-ci à  $10^{-8}$  s. De plus, l'évolution hautement non linéaire du système pourra fortement propager et amplifier les erreurs de discrétisation et d'arrondi. On doit donc choisir la méthode qui les minimise le mieux, quitte à augmenter le temps de calcul (temps de convergence de la solution à  $t + dt$ ). On choisit donc la méthode implicite.

La phase de relaxation sera plus longue (250 s). On doit changer le pas de temps pour deux raisons. D'une part, une résolution de plusieurs centaines de secondes avec un pas de temps de  $10^{-8}$  s serait beaucoup trop longue. D'autre part, ça serait inutile au regard des vitesses des réactions, plus lentes. En début de relaxation, les réactions de recombinaison et attachement ont lieu sur une échelle de temps typique de l'ordre de la milliseconde. En fin de relaxation, les variations sont principalement issues de quelques réactions de la chimie atmosphérique, avec des temps caractéristiques de l'ordre de la seconde. On choisit donc un pas de temps variable, de  $10^{-3}$  à 1 s. Les variations plus modérées des concentrations au cours de cette phase n'imposent pas l'utilisation d'une méthode implicite, plus précise, mais plus lente. On choisit donc la méthode explicite (Euler).

Le calcul par ZDPlaskin s'effectue en deux étapes, telles que schématisées en Figure 31. D'abord, un programme appelé *preprocessor*, un interpréteur, convertit le fichier texte, dans lequel l'ensemble des réactions et coefficients est entré, en un module Fortran (*zdblaskin module*). Ce module contient le système d'équations différentielles associé aux 423 équations et 64 inconnues (espèces chimiques) considérées. Ensuite, l'utilisateur fait appel au solveur d'équations différentielles de son choix au sein d'un code maître (*user code*).

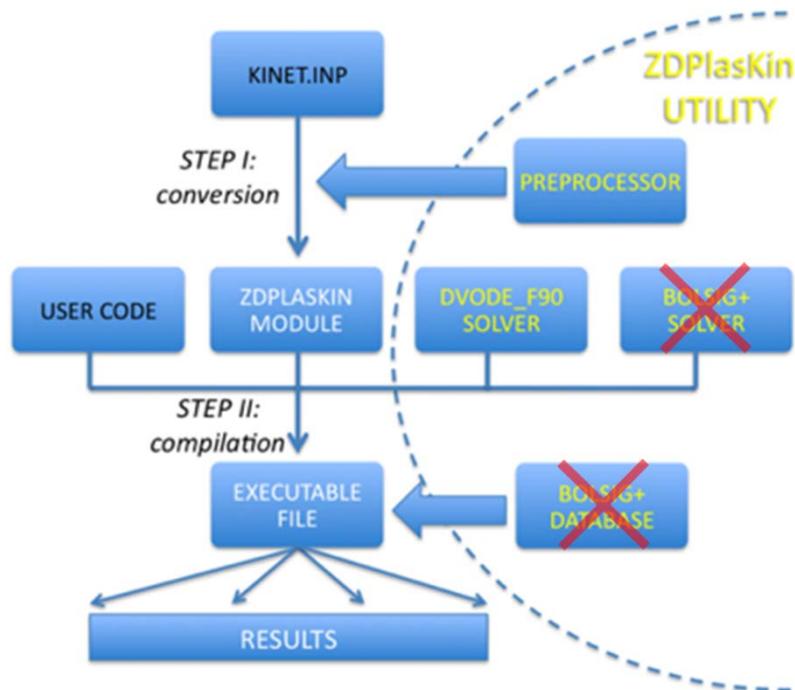


Figure 31 – Schéma numérique de ZDPlaskin ([www.zdplaskin.laplace.univ-tlse.fr](http://www.zdplaskin.laplace.univ-tlse.fr)). Le module BOLSIG+ n'est pas utilisé pendant la résolution de la cinétique. Les paramètres plasma sont calculés au préalable et entrés dans le fichier « KINET.INP ».

En sortie, on obtient les évolutions temporelles des concentrations de chacune des espèces introduites dans le code, à chaque altitude entre 40 et 70 km, avec un pas de 1 km. Il s'agit donc d'un modèle pseudo 1D puisqu'on ne décrit pas d'éventuels échanges chimiques, énergétiques ou radiatifs entre l'atmosphère à différentes altitudes. Pour évaluer la perturbation radiative NETL associée, on doit coupler les sorties pour les niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub> à un outil permettant de réaliser des calculs de transfert radiatif.

## 2.3. Sélection d'un code de transfert radiatif pour le calcul des luminances infrarouges atmosphériques

L'étape de calcul du transfert radiatif consiste à propager le rayonnement d'une source, l'atmosphère localement perturbée par un *sprite*, jusqu'à un observateur, qui peut être situé au sol, dans la stratosphère (principal cas d'étude de ce manuscrit) ou dans l'espace. Nous présentons d'abord les principes de base du transfert radiatif, puis nous décrivons la méthode utilisée pour implémenter un modèle de *sprite* dans le code de transfert radiatif choisi.

## 2.3.1. Principes fondamentaux

### 2.3.1.1. Caractérisation d'une source de rayonnement

À l'ETL, les propriétés radiatives d'une parcelle d'air dépendent uniquement de la température cinétique (Équation 3) locale, et s'expliquent par les lois du corps noir (fonction de Planck, Équation 32) et de Stephan-Boltzmann (Équation 33) :

$$B(\tilde{\nu}, T) = \frac{C_1 \tilde{\nu}^3}{\exp\left(\frac{C_2 \tilde{\nu}}{T}\right) - 1} \quad \text{Équation 32}$$

Avec :

- $B(\tilde{\nu}, T)$  la luminance énergétique spectrale, en  $\text{Wm}^{-2} \text{sr}^{-1} (\text{cm}^{-1})^{-1}$ ,
- $\tilde{\nu}$  le nombre d'onde, en  $\text{cm}^{-1}$ ,
- $T$  la température cinétique du gaz, en K,
- $C_1 = 1.191042722 \times 10^{-8} \text{Wm}^{-2} \text{sr}^{-1} (\text{cm}^{-1})^{-4}$ ,
- $C_2 = 1.4387752 \text{K}(\text{cm}^{-1})^{-1}$ .

$$E = \sigma T^4 \quad \text{Équation 33}$$

Avec :

- $E$  l'exittance énergétique d'un corps noir, en  $\text{W.m}^{-2}$ ,
- $\sigma = 5.67037321 \times 10^{-8} \text{W.m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$ , la constante de Stephan-Boltzmann.

Il est également possible de caractériser l'émission d'une source pour une transition unique donnée, entre deux états moléculaires, ioniques ou atomiques. On peut utiliser le taux d'émission volumique (*Volume Emission Rate*, VER, Équation 34) ou la brillance d'émission (*Emission Brightness*, EB, Équation 35) :

$$VER(l) = A_k \times N_k \quad \text{Équation 34}$$

$$EB(\lambda) = 10^{-6} \int_L VER(l) dl \quad \text{Équation 35}$$

Avec :

- $VER$ , en  $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$
- $A$  le coefficient d'Einstein d'émission spontanée d'une transition  $k$ , en  $\text{s}^{-1}$
- $N$  la concentration de l'espèce émettrice, par unité de volume.

- $L$  la colonne d'émission, c'est-à-dire la longueur d'un segment qui traverserait le volume d'émission,
- $EB$  en Rayleigh (R), avec  $1 R = 10^{10}$  photons  $m^{-2} s^{-1}$  par colonne d'émission.

Les coefficients d'Einstein des transitions liées aux espèces incluses dans le modèle sont présentés dans le Tableau 8. Ces grandeurs seront utilisées dans le chapitre suivant afin de caractériser les émissions de certaines espèces d'intérêt et de les valider avec d'autres travaux dont les résultats sont présentés avec des grandeurs radiatives plutôt que des grandeurs chimiques.

Transition radiative	A ( $s^{-1}$ )	$\lambda$ (nm)	$\nu$ ( $cm^{-1}$ )
$N_2(B^3\Pi_g) \rightarrow N_2(A^3\Sigma_u^+) + hv$	$1.34 \times 10^5$	601 – 655	16639 – 15267
$N_2(C^3\Pi_u) \rightarrow N_2(B^3\Pi_g) + hv$	$2.45 \times 10^7$	399 – 435	25063 – 22989
$N_2^+(B^2\Sigma_u^+) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma_g^+) + hv$	$1.58 \times 10^7$	427,8	23375
$NO(A^2\Sigma^+) \rightarrow NO(X^2\Pi) + hv$	$5 \times 10^6$	227	44053
$CO_2(001) \rightarrow CO_2(100) + hv$	0.2	9400	1063
$CO_2(001) \rightarrow CO_2(000) + hv$	450	4260	2347
$CO_2(100) \rightarrow CO_2(010) + hv$	2.08	13900	719
$CO_2(010) \rightarrow CO_2(000) + hv$	1.56	14900	671
$O(^1D) \rightarrow O + hv$	$5.1 \times 10^{-3}$	630	15873
$O(^1S) \rightarrow O(^1D) + hv$	1.34	557.7	17931
$N_2(a^1\Pi_g) \rightarrow N_2(X^1\Sigma_g^+) + hv$	$8.55 \times 10^3$	155.2	64433

Tableau 8 – Transitions radiatives des espèces incluses dans le modèle cinétique.

### 2.3.1.2. Profils de raie

Dans la réalité, les phénomènes d'émission (et d'absorption) ne se produisent pas dans une bande de fréquence infiniment mince. Le signal n'est pas purement monochromatique. L'agitation thermique des espèces et les collisions élargissent la gamme à laquelle celles-ci émettent et absorbent. À cause de l'agitation thermique, l'effet Doppler conduit à un profil de raie de forme gaussienne (Équation 36). Les phénomènes de collision conduisent à un profil de raie de forme lorentzienne (Équation 37). Pour schématiser, dans l'atmosphère terrestre, à basse altitude, la pression est élevée. L'élargissement des profils de raie induit par les collisions (composante lorentzienne) est plus important que l'élargissement induit par la distribution de vitesse des molécules (composante Doppler). Le profil de raie peut être représenté de façon satisfaisante avec une lorentzienne. Inversement, à haute altitude, la pression est faible. L'élargissement induit par la distribution des vitesses des molécules est plus important que l'élargissement induit par les collisions. Le profil de raie peut alors être représenté de façon satisfaisante avec une gaussienne. Dans des gammes de pressions intermédiaires, les deux composantes coexistent. Le profil peut alors être décrit comme un profil de Voigt (Équation 38), c'est-à-dire la convolution d'une gaussienne et d'une lorentzienne. Ces différentes formes sont présentées en Figure 32.

$$I_D(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) = \frac{1}{\Gamma_D} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \exp \left[ -\ln(2) \left( \frac{\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0}{\Gamma_D} \right)^2 \right] \quad \text{Équation 36}$$

Avec :

- $I_D$  le profil de type « Doppler »,
- $\Gamma_D$  la demi-largeur Doppler,
- $\tilde{\nu}_0$  le nombre d'onde de la transition observée.

$$I_l(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma_L}{(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0 - \Delta_L)^2 + \Gamma_L^2} \quad \text{Équation 37}$$

Avec :

- $I_l$  le profil de type « Lorentz »,
- $\Gamma_L$  la demi-largeur Lorentz de la raie,
- $\Delta_L$  le déplacement collisionnel de la raie.

$$I_V(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) = I_D(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) * I_l(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T) \quad \text{Équation 38}$$

Avec  $I_V$  le profil de type « Voigt ».

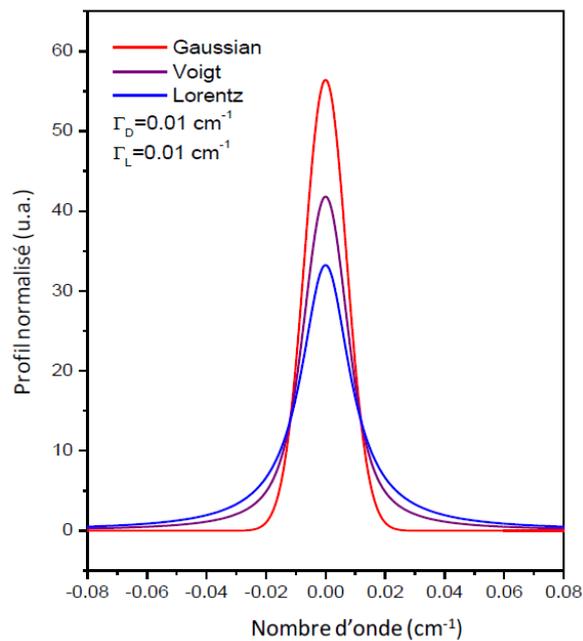


Figure 32 – Profils de raie gaussien, lorentzien, et de Voigt (Larcher 2016).

Afin de construire des spectres, d'émission ou d'absorption, il est nécessaire de caractériser les positions, formes, et intensités des raies associées à chaque espèce atmosphérique. Pour cela, on utilise les paramètres spectroscopiques recensés dans différentes bases de données. On peut mentionner HITRAN (*High-resolution TRANsmission molecular absorption database* (Rothman et al. 2013)), créée dans les années 60 aux États-Unis, ou GEISA (Gestion et Étude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques), créée au Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) en 1976 (voir Jacquinet-Husson et al. (2016) pour la description de la dernière version de GEISA).

### 2.3.1.3. Transfert radiatif atmosphérique

Sur le trajet optique entre source et observateur, le rayonnement peut être absorbé, diffusé ou émis. Ces phénomènes dépendent des propriétés du milieu (composition, température, pression), de la longueur d'onde, et, pour des applications atmosphériques, de la présence de particules (nuages, aérosols). À l'ETL, l'équation du transfert radiatif s'écrit :

$$\frac{dL(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega})}{dr} = -k(r, \tilde{\nu})L(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}) + G(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}) \quad \text{Équation 39}$$

Avec :

- $L(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega})$  la luminance à la position  $r$ , au nombre d'onde  $\tilde{\nu}$ , se propageant dans la direction  $\vec{\Omega}$ , en  $\text{W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ ,
- $k(r, \tilde{\nu})$  le coefficient d'extinction (absorption + diffusion), en  $\text{cm}^{-1}$ ,
- $G(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega})$  le coefficient d'émission, en  $\text{W}/\text{cm}^3/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ .

Les coefficients d'extinction et d'émission correspondent en fait à la somme des contributions à l'extinction et à l'émission de chaque espèce  $i$  (atome, ion, molécule, particule) présente dans le milieu. On a donc :

$$k(r, \tilde{\nu}) = \sum_i k(r, \tilde{\nu})_i \quad \text{Équation 40}$$

Et :

$$G(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}) = \sum_i G(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega})_i \quad \text{Équation 41}$$

Avec  $k(r, \tilde{\nu})_i$  et  $G(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega})_i$  les contributions respectives à l'extinction et à l'émission de l'espèce  $i$ .

De plus, le coefficient d'émission se décompose en plusieurs termes. En conditions nocturnes<sup>18</sup> on a :

$$G(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}) = k_a(r, \tilde{\nu})B(T) + k_d(r, \tilde{\nu}) \int_{4\pi} L(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}, \vec{\Omega}') p(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}, \vec{\Omega}') d\vec{\Omega}' \quad \text{Équation 42}$$

Avec :

- $k_a(r, \tilde{\nu})$  et  $k_d(r, \tilde{\nu})$  les coefficients d'absorption et de diffusion, en  $\text{cm}^{-1}$ ,
- $B(T)$  la fonction de Planck à la température  $T$ , en  $\text{W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$  (Équation 32),
- $p(r, \tilde{\nu}, \vec{\Omega}, \vec{\Omega}')$  la fonction de phase associée aux angles  $(\vec{\Omega}, \vec{\Omega}')$ .

En NETL, le principe est similaire à la différence que les populations des niveaux d'énergie des espèces chimiques ne s'expriment plus simplement en fonction de la température cinétique du gaz, la fonction de Planck n'est plus satisfaisante. À la place, il faut introduire un terme que l'on nomme « population observée ». Pour un niveau énergétique donné, cette population s'exprime :

$$\frac{n_E}{n_0} = \frac{g_E}{g_0} \exp\left(-\frac{E}{k_b T_{vib}}\right) \quad \text{Équation 43}$$

Avec :

- $n_E$  la concentration d'une espèce donnée dans un niveau d'énergie  $E$ , en  $\text{cm}^{-3}$ ,
- $n_0$  la concentration de cette espèce dans son état fondamental, en  $\text{cm}^{-3}$ ,
- $g_E$  et  $g_0$  les dégénérescences respectives, sans dimension,
- $k_b$  la constante de Boltzmann,  $1.38064852 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$
- $T_{vib}$  la température vibrationnelle du niveau  $n_E$ , en K, voir Équation 7.

#### 2.3.1.4. Choix d'un code de transfert radiatif

Afin de pouvoir calculer les luminances spectrales de l'atmosphère localement perturbée par un *sprite*, dans l'infrarouge moyen et lointain, nos exigences sont les suivantes :

- La gamme spectrale doit couvrir l'infrarouge moyen et lointain ( $2 - 20 \mu\text{m}$ ,  $500 - 5000 \text{ cm}^{-1}$ ).
- On souhaite pouvoir calculer des luminances spectrales à haute résolution ( $0.1 \text{ cm}^{-1}$ ), afin de pouvoir résoudre les structures spectrales rovibrationnelles.
- Les calculs doivent pouvoir être réalisés en NETL, au moins pour la molécule de  $\text{CO}_2$ , c'est-à-dire en pouvant considérer les niveaux vibrationnels des molécules indépendamment, sans que leurs populations ne suivent nécessairement une statistique de Maxwell-Boltzmann.

<sup>18</sup> Pour un calcul diurne, il faudrait ajouter un terme de contribution solaire.

- Même si l'objectif principal est de réaliser des calculs en visée oblique (voir mission HALESIS, section « 1.5.4 »), on souhaite pouvoir également simuler des visées au limbe, et au nadir, à des fins de comparaison ou pour étendre nos investigations.
- Le code doit être (relativement) facilement adaptable à notre problématique. La simulation d'un *sprite* avec cet outil ne doit pas être conditionnée à une étape de développement complexe.

Afin de sélectionner le code qui correspond le mieux à ces attentes, un état de l'art des codes de transfert radiatif atmosphériques a été réalisé. Parmi les codes recensés, 3 prenaient en compte le NETL. Leurs principales caractéristiques sont présentées dans Tableau 9.

	Prise en compte du NETL	Sorties	Gamme spectrale	Altitudes	Résolution spectrale	Référence
<b>GRANADA</b> <i>Generic Radiative traNsfer AnD non-LTE population Algorithm</i>	Oui	?	Proche et moyen infrarouge	?	?	(Funke et al. 2012)
<b>SAMM2</b> <i>SHARC And MODTRAN Merged</i>	Oui au-dessus de 50 km	Luminances et transmissions atmosphériques	Infrarouge proche à lointain	300 km max.	0.001 cm <sup>-1</sup>	(Dothe et al. 2004)
<b>LBLRTM</b> <i>Line-By-Line Radiative Transfer Model</i>	Oui	Luminances et transmissions atmosphériques	UV à microondes	Défini par l'utilisateur	Résolution de chaque raie	(Clough et al. 2005)

Tableau 9 – Codes de transfert radiatif envisagés pour la simulation de la signature infrarouge de *sprites*.

Le code GRANADA est limité au niveau de la gamme spectrale, celle-ci ne permettrait pas d'étudier les émissions de CO<sub>2</sub> dans l'infrarouge lointain. SAMM2 fut étudié en détails car il semblait être l'option la plus prometteuse. En effet, ce code est capable de simuler à la fois la chimie et le transfert radiatif, en conditions atmosphériques diurnes, nocturnes et aurorales. Toutefois, il ne permettait pas de réaliser des simulations NETL en dessous de 50 km et la simulation de *sprites* aurait nécessité une modification importante du code. Nous avons fini par abandonner cet outil pour la simulation de *sprites*, mais l'avons utilisé pour simuler des aurores. Ce qui sera discuté en section « 5.6.2 ». Pour les *sprites*, nous avons donc choisi d'utiliser LBLRTM (*Line-By-Line Radiative Transfer Model* (Clough et al. 2005)).

### 2.3.2. Implémentation d'un modèle de *sprite* sous LBLRTM

LBLRTM est un code de transfert radiatif raie par raie dérivé de FASCODE (*Fast Atmospheric Signature Code* (Clough et al. 1981)). Il permet de calculer des transmissions et luminances spectrales

atmosphériques des microondes jusqu'à l'ultraviolet. Un total de 39 espèces sont incluses (Tableau 10). Parmi elles, 5 peuvent être considérées en NETL ( $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $O_3$ ,  $CO$ ,  $NO$ ). Les paramètres spectroscopiques sont issus de la base de données HITRAN.

$H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $O_3$ ,  $N_2O$ ,  $CO$ ,  $CH_4$ ,  $O_2$ ,  $NO$ ,  $SO_2$ ,  $NO_2$ ,  $NH_3$ ,  
 $HNO_3$ ,  $OH$ ,  $HF$ ,  $HCl$ ,  $HBr$ ,  $HI$ ,  $ClO$ ,  $OCS$ ,  $H_2CO$ ,  $HOCl$ ,  
 $N_2$ ,  $HCN$ ,  $CH_3Cl$ ,  $H_2O_2$ ,  $C_2H_2$ ,  $C_2H_6$ ,  $PH_3$ ,  $COF_2$ ,  $SF_6$ ,  $H_2S$ ,  
 $HCOOH$ ,  $HO_2$ ,  $O$ ,  $ClONO_2$ ,  $NO^+$ ,  $HOBr$ ,  $C_2H_4$ ,  $CH_3OH$

Tableau 10 – Espèces chimiques incluses dans LBLRTM.

Pour calculer la signature NETL consécutive à un *sprite*, les températures vibrationnelles (Équation 7) de  $CO_2$  doivent être appliquées à une région de l'atmosphère dont les dimensions correspondent au volume total perturbé par les *streamers*. Connaissant le nombre de *streamers* dans un *sprite*, de l'ordre de quelques milliers (Arnone et al. 2014), ainsi que leurs dimensions, quelques dizaines à centaines de mètres de diamètre (discuté dans la section «1.5»), on définit un volume équivalent d'atmosphère perturbé par un cylindre de quelques km de diamètre et 30 km de haut (Figure 33), placé à 40 km d'altitude de façon à couvrir la région des *streamers*. Par exemple, la section horizontale d'un cylindre équivalent de 10 km de diamètre, en admettant que le diamètre horizontal moyen d'un *streamer* soit de 100 mètres, occupe la même surface que 10000 *streamers*. Cet aspect sera discuté plus en détail dans la section « 5.2 ».

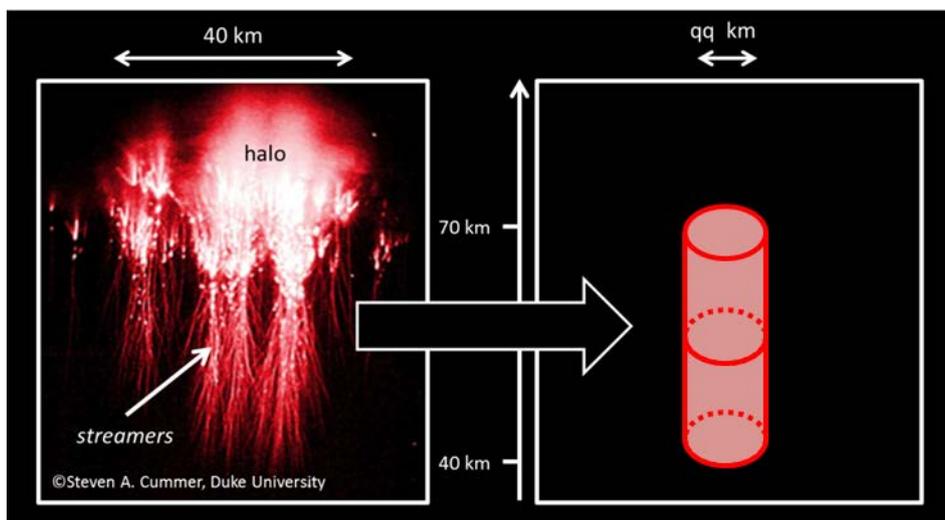


Figure 33 – Région de l'atmosphère perturbée par un *sprite* modélisée par un cylindre.

Le modèle géométrique de *sprite*, défini comme un cylindre, ne peut pas directement être introduit dans LBLRTM. L'atmosphère est représentée comme une succession de couches concentriques. Il n'est pas possible d'y introduire une « boîte » au sein de laquelle on pourrait simplement appliquer la chimie perturbée du *sprite* calculée au préalable. On peut toutefois jouer sur la composition et l'épaisseur des couches du modèle. Pour contourner le problème, on utilise la méthode illustrée en (Figure 34).

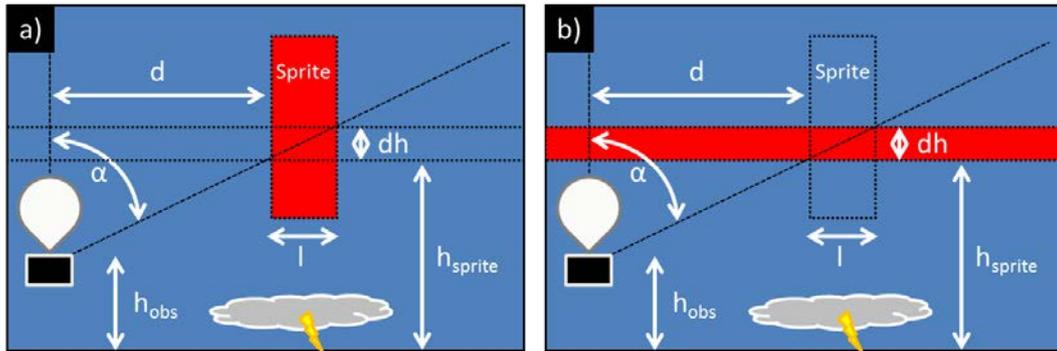


Figure 34 – Définition des paramètres de la géométrie d'observation et de l'épaisseur équivalente « dh » pour l'introduction de la perturbation chimique d'un *streamer* sous LBLRTM. En a), le cas que l'on souhaite simuler, avec un *sprite* d'une largeur « l » qui couvrirait les altitudes entre 40 et 70 km. Sous LBLRTM, on ne peut pas fixer de limites sur la dimension horizontale pour définir une « boîte ». On calcule donc l'épaisseur « dh », qui permet au segment de ligne de visée qui traverse la région perturbée d'avoir la même longueur dans la situation a) et b).

Cette méthode introduit toutefois une erreur dans le calcul de luminances. La grille d'altitude permet de définir des conditions (concentration, température, pression...) à chaque altitude entre 0 et 120 km avec un pas défini préalablement (1 km ici). Les conditions aux altitudes intermédiaires (entre deux altitudes de la grille) sont interpolées, ce qui cause une erreur de concentration dans les couches immédiatement au-dessus et en dessous de celles auxquelles est appliquée la chimie du *streamer* (Figure 35). Afin de minimiser cette erreur, on modifie la grille d'altitude pour que la région perturbée soit entourée de couches fines, d'une épaisseur de 10 m. Aux limites hautes et basses de ces couches sont appliquées les conditions de l'atmosphère de fond. Ainsi, la transition entre conditions perturbées et conditions de fond se fait en l'espace de 10 m au lieu de 1 km.

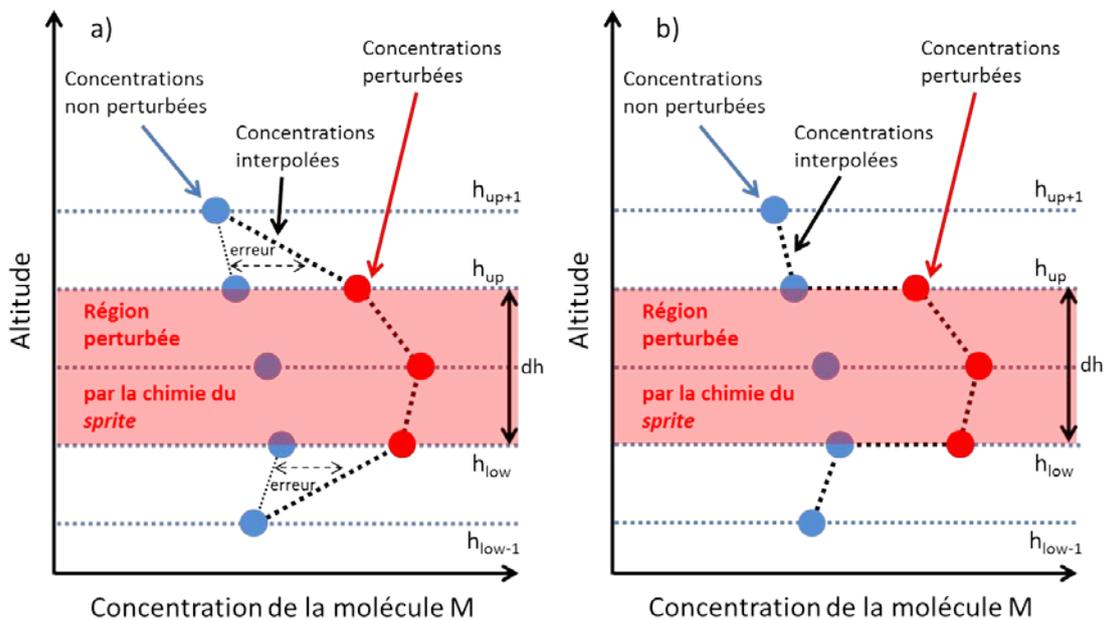


Figure 35 – Profils des concentrations de fond et celles perturbées par un *sprite*. Cas considéré par défaut par le code, en a), cas idéal en b). Les couches immédiatement en dessous et au-dessus de la région qui représentent le *sprite* sont également perturbées par interpolation entre  $h_{low}$  et  $h_{low-1}$ , et  $h_{up}$  et  $h_{up+1}$ . Ceci introduit une erreur qui équivaut à surestimer la dimension de la région que l'on souhaite perturber.

Une fois les différents paramètres géométriques spécifiés, LBLRTM calcule les luminances spectrales. Pour obtenir les résolutions spectrales souhaitées, on applique une fonction d'appareil ( $f_{app}$ ) et une fonction d'apodisation ( $f_{apo}$ ) (Équation 44 et Équation 45). Sans connaître les spécificités de l'instrument qui sera utilisé pour la mission HALESIS, on utilise des fonctions de type gaussiennes.

$$f_{app} = \exp(-0.5(\tilde{\nu}/a)^2) \quad \text{Équation 44}$$

Avec :

- $\tilde{\nu}$  le nombre d'onde, en  $\text{cm}^{-1}$ ,
- $a = 1/L$ ,  $L$  étant la demie largeur à mi-hauteur de la gaussienne (*Half Width Half Maximum*, HWHM).

$$f_{apo} = \exp(-2\pi(ax)^2) \quad \text{Équation 45}$$

Avec :

- $x$  la différence de marche, en cm.

La résolution spectrale correspond à la FWHM (*Full Width Half Maximum*) de la gaussienne. Pour caractériser la forme de la courbe, on utilise un pas d'échantillonnage égal à  $\frac{1}{2}$  de la HWHM (Figure 36).

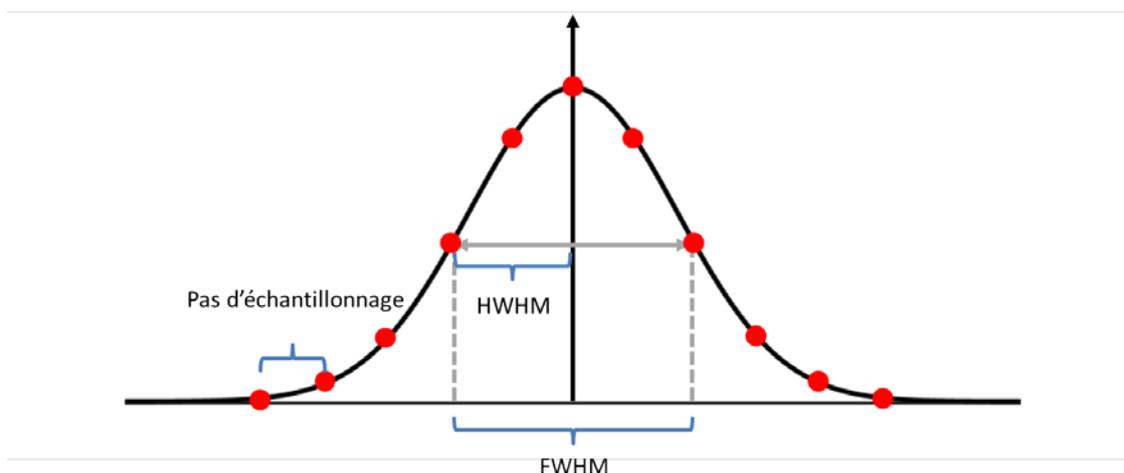


Figure 36 - Exemple de HWHM, FWHM et pas d'échantillonnage sur une gaussienne.

## 2.4. Bilan du second chapitre

### 2.4.1. Hypothèses du modèle

Ce chapitre a été consacré à la présentation du modèle qui va être utilisé pour la simulation de la cinétique vibrationnelle et de la signature infrarouge des *sprites*. Celui-ci nécessitait d'aborder quelques notions sur les plasmas, la cinétique chimique, et le transfert radiatif. La construction de ce modèle repose sur le couplage de différents outils numériques et sur un certain nombre d'hypothèses. Les voici résumées :

- On a choisi de modéliser l'effet énergétique et chimique d'un *streamer* positif descendant, cas le plus fréquent et pratiquement exclusif dans les *sprites* entre 40 et 70 km.
- On se place dans des conditions atmosphériques nocturnes, à 45 ° de latitude, 0 ° de longitude, minuit heure locale. Les profils de concentrations et températures sont des moyennes estivales, issues du code WACCM.
- Les concentrations des états excités des molécules sont initialisées à l'équilibre thermodynamique local, avec une statistique de Maxwell-Boltzmann. On considère cette hypothèse satisfaisante en dessous de 70 km d'altitude.
- On utilise un « patch » d'électrons initial dont la concentration décroît exponentiellement avec l'altitude (Hu et al. 2007).
- La neutralité globale de l'atmosphère sera respectée pendant la résolution de la cinétique chimique.
- Les principales émissions infrarouges de CO<sub>2</sub> sont issues du premier niveau de chaque mode de vibration. On ne considère donc que ces trois niveaux dans le modèle.
- Aucun processus photochimique (autres que les processus radiatifs) ou d'interaction rayons cosmiques – espèces atmosphériques n'est inclus. Ce type d'interaction est parfois utilisé pour entretenir une quantité d'électrons suffisante au déclenchement d'un *sprite*. Ce qui n'est pas utile dans notre approche.
- La chimie de l'eau n'est pas incluse, on considère qu'en haute stratosphère et mésosphère son effet est négligeable.
- Les constantes de vitesse de la chimie atmosphérique et vibrationnelle des modèles de Gordillo-Vázquez (2008) et Parra-Rojas et al. (2015) seront utilisés.
- On utilise des distributions d'énergie des électrons stationnaires pour le calcul des paramètres plasma et des constantes de vitesse de la chimie des plasmas.
- Les interactions Coulombiennes entre électrons sont négligées dans le calcul des paramètres plasma.
- Le champ électrique réduit pendant la phase de *pulse* est constant et est de 400 Td.
- La durée de la phase de *pulse* est variable selon l'altitude afin de satisfaire à la loi d'échelle qui relie la production d'électrons des *streamers* de laboratoire à une pression de 1 atm aux *streamers* à des pressions inférieures.
- Le champ électrique réduit (E/N) pendant la phase de relaxation est constant et est de 30 Td.
- Modélisation pseudo 1-D du passage d'un *streamer* à toutes altitudes entre 40 et 70 km. Les processus électrodynamiques qui gouvernent la propagation du *streamer* ne sont pas pris en compte. Démarche similaire à celles de Gordillo-Vázquez (2008), Parra-Rojas et al. (2015), Sentman et al. (2008).
- Le volume de la région atmosphérique perturbé par le grand nombre de *streamers* qui se forment lors des *sprites* peut être représenté par un cylindre de quelques kilomètres à dizaines de kilomètres de diamètre, de 30 km de haut, qui couvre les altitudes entre 40 et 70 km.

## 2.4.2. Paramètres du modèle

L'ensemble de ces hypothèses se traduit dans le schéma numérique par l'application de différents paramètres. Leur organisation logique est schématisée dans la Figure 37.

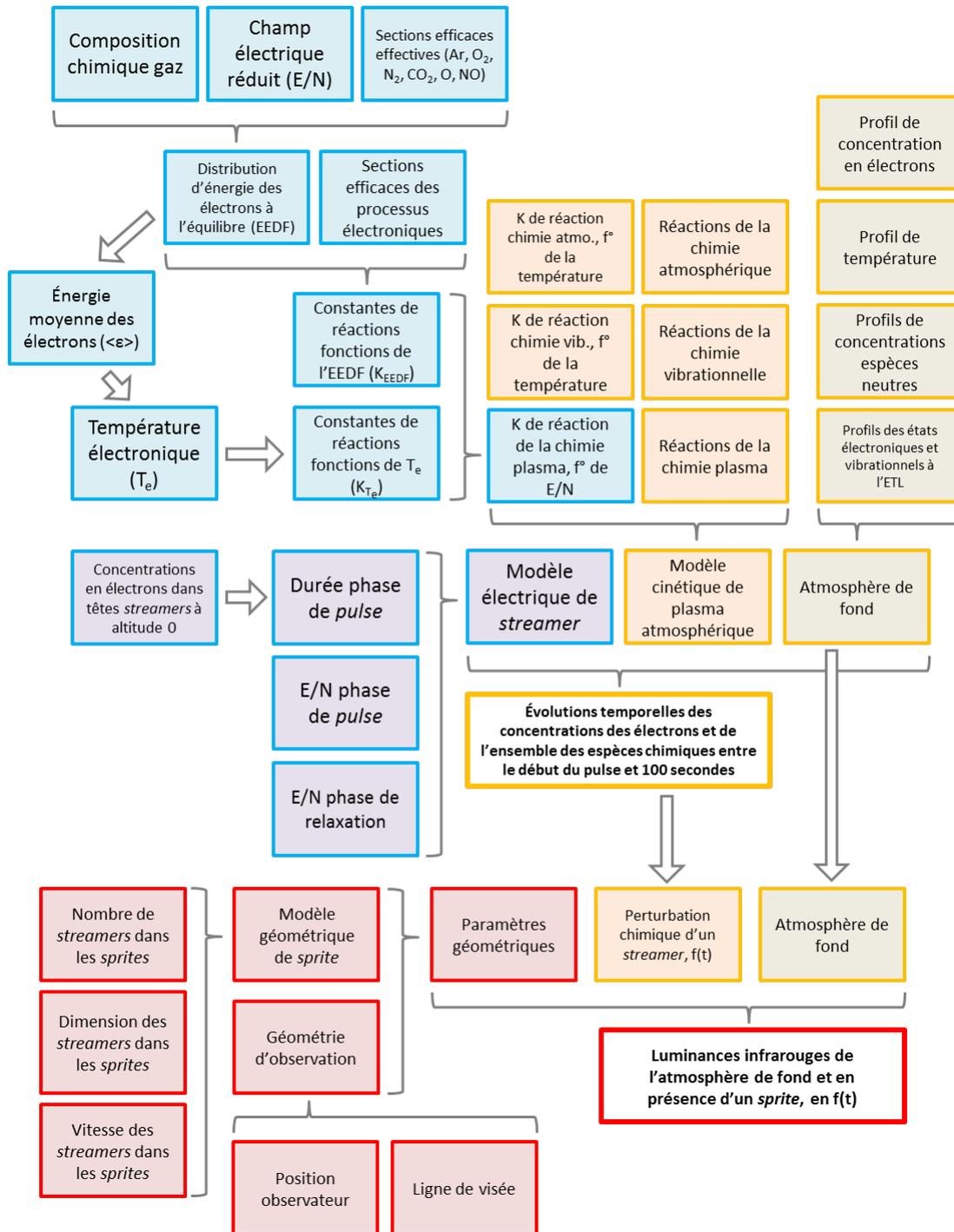


Figure 37 – Paramètres du modèle. Les éléments qui relèvent de la physico-chimie des plasmas sont encadrés en bleu, ceux de la cinétique en jaune, et ceux du transfert radiatif en rouge. Les sorties des calculs des

paramètres plasma correspondent à une partie des entrées de la modélisation cinétique. Les sorties de la cinétique correspondent à une partie des entrées de la modélisation du transfert radiatif.

### 3. Mise en œuvre du modèle cinétique pour le suivi de l'évolution temporelle des concentrations des espèces perturbées par un streamer entre 40 et 70 km d'altitude

L'étape préalable à la simulation de la signature infrarouge de *sprites* consiste à évaluer l'évolution temporelle des concentrations des différentes espèces incluses dans le modèle cinétique, à la suite de la perturbation électrique d'un *streamer*. Parmi les 64 espèces incluses, on discutera les résultats obtenus pour les électrons, les niveaux électroniques de  $N_2$  et  $N_2^+$ , les niveaux vibrationnels de  $N_2$ , et les niveaux vibrationnels de  $CO_2$ . Ceci permettra de répondre à la première grande problématique de cette thèse : en quoi les *sprites* affectent-ils la chimie vibrationnelle en haute stratosphère et dans la mésosphère ?

Pour commencer, on abordera l'équilibrage du modèle cinétique. Ensuite, nous présenterons l'évolution temporelle des concentrations en électrons. Cette espèce est en effet fondamentale puisqu'elle va peupler directement, ou indirectement, les niveaux énergétiques des espèces responsables d'émissions radiatives.

Nous poursuivrons en examinant les niveaux électroniques de  $N_2$ . Ceux-ci sont responsables des principales émissions dans le visible. On qualifie ces émissions de « NETL » car elles proviennent de la perturbation de la distribution des niveaux d'énergie des molécules associées, qui dévient de l'ETL. Jusqu'à présent, les travaux de simulations et campagnes d'observation se sont principalement intéressés aux émissions visibles (voir « 1.5.2 »), les travaux concernant les espèces émettrices dans cette gamme spectrale sont nombreux. C'est pourquoi, afin de valider le modèle développé, on comparera les résultats obtenus pour ces espèces à d'autres travaux de la littérature.

Dans la dernière partie, les espèces connues pour influencer les émissions infrarouges seront examinées : les niveaux vibrationnels de  $N_2$  et de  $CO_2$ . Rappelons que les *sprites* n'influencent pas les concentrations totales de ces molécules, ils perturbent seulement la répartition de leurs niveaux d'énergie interne. Tout comme les émissions visibles, celles-ci peuvent donc être qualifiées de « NETL ».

#### 3.1. Équilibrage du modèle cinétique

L'approche pour modéliser la chimie d'un *streamer* consiste à « perturber » un modèle cinétique par application de champs électriques. On doit donc s'assurer préalablement que, en l'absence de champ électrique, le modèle est équilibré. C'est-à-dire que la concentration des

différentes espèces reste constante sur une durée au moins égale à celle de la simulation d'un *sprite*, soit une centaine de secondes. L'étape d'équilibrage consiste alors à résoudre le schéma cinétique dans un champ électrique nul pour suivre les évolutions temporelles des concentrations de l'ensemble des espèces incluses. Cette étape permet également de valider la cohérence du choix de réactions (et coefficients associés), qui doit permettre au modèle d'être stationnaire en l'absence de perturbation. Pour illustrer cela, les évolutions temporelles des concentrations de certains niveaux vibrationnels de  $N_2$  et  $CO_2$ , dans un champ électrique nul, sont présentées en (Figure 38).

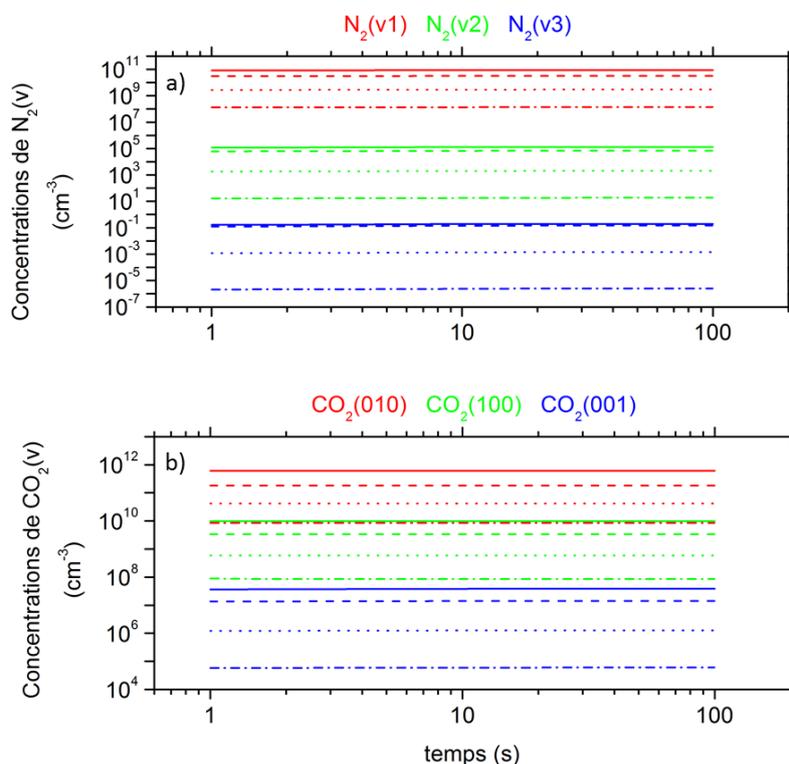


Figure 38 – Évolutions temporelles des concentrations des trois premiers niveaux vibrationnels de  $N_2$ , et du premier niveau de chaque mode de vibration de  $CO_2$ , pendant la phase d'équilibrage, pour un champ électrique nul. Les différents types de traits, pleins, tirets, pointillés et tirets – pointillés correspondent respectivement à 40, 50, 60 et 70 km d'altitude. À des fins de lisibilité, les niveaux 4 à 8 du  $N_2$  ne sont pas tracés.

Sur cette représentation graphique, sur une durée de 100 s, les variations temporelles des concentrations de ces niveaux semblent nulles. Toutefois, même si ce n'est pas visible sur cette représentation, il existe des variations au cours de la première seconde (résolution avec un pas de temps de 1 s). La variation la plus forte a lieu pour une altitude de simulation de 40 km, pour l'espèce  $CO_2(010)$ , et atteint 15 % (de diminution). À cette même altitude, la variation sur  $CO_2(100)$  et  $CO_2(001)$  est de 1.5 %. À plus haute altitude, la variation est plus faible, pour  $CO_2(010)$  elle est de 8 %, et inférieure à 1 % pour  $CO_2(100)$  et  $CO_2(001)$ . Pour les niveaux vibrationnels de  $N_2$ , la variation est toujours inférieure à 1 %. Cela signifie que la cinétique vibrationnelle, dans le cadre d'une hypothèse d'ETL, n'est pas parfaitement équilibrée. Toutefois, au regard des variations causées par un *streamer*, de plusieurs ordres de grandeurs, ce qui sera présenté par la suite (voir « 3.3.2 » pour les niveaux vibrationnels de  $CO_2$ ), on fait l'hypothèse que cet équilibrage est satisfaisant. C'est également le cas pour les autres espèces incluses dans le modèle, à l'exception de  $NO_3$  et  $N_2O_5$ . Leur étude se trouve hors des principaux objectifs de ce travail, cet aspect sera donc discuté dans les perspectives et de façon préliminaire.

## 3.2. Évolutions temporelles des concentrations en électrons et espèces liées aux émissions visibles et validation du modèle

### 3.2.1. Évolutions temporelles des concentrations en électrons

#### 3.2.1.1. Processus de production et consommation des électrons

Durant la phase de *pulse* (pour  $E/N = 400$  Td), les électrons sont principalement produits par ionisation. D'autres processus, moins efficaces dans ces conditions, consomment les électrons. Pendant la phase de relaxation (pour  $E/N = 30$  Td), les processus consommateurs d'électrons deviennent prédominants par rapport à ceux d'ionisation (voir Figure 27, section « 2.2.2.2 »). À cela s'ajoute 24 réactions de détachement (réactions 360 à 367, 373, 374, 378 à 383, 386, 387, 389, et 399 à 402, voir l'annexe « 7.2 »), capables de produire des électrons à partir des anions  $O^-$ ,  $O_2^-$ ,  $O_3^-$  et  $NO^-$ . Il résulte de ces processus, dans les conditions électriques du modèle de *streamer* (voir section « 2.2.3 »), les évolutions temporelles des concentrations en électrons présentées en Figure 39.

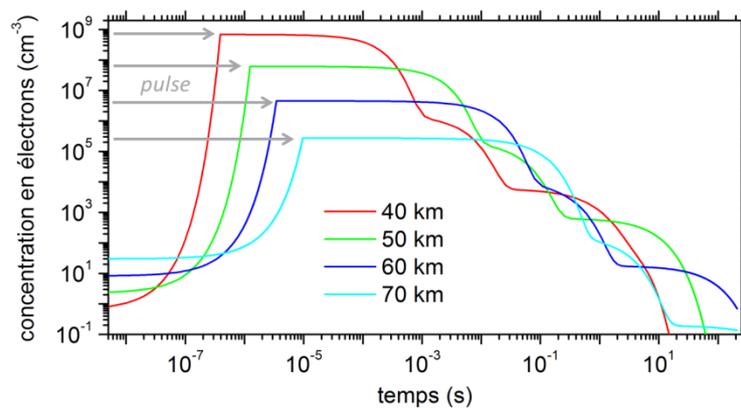


Figure 39 – Évolutions temporelles des concentrations en électrons suite au passage d'un *streamer* entre 40 et 70 km d'altitude. Les flèches grises indiquent la durée de la phase de *pulse* à chaque altitude. Afin de ne pas alourdir la figure, les résultats sont présentés à 40, 50, 60, et 70 km d'altitude.

Durant la phase de *pulse*, la croissance de la concentration des électrons est exponentielle. Ils sont principalement produits par les processus d'ionisation et d'ionisation dissociative présentés dans le Tableau 11.

Réaction	Constante de vitesse pendant la <i>pulse</i> (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
$N_2 + e \rightarrow N_2^+ + e + e$	$1.710 \times 10^{-9}$	23
$O_2 + e \rightarrow O_2^+ + e + e$	$1.900 \times 10^{-9}$	28
$N_2 + e \rightarrow N_2(B2S)^+ + e + e$	$9.480 \times 10^{-11}$	24
$O_2 + e + e \rightarrow O^+ + O + e + e$	$2.230 \times 10^{-10}$	56
$Ar + e \rightarrow Ar^+ + e + e$	$3.360 \times 10^{-9}$	1

Tableau 11 – Principales réactions productrices d'électrons pendant la phase de *pulse* et constantes de vitesse associées.

Dans cette même phase, seul l'attachement dissociatif à travers la réaction 32 (voir annexe « 7.2 ») contribue de façon notable à la consommation d'électrons ( $k = 3.55 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$ ). On ne discute pas davantage la production d'électrons pendant le *pulse*, car celle-ci est imposée en entrée par sa durée, comme cela est expliqué en section « 2.2.3 ».

À la fin de l'application du *pulse*, la concentration des électrons ne décroît pas immédiatement. Les temps caractéristiques des processus qui consomment des électrons (attachement et attachement dissociatif principalement) sont en effet plus longs que ceux des processus d'ionisation. On constate alors un plateau, d'une durée variable, qui dépend de la pression (et donc de l'altitude). Pendant cette phase, qu'on appelle « relaxation », des électrons continuent à être produits par des processus de détachement (Tableau 12).

Réaction	Constante de vitesse <sup>19</sup> (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
$O^- + N_2 \rightarrow N_2O + e$	$10^{-12}$	360
$O^- + O_2 \rightarrow O_3 + e$	$5.000 \times 10^{-15}$	361
$O^- + O_3 \rightarrow 2O_2 + e$	$5.300 \times 10^{-10}$	366
$O^- + CO \rightarrow CO_2 + e$	$6.000 \times 10^{-10} \times (T_g / 300)^{-0.32}$	374

Tableau 12 – Principales réactions productrices d'électrons pendant la phase de relaxation et constantes associées. «  $T_g$  » correspond à la température cinétique du gaz à une altitude donnée.

Ces processus ne sont toutefois pas suffisants pour maintenir la quantité d'électrons produite par le *pulse*. Le champ électrique réduit est plus faible durant la phase de relaxation, cela permet aux processus de recombinaison dissociative, d'attachement dissociatif, et d'attachement de faire décroître ces concentrations (Figure 39). Les plus importants de ces processus sont recensés dans le Tableau 13.

<sup>19</sup> Ces coefficients ne dépendent pas du champ électrique réduit. Ils sont donc les mêmes pendant le *pulse* et pendant la relaxation. Par la suite, lorsqu'il n'est pas précisé de quelle phase est issue la constante de vitesse présentée, c'est qu'elle est identique pendant toute la simulation.

Réaction	Constante de vitesse pendant la relaxation (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
$e + N_2O_2^+ \rightarrow NO + NO$	$3.610 \times 10^{-6} \times T_e^{-0,5}$	93
$e + N_2O_2^+ \rightarrow N_2 + O_2$	$3.610 \times 10^{-6} \times T_e^{-0,5}$	94
$e + O_2 + O_2 \rightarrow O_2^- + O_2$	$1.400 \times 10^{-29}$	64
$e + O_3 \rightarrow O^- + O_2$	$6.680 \times 10^{-10}$	33
$e + O^+ + e \rightarrow O + e$	$7.180 \times 10^{-25} \times T_e^{-4,5}$	88
$e + O_2 \rightarrow O^- + O$	EEDF	32

Tableau 13 – Principales réactions consommatrices d'électrons pendant la phase de relaxation et constantes de vitesse associées. La constante de vitesse du processus 64 est faible, mais la forte concentration d'O<sub>2</sub>, second constituant atmosphérique le plus abondant, permet à ce processus de jouer un rôle important. « T<sub>e</sub> » correspond à la « température » électronique (en eV).

Il faut enfin préciser que la durée du plateau post-*pulse* est capitale. Celle-ci permet d'expliquer la population des niveaux vibrationnels de N<sub>2</sub>, puis du CO<sub>2</sub> par des échanges d'énergie collisionnels. Elle est respectivement de l'ordre de 10<sup>-4</sup>, 10<sup>-3</sup>, 10<sup>-2</sup>, 10<sup>-1</sup> s à 40, 50, 60 et 70 km.

### 3.2.1.2. Validation des concentrations en électrons

Le modèle développé est très proche de celui de Gordillo-Vázquez (2008), sur lequel il est basé. On compare donc d'abord les résultats obtenus à ceux de cette publication. Les simulations de Gordillo-Vázquez (2008), réalisées à 63 km d'altitude, conduisent, à la fin de la phase de *pulse*, à une quantité d'électrons du même ordre de grandeur que celle prédite par la loi de similitude (Équation 25). C'est-à-dire du même ordre de grandeur que celle que l'on calcule. La comparaison est faite en Figure 40. Le bon accord global entre les deux simulations s'explique par l'utilisation de modèles cinétiques très proches. De plus, on applique également un champ électrique réduit de 400 Td pendant le *pulse*, pendant une durée de  $4.8 \times 10^{-6}$  s, contre  $5 \times 10^{-6}$  s pour Gordillo-Vázquez (2008). À 68 km, il obtient ainsi des concentrations inférieures à celles que nous trouvons. Le *pulse* que l'on applique est en effet plus long :  $8.7 \times 10^{-6}$ . À cette altitude, la durée de pulse de Gordillo-Vázquez (2008) est sous-estimée car elle ne permet pas de respecter la loi de similitude (Équation 25).

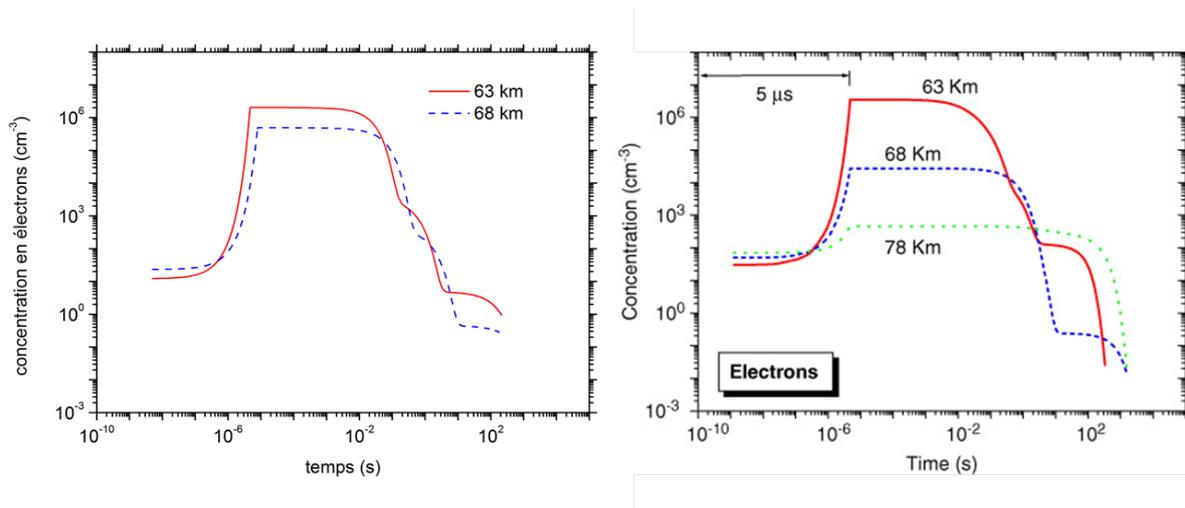


Figure 40 – Comparaison entre les évolutions temporelles des concentrations en électrons calculées ici, à gauche, et par Gordillo-Vázquez (2008), à droite. Pour rappel, l’auteur a utilisé une durée de *pulse* constante avec l’altitude, de 5 μs, contre 8.7 μs dans cette étude, à 63 km.

Pour ce qui est de la durée de vie des électrons, on obtient des résultats similaires à 63 km. À 68 km, les électrons de l’étude de Gordillo-Vázquez (2008) persistent pendant un temps plus long d’un facteur 5. On ne calcule pas le cas à 78 km, qui se trouve hors de la gamme d’altitudes d’intérêt de ce travail.

Les résultats que l’on obtient sont également similaires à ceux des travaux de modélisation cinétique de Parra-Rojas et al. (2015). Leur approche est basée sur une mise à jour du modèle de Gordillo-Vázquez (2008). Ils étudient différentes durées de *pulse* et trouvent des concentrations en électrons de l’ordre de 10<sup>8</sup>, 10<sup>7</sup> et 10<sup>6</sup> cm<sup>-3</sup> à respectivement 50, 60, et 70 km. Aux mêmes altitudes, on trouve 7 × 10<sup>7</sup>, 5 × 10<sup>6</sup> et 3 × 10<sup>5</sup> cm<sup>-3</sup>. Il y a donc toujours moins d’un ordre de grandeur de différence.

De la même façon, on peut comparer l’évolution temporelle obtenue à 70 km à celle de Sentman et al. (2008) (Figure 41). Les concentrations trouvées par Sentman et al. (2008) sont supérieures aux nôtres d’un facteur 3. De même, la durée de vie des électrons est presque un ordre de grandeur supérieure. Ces différences s’expliquent essentiellement par la forme et l’intensité du *pulse* choisi par ces auteurs (fonction gaussienne de 10 ms de largeur à mi-hauteur, intensité maximale de 600 Td).

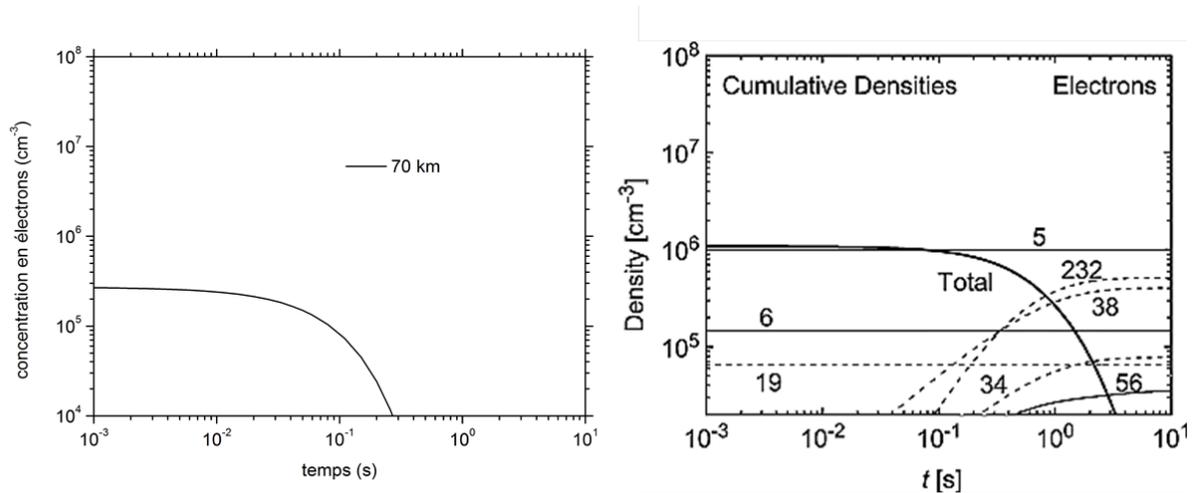


Figure 41 – Comparaison entre évolutions temporelles de la concentration en électrons calculée ici, à gauche, et celle calculée par Sentman et al. (2008), à droite (courbe en gras), à 70 km. Pour rappel, les auteurs ont utilisé une fonction gaussienne pour définir leur *pulse*.

Même si les conditions ne sont pas tout à fait les mêmes, puisque les auteurs simulent les effets de *sprites* en conditions diurnes, on peut mentionner les travaux de Winkler et Notholt (2014). Les effets chimiques d'un *streamer* y sont étudiés entre 30 et 54 km d'altitude. De plus, ils font la même hypothèse sur la production d'électrons par les têtes de *streamer*. Ils utilisent également la loi de similitude (Équation 25). Les résultats à 42 et 54 km sont comparés en Figure 42.

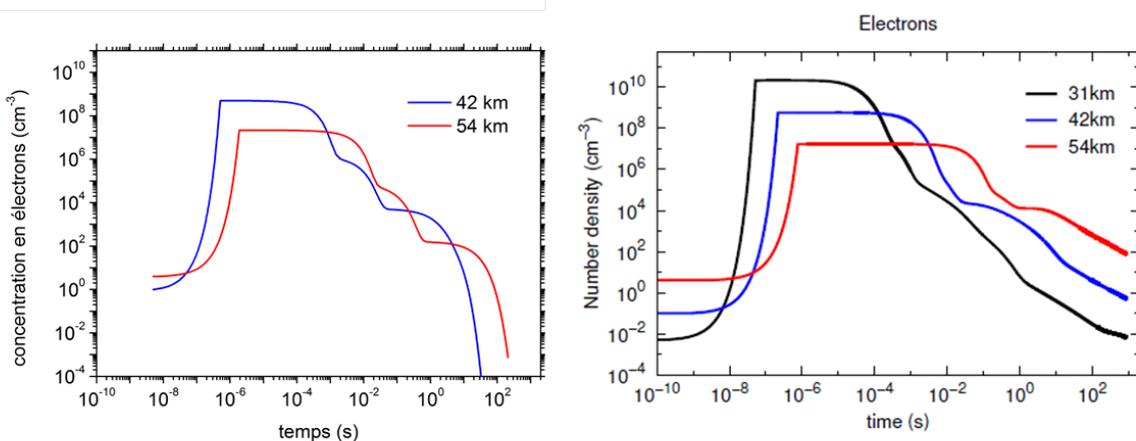


Figure 42 – Comparaison des évolutions temporelles des concentrations en électrons calculées ici, à gauche, et celles de Winkler et Notholt (2014), à droite.

On obtient donc les mêmes concentrations maximales. De plus, la durée du plateau post-*pulse* est comparable sur les deux altitudes en commun. Entre  $10^{-3}$  et  $10^{-4}$  s à 42 km, entre  $10^{-2}$  et  $10^{-1}$  s à 54 km.

Raizer et al. (1998) modélisent la propagation d'un *streamer* positif depuis son initiation, à la base de l'ionosphère, jusqu'à son arrêt, à environ 50 km d'altitude. Leur modèle permet de calculer les évolutions temporelles des concentrations en électrons à toutes altitudes entre 80 et 50 km. Celles-ci sont présentées en Figure 43, à 0.1, 0.2, et 0.3 s après passage de la tête du *streamer*, c'est-à-dire dans le canal.

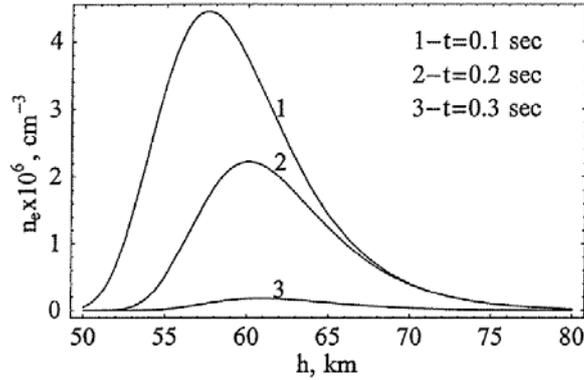


Figure 43 – Profils d’électrons calculés par Raizer et al. (1998), 0.1, 0.2, et 0.3 s après passage d’un *streamer*, entre 50 et 80 km d’altitude.

Les auteurs utilisent un modèle cinétique qui se résume aux phénomènes d’ionisation, d’attachement, et de recombinaison des électrons avec  $\text{O}_2$  et  $\text{N}_2$ . L’évolution temporelle de la concentration en électrons après le *pulse* s’exprime alors en fonction du taux d’attachement ( $\tau_{att}$ ) et de la constante de vitesse de recombinaison ( $\beta$ ) (Équation 46) :

$$\frac{dn_e}{dt} = -\frac{n_e}{\tau_{att}} - \beta n_e^2 \quad \text{Équation 46}$$

Avec la condition en  $t = 0 \text{ s}$  :  $n_e(x, 0) = n_k(x)$ , et  $n_k(x)$  la concentration en électrons laissée immédiatement après le passage de la tête du *streamer* à l’altitude  $x$ . Or, les auteurs définissent cette valeur avec une loi que nous connaissons déjà puisque nous utilisons la même (voir Équation 25). Les concentrations en électrons de Raizer et al. (1998) en fin de *pulse* sont donc exactement les mêmes que celles que l’on obtient.

Pendant la phase de relaxation, le modèle cinétique qu’on utilise, plus complexe, prédit des concentrations comprises entre  $10^4$  et  $10^5 \text{ e}^-/\text{cm}^3$  à  $t = 0.1 \text{ s}$ . Soit un à deux ordres de grandeur de moins que ceux de Raizer et al. (1998) (Figure 43). Cette différence repose sur le nombre de processus pris en compte, sur les constantes de vitesse associées, et sur les champs électriques appliqués. La valeur du champ de Raizer et al. (1998) est en effet variable avec le temps et l’altitude. Raizer et al. (1998) modélisent plus finement les propriétés électriques du *streamer* que ce que l’on fait ici, mais ils utilisent une cinétique très simplifiée. Un couplage entre nos deux approches, électrodynamique et cinétique, constituerait une perspective intéressante.

On peut également mentionner les résultats obtenus à partir de travaux de type modélisation de décharge. Kosar et al. (2012) simulent l’initiation d’un *streamer* à la base de l’ionosphère à partir d’une colonne d’ionisation (*patch*). Après passage de la tête du *streamer*, ils trouvent une concentration maximale de  $10^5$  à  $10^6 \text{ e}^-/\text{cm}^3$  pour une altitude de simulation de 75 km. L’approche similaire de Liu et Pasko (2004) permet de trouver des concentrations de  $5 \times 10^{14}$ ,  $5 \times 10^{10}$  et  $10^6 \text{ e}^-/\text{cm}^3$  à 0, 30 et 70 km respectivement. Sans pouvoir commenter le résultat obtenu pour une simulation à 30 km d’altitude, on peut toutefois noter que, à 0 km, la valeur obtenue par ces auteurs est du même ordre de grandeur que celle qu’on utilise dans l’Équation 25 comme condition à l’altitude 0 ( $10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ).

Afin de continuer dans une logique de validation du modèle, la prochaine section présente les productions des espèces liées aux principales émissions visibles, proche UV, et proche IR des *sprites*. Il existe en effet de nombreux travaux pour tester la validité des résultats obtenus.

## 3.2.2. Évolutions temporelles des espèces liées aux émissions visibles

### 3.2.2.1. Résultats pour les niveaux électroniques de $N_2$ , $N_2^+$ et NO

Le Tableau 14 rappelle les processus à l'origine des émissions visibles, proche UV et proche IR dans les *sprites*, et distingue ceux que l'on considère comme principaux et secondaires. Seules les transitions qui font appel à des niveaux supportés par le modèle sont incluses. La bande de Meinel, parfois observée dans certains *sprites*, ne sera pas traitée<sup>20</sup>.

Nom de la bande d'émission	Processus d'émission	Gamme spectrale	Coefficients d'Einstein A ( $s^{-1}$ )	Numéro de réaction
Processus principaux				
Premier système positif de $N_2$	$N_2(B^3\Pi_g) \rightarrow N_2(A^3\Sigma_u^+) + h\nu$	Émissions entre 500 – 850 nm	$1.340 \times 10^5$	413
Second système positif de $N_2$	$N_2(C^3\Pi_u) \rightarrow N_2(B^3\Pi_g) + h\nu$	Émissions entre 230 – 460 nm	$2.450 \times 10^7$	414
Premier système négatif de $N_2^+$	$N_2^+(B^2\Sigma_u^+) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma_g^+) + h\nu$	Émissions autour de 428 nm	$1.580 \times 10^7$	415
Processus secondaires				
Bande NO gamma	$NO(A^2\Sigma^+) \rightarrow NO(X^2\Pi) + h\nu$	UV	$5.000 \times 10^6$	416
Bande de Lyman-Birge-Hopfield	$N_2(a^1\Pi_g) \rightarrow N_2(X^1\Sigma_g^+) + h\nu$		$8.550 \times 10^3$	423

Tableau 14 – Processus d'émissions visibles, principaux et secondaires, dans les *sprites*. Les espèces  $N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$ ,  $NO(X^2\Pi)$ , et  $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ , correspondent aux états fondamentaux de  $N_2^+$ , NO, et  $N_2$ . Le coefficient d'Einstein A correspond à l'émission spontanée (voir « 2.2.2.1 »).

Contrairement aux espèces  $N_2(B^3\Pi_g)$  et  $N_2(C^3\Pi_u)$ , produites à partir d'un réservoir extrêmement abondant de  $N_2$  (le diazote représente environ 78 % des espèces atmosphériques), l'espèce  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$  est essentiellement produite à partir de l'excitation directe de  $N_2^+$  par un électron. En conditions standard, aux altitudes que l'on considère, sa concentration est donc pratiquement nulle. Les émissions du premier système négatif de  $N_2^+$  requièrent la production préalable du cation  $N_2^+$ , par ionisation. Les évolutions temporelles des concentrations de  $N_2^+$  sont présentées dans la Figure 44.

<sup>20</sup> Pour étudier cette transition, il faudrait compléter le modèle cinétique avec les réactions qui font intervenir  $N_2^+(A^2\Pi_u)$ , voir le Tableau 4.

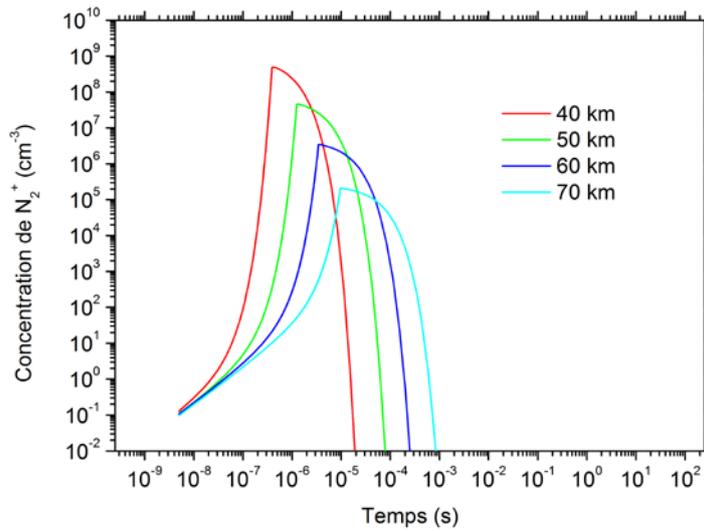


Figure 44 – Évolutions temporelles des concentrations de  $N_2^+$ .

Les concentrations maximum sont atteintes à la fin du *pulse*. Elles sont respectivement de  $7 \times 10^8$ ,  $6 \times 10^7$ ,  $4 \times 10^6$ , et  $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$  à 40, 50, 60, et 70 km. Ensuite, elles décroissent principalement à cause des processus de transfert de charge (Tableau 15), qui deviennent prédominants pendant la relaxation.

Réaction	Constante de vitesse ( $\text{cm}^3/\text{s}$ )	Numéro de réaction
$N_2^+ + O_2 \rightarrow N_2 + O_2^+$	$6.000 \times 10^{-11} \times (T_g / 300)^{-0,5}$	320
$N_2^+ + N_2 + N_2 \rightarrow N_4^+ + N_2$	$5.200 \times 10^{-29} \times (T_g / 300)^{-2,2}$	325

Tableau 15 – Processus à l'origine de la décroissance des concentrations de  $N_2^+$  pendant la phase de relaxation. «  $T_g$  » correspond à la température cinétique du gaz à une altitude donnée.

On sait que, pendant toute la simulation, la concentration totale de  $N_2$  (somme des concentrations de l'état fondamental et des états excités) est constante. Connaissant le comportement de cette espèce réservoir, et celui de  $N_2^+$ , on peut discuter les évolutions temporelles des concentrations des espèces  $N_2(B^3\Pi_g)$ ,  $N_2(C^3\Pi_u)$ , et  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$  (Figure 45).

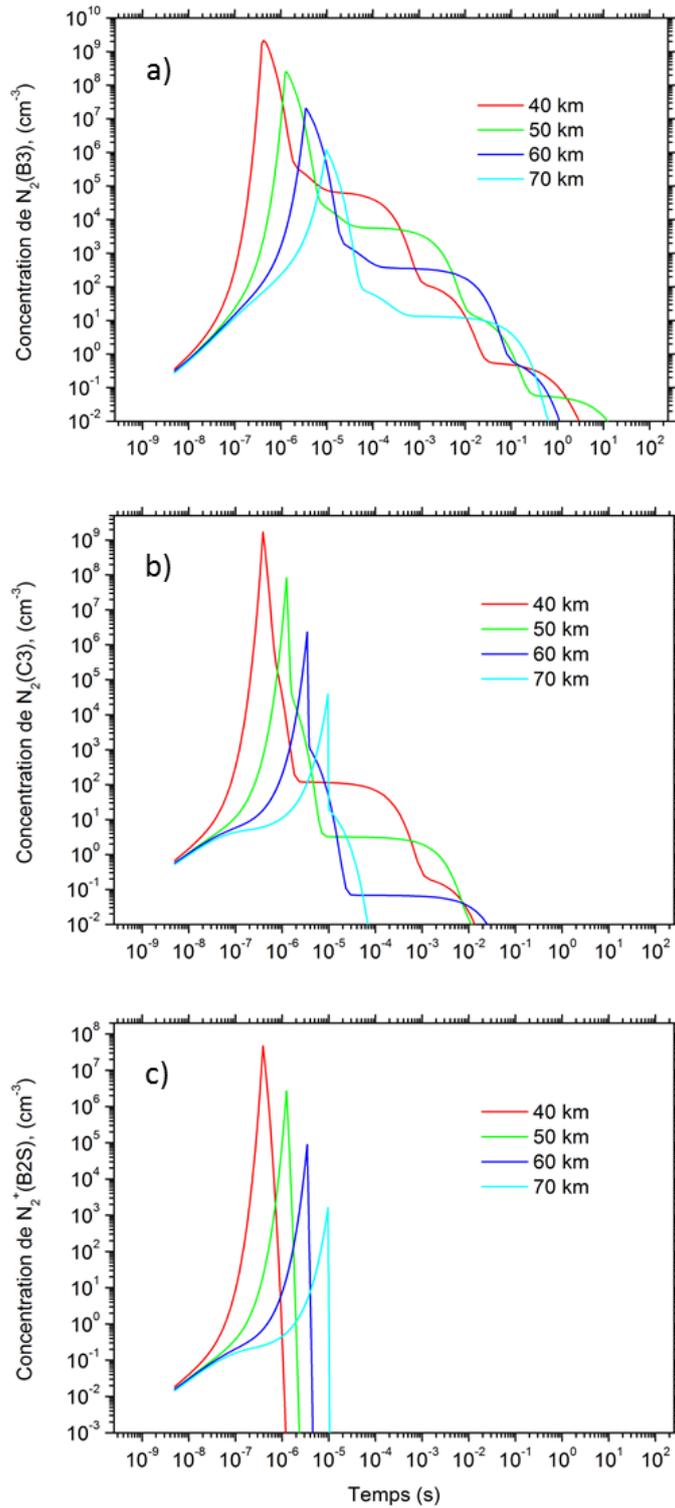


Figure 45 – Évolutions temporelles des espèces responsables des principales émissions visibles dans les *sprites*. En a), l'espèce  $N_2(B^3\Pi_g)$ . En b), l'espèce  $N_2(C^3\Pi_u)$ . En c), l'espèce  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ .

La croissance exponentielle des concentrations des trois espèces ci-dessus est fortement corrélée à celle des électrons. Les transferts d'énergie entre électrons et niveaux électroniques sont particulièrement rapides. Les processus d'excitation et coefficients dépendants du champ électrique responsable de la production de ces niveaux électroniques sont donnés dans le Tableau 16.

Réaction	Constantes de vitesse pendant le <i>pulse</i> (cm <sup>3</sup> /s ou cm <sup>6</sup> /s)	Constantes de vitesse, pendant la relaxation (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
$N_2 + e \rightarrow N_2(a1Pi) + e$	$1.314 \times 10^{-9}$	$9.022 \times 10^{-16}$	19
$N_2 + e \rightarrow N_2(B3Pi) + e$	$1.544 \times 10^{-9}$	$1.186 \times 10^{-14}$	21
$N_2 + e \rightarrow N_2(C3Pi) + e$	$3.449 \times 10^{-9}$	$8.893 \times 10^{-17}$	22
$N_2 + e \rightarrow N_2(B2S)^+ + e + e$	$9.475 \times 10^{-11}$	0.000	24

Tableau 16 – Processus d’excitation des niveaux électroniques de  $N_2$  et  $N_2^+$  à l’origine de rayonnement visible dans les *sprites* et constantes de vitesse associées.

Les constantes de vitesse pendant la phase de relaxation deviennent très faibles, voire nulles. Ceci ne permet pas de continuer à produire significativement ces niveaux électroniques, même si la concentration des électrons du plateau post-*pulse* est toujours maximale (on a vu que celle-ci persiste  $\sim 10^{-4}$ ,  $10^{-3}$ ,  $10^{-2}$ ,  $10^{-1}$  s à 40, 50, 60 et 70 km).

De plus, ces niveaux électroniques sont rapidement dépeuplés par des processus d’émission spontanée, justement à l’origine du rayonnement visible des *sprites* (Tableau 14). Les processus radiatifs permettent également de produire les espèces  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  et  $N_2(B^3\Pi_g)$  par cascade radiative (Tableau 14). Dans une moindre mesure, des processus de *quenching* avec les principaux composants atmosphériques, ainsi que des échanges d’énergie électronique et translationnelle, participent à leur décroissance. Ceux-ci sont recensés dans le Tableau 17.

Réaction	Constantes de vitesse (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
$N_2(C3Pi) + N_2 \rightarrow N_2(ap1S) + N_2$	$10^{-11}$	235
$N_2(C3Pi) + O_2 \rightarrow N_2 + O + O(1S)$	$3.000 \times 10^{-10}$	236
$N_2(B3Pi) + O_2 \rightarrow N_2 + O + O$	$3.000 \times 10^{-10}$	239
$N_2(B3Pi) + N_2 \rightarrow N_2(A3S) + N_2$	$3.000 \times 10^{-11}$	237
$N_2(B3Pi) + N_2 \rightarrow 2N_2$	$2.000 \times 10^{-12}$	238

Tableau 17 – Processus collisionnels à l’origine de la décroissance des niveaux électroniques. Ceux-ci sont de moindre importance par rapport à ceux d’émission spontanée.

Notons que la concentration des trois espèces responsables des principales émissions visibles dans les *sprites* décroît toujours à des valeurs négligeables avant 0.1 s (Figure 45). Ce qui est cohérent avec les différentes observations qui ont permis de mesurer la durée des émissions visibles des *sprites* à 10 – 100 ms (voir section « 1.5.2.2 »).

Abordons maintenant le cas des espèces désignées comme secondaires dans le Tableau 14. Les évolutions temporelles des concentrations des espèces  $\text{NO}(A^2\Sigma^+)$  et  $\text{N}_2(a^1\Pi_g)$  sont présentées dans la Figure 46.

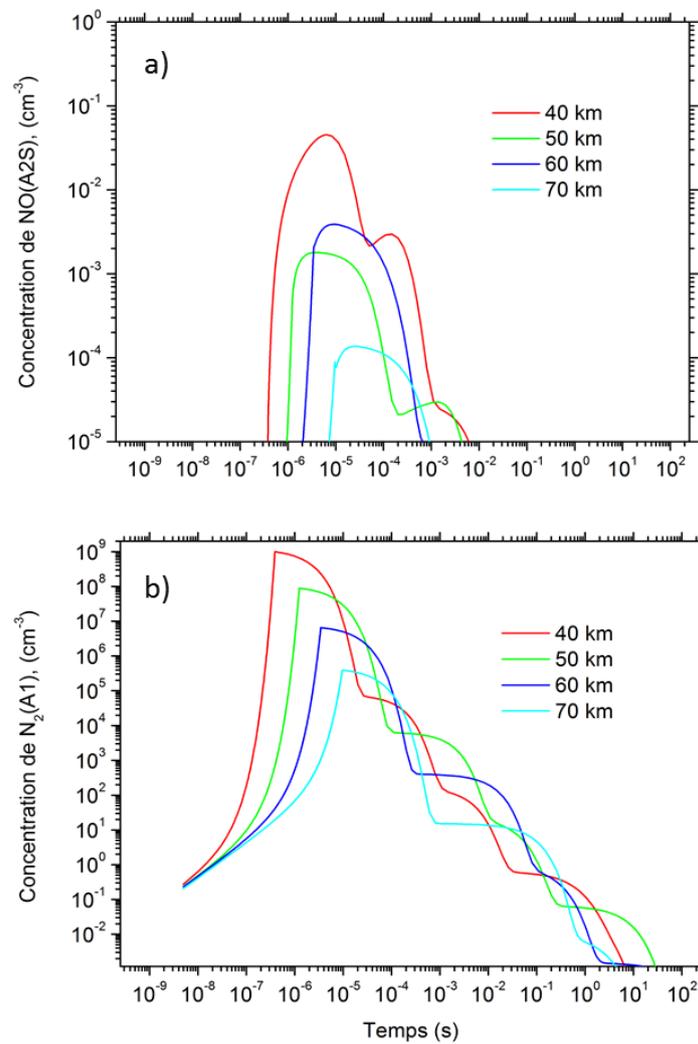


Figure 46 – Évolutions temporelles des concentrations des espèces responsables des émissions d'importance secondaire dans les *sprites*. En a), l'espèce  $\text{NO}(A^2\Sigma^+)$ . En b), l'espèce  $\text{N}_2(a^1\Pi_g)$ .

L'espèce  $\text{NO}(A^2\Sigma^+)$  est produite par collision avec des électrons et par transfert d'énergie électronique (Tableau 18).

Réaction	Constantes de vitesse pendant le <i>pulse</i> (cm <sup>3</sup> /s ou cm <sup>6</sup> /s)	Constantes de vitesse, pendant la relaxation (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
NO + e → NO(A2S) + e	1.243 × 10 <sup>-10</sup>	4.805 × 10 <sup>-15</sup>	42
N <sub>2</sub> (A3S) + NO → N <sub>2</sub> + NO(A2S)	8.750 × 10 <sup>-11</sup>		284

Tableau 18 – Processus à l’origine de la production de l’espèce NO(A<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup>) et constantes de vitesse associées.

Les pertes de NO(A<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup>) sont issues de processus de *quenching*. Ils sont présentés dans le Tableau 19.

Réaction	Constantes de vitesse (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
NO(A2S) + O <sub>2</sub> → NO + O <sub>2</sub>	1.620 × 10 <sup>-10</sup>	285
NO(A2S) + N <sub>2</sub> → NO + N <sub>2</sub> (A3S)	5.000 × 10 <sup>-14</sup>	286

Tableau 19 – Processus à l’origine de la décroissance des concentrations de NO(A<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup>) et constantes de vitesse associées.

Il faut ajouter le processus radiatif d’émission spontanée de NO(A<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup>), qui contribue de façon également importante à sa décroissance (voir Tableau 14).

La production de N<sub>2</sub>(a<sup>1</sup>Π<sub>g</sub>) provient exclusivement du processus de collision 19 (impact direct de N<sub>2</sub> avec un électron, voir l’annexe « 7.2.1 »). Pendant la phase de *pulse*, le coefficient associé atteint 1.34 × 10<sup>-9</sup> cm<sup>3</sup>/s contre 9.02 × 10<sup>-16</sup> cm<sup>3</sup>/s pendant la phase de relaxation. Le N<sub>2</sub>(a<sup>1</sup>Π<sub>g</sub>) est consommé par des processus de *quenching* (Tableau 20), et un processus d’émission spontanée (Tableau 14).

Réaction	Constantes de vitesse (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
N <sub>2</sub> (a1Pi) + O <sub>2</sub> → N <sub>2</sub> + 2O	2.800 × 10 <sup>-11</sup>	227
N <sub>2</sub> (a1Pi) + N <sub>2</sub> → N <sub>2</sub> + N <sub>2</sub>	2.000 × 10 <sup>-13</sup>	228
N <sub>2</sub> (a1Pi) + NO → N <sub>2</sub> + N + O	3.600 × 10 <sup>-10</sup>	229
N <sub>2</sub> (a1Pi) + N <sub>2</sub> (a1Pi) → N <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> <sup>+</sup> + e	2.000 × 10 <sup>-10</sup>	226

Tableau 20 – Processus à l’origine de la décroissance des concentrations de N<sub>2</sub>(a<sup>1</sup>Π<sub>g</sub>) et constantes de vitesse associées.

Les évolutions temporelles de ces deux dernières espèces, obtenues ici, indiquent que l’espèce NO(A<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup>) ne pourra pas conduire à des émissions importantes (dans l’UV). L’espèce N<sub>2</sub>(a<sup>1</sup>Π<sub>g</sub>), au contraire, présente une augmentation considérable. À ce propos, on peut faire la même remarque

que pour les trois niveaux électroniques principaux décrits avant, à savoir que celui-ci décroît à des concentrations négligeables avant 0.1 s, ce qui est toujours cohérent avec les observations.

En utilisant l'évolution temporelle des concentrations des espèces présentées dans cette section ainsi que les coefficients d'Einstein d'émission spontanée des transitions associées à ces espèces, on peut calculer le *Volume Emission Rate* (VER, Équation 34). On caractérise ainsi l'émission de photons par unité de temps, par unité de volume, et pour une transition donnée. Lorsqu'il s'agit d'étudier les espèces à l'origine des émissions visibles des *sprites*, les auteurs utilisent plutôt cette expression que celle de concentration.

### 3.2.2.2. Validation des processus d'émission visible

Commençons par examiner le cas des premiers et seconds systèmes positifs de  $N_2$  ( $1PN_2$ ,  $2PN_2$ ), issus de l'émission spontanée des espèces  $N_2(B^3\Pi_g)$  et  $N_2(C^3\Pi_u)$  respectivement. Les VERs calculés à partir des évolutions temporelles des concentrations de ces espèces sont comparés aux résultats de Sentman et al. (2008), en Figure 47.

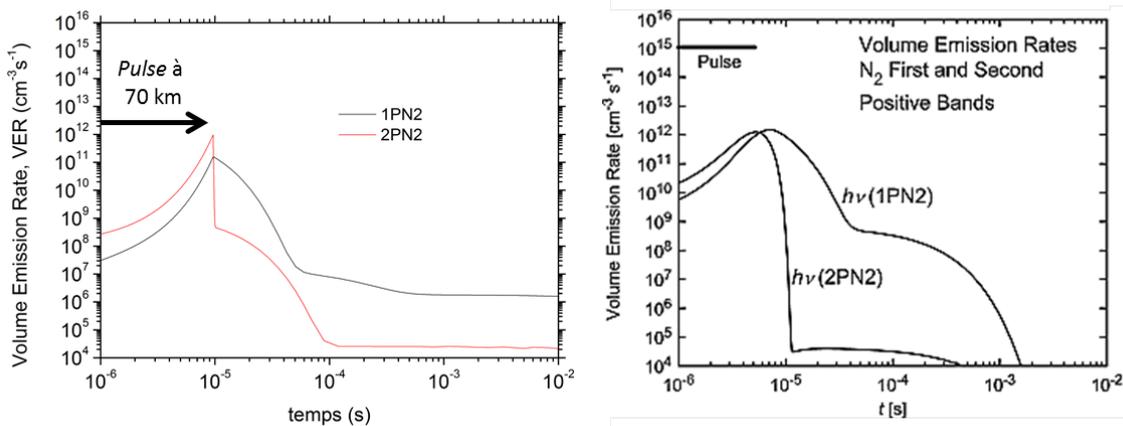


Figure 47 – Comparaison entre l'évolution temporelle des VERs des premiers et seconds systèmes positifs de  $N_2$  ( $1PN_2$  et  $2PN_2$ ), à 70 km d'altitude, calculés ici, à gauche, et ceux de Sentman et al. (2008), à droite.

Le VER maximum obtenu ici atteint  $2 \times 10^{11}$  et  $10^{12} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ , pour  $1PN_2$  et  $2PN_2$ , à la fin du *pulse*. Soit, pour  $1PN_2$ , un résultat inférieur d'un facteur 5 à celui de Sentman et al. (2008). Pour  $2PN_2$ , les résultats sont identiques (Figure 47).

Par ailleurs, Stenbaek-Nielsen et al. (2007) ont estimé, à partir d'enregistrements vidéo à haute cadence (10000 ips, images par seconde), le VER de  $1PN_2$  intégré sur le volume des têtes de *streamers* à 75 km d'altitude. Les observations ont eu lieu depuis le *Langmuir Observatory*, au Nouveau Mexique, avec une caméra Phantom-7, de type CMOS (*Complementary Metal Oxide Semiconductor*), sensible entre 400 et 900 nm. En faisant l'hypothèse de têtes de *streamers* de forme sphérique et de quelques dizaines à centaines de mètres de diamètre, ils trouvaient un VER total compris entre  $10^{21}$  et  $10^{24}$  photons/s. En réalisant le même calcul à partir de nos résultats, et en considérant un diamètre de tête de 50 mètres ( $r = 25 \text{ m}$ ), on trouve un VER total de  $2 \times 10^{11} \times 4/3\pi r^3 = 1.3 \times 10^{22}$  photons/s à 70 km d'altitude. Cette estimation est cohérente avec la gamme déduite par Stenbaek-Nielsen et al. (2007).

À partir des VERs, ainsi que des hypothèses sur les dimensions des *streamers*, on peut calculer l'*Emission Brightness* (EB, Équation 35), qui correspond à l'intégration du VER sur un segment de ligne de visée traversant un *streamer*. En faisant cette fois-ci l'hypothèse d'un *streamer* de 25 m de diamètre, et d'une ligne de visée qui traverse perpendiculairement le canal, on obtient les EBs présentées dans la Figure 48.

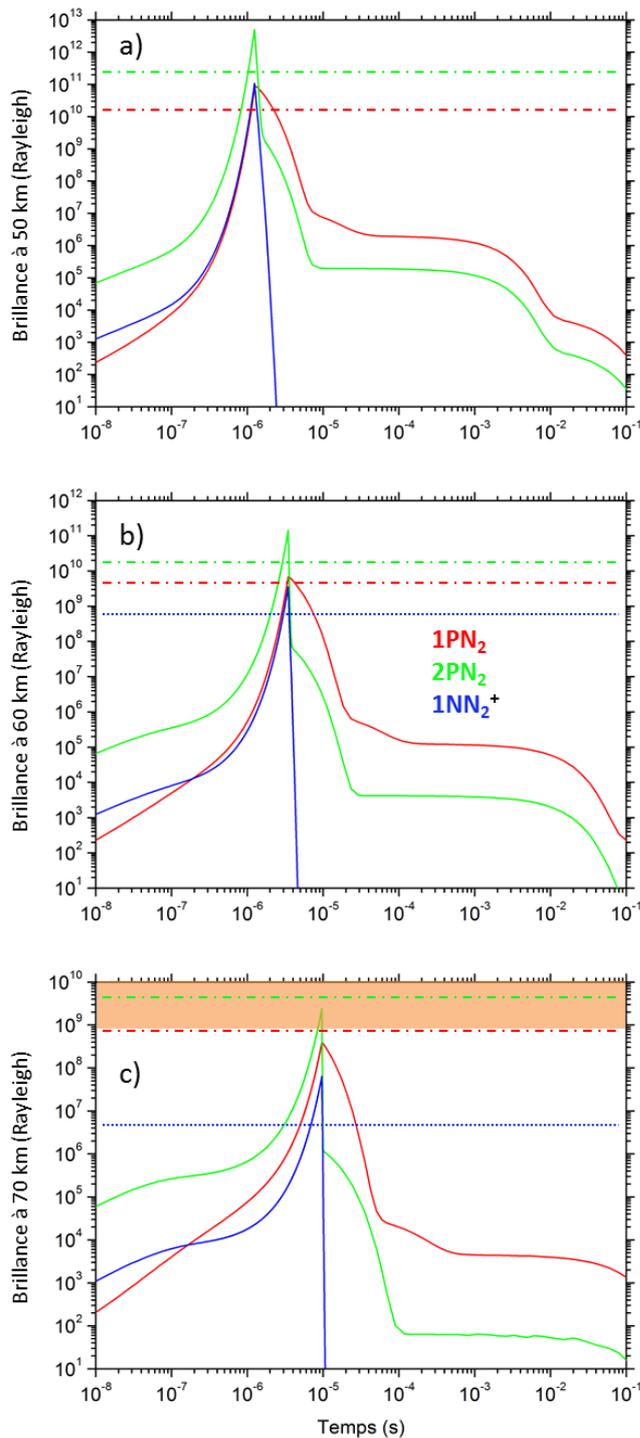


Figure 48 – Évolutions temporelles des EBs de 1PN<sub>2</sub>, 2PN<sub>2</sub>, et 1NN<sub>2</sub><sup>+</sup>. Calculs réalisés à 50 km en a), à 60 km en b), et à 70 km, en c). En traits tirés-pointillés ont été ajoutées les EBs maximales de 1PN<sub>2</sub> et 2PN<sub>2</sub> calculées par (Parra-Rojas et al. 2015) aux mêmes altitudes. En traits pointillés bleus, les EBs maximales de (Gordillo-Vázquez 2008), calculées à 63 km (représentée en b), et à 68 km (représentée en c). En c), la plage colorée en orange correspond à la gamme d'émissions totales estimées par Stenbaek-Nielsen et al. (2007), entre 70 - 75 km d'altitude. La limite haute de cette gamme n'est pas représentée sur la figure, celle-ci est de  $5 \times 10^{11}$  R (Rayleigh).

Pour  $1\text{PN}_2$ , le maximum d'EB est respectivement de  $10^{11}$ ,  $6 \times 10^9$ , et  $4 \times 10^8$  R à 50, 60, et 70 km. Aux mêmes altitudes, et pour une même dimension de *streamer*, Parra-Rojas et al. (2015) trouvent  $2 \times 10^{10}$ ,  $5 \times 10^9$ , et  $3 \times 10^8$  R. De la même façon, on trouve des maximums pour  $2\text{PN}_2$  de  $5 \times 10^{12}$ ,  $10^{11}$ , et  $3 \times 10^9$  R, contre  $3 \times 10^{11}$ ,  $2 \times 10^{10}$ , et  $5 \times 10^9$  R pour Parra-Rojas et al. (2015). Pour  $1\text{NN}_2^+$ , on trouve  $10^{11}$ ,  $3 \times 10^9$ , et  $5 \times 10^7$  R à 50, 60, et 70 km. Des calculs similaires ont été réalisés par Gordillo-Vázquez (2008), à des altitudes de 63 et 68 km notamment, et ont permis d'estimer l'EB maximale à  $6 \times 10^8$  et  $5 \times 10^6$  R respectivement. Enfin, on compare les résultats obtenus sur les trois principales bandes visibles aux estimations d'EB totales de Stenbaek-Nielsen et al. (2007). Ils estiment que la gamme de brillance est comprise entre  $9 \times 10^8$  et  $5 \times 10^{11}$  R. En sommant les résultats des trois principales contributions visibles, à 70 km, on obtient environ  $3.45 \times 10^9$  R. Ce qui est compris dans cette gamme (pour rappel, le calcul de Stenbaek-Nielsen et al. (2007) est réalisé à 75 km). Les résultats à 40 km ne sont pas discutés. Il n'existe pas de travaux sur lesquels valider les EBs pour cette altitude.

### 3.3. Évolutions temporelles des concentrations des espèces vibrationnelles liées aux émissions infrarouges

Les processus d'émission de rayonnement infrarouge dans les *sprites* ont été discutés en section « 1.5.2.4 ». Pour reprendre de façon schématique, les électrons produits par ionisation pendant la phase de *pulse* peuplent les niveaux vibrationnels de  $\text{N}_2$  par collision inélastique. Ce transfert d'énergie est maximal pendant la phase « plateau post-*pulse* » de la concentration en électrons (voir « 3.2.1 »), et continue jusqu'à ce qu'il n'y ait plus (trop peu) d'électrons libres disponibles pour effectuer des collisions. Ensuite, les niveaux vibrationnels de  $\text{N}_2$  échangent une partie de leur énergie avec l'espèce  $\text{CO}_2(001)$ . La différence d'énergie entre deux états vibrationnels de  $\text{N}_2$  est en effet d'environ 0.29 eV, tout comme l'énergie seuil de  $\text{CO}_2(001)$ . Ce qui constitue une condition idéale pour des échanges résonnants que l'on a qualifiés de V-V (vibration – vibration) dans la section « 2.2.1 ». Ensuite, les autres niveaux vibrationnels de  $\text{CO}_2$ , (010) et (100), d'énergies seuil moins élevées, sont peuplés par cascade radiative et collisionnelle. Cette procédure, simplifiée, est schématisée en Figure 49.

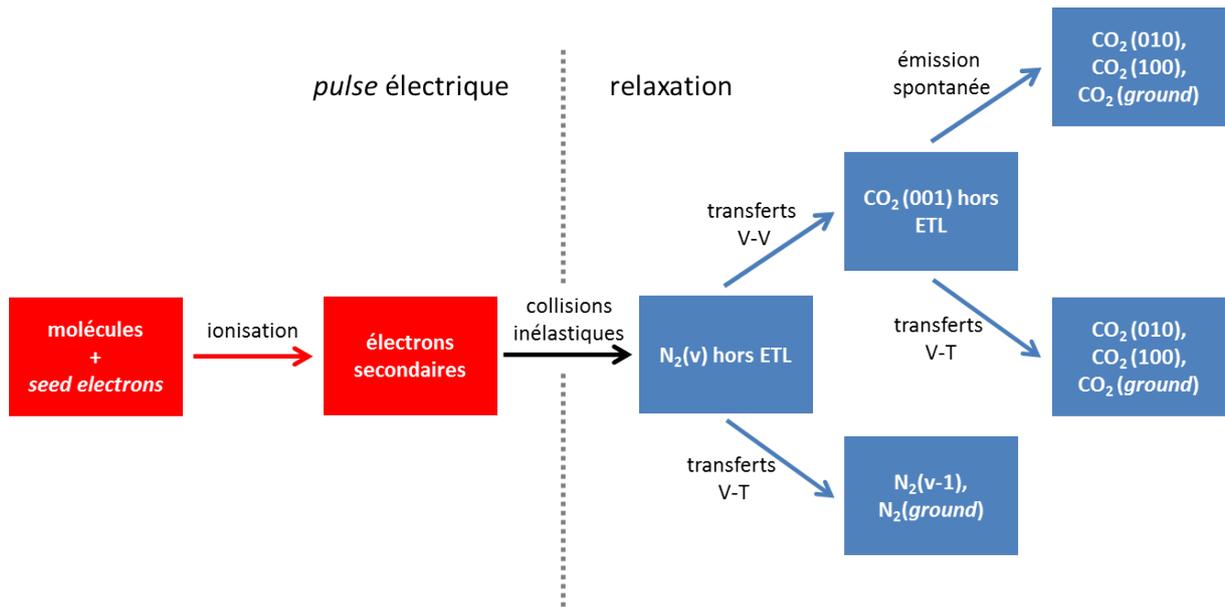


Figure 49 – Procédé schématique de population du CO<sub>2</sub> vibrationnel et émissions radiatives consécutives. Une espèce notée (*ground*) correspond à l'état fondamental.

### 3.3.1. Évolutions temporelles des concentrations des états vibrationnels de N<sub>2</sub>

Les évolutions temporelles des concentrations des 8 niveaux vibrationnels de N<sub>2</sub> inclus dans le modèle sont présentées dans les deux figures suivantes (Figure 50 et Figure 51).

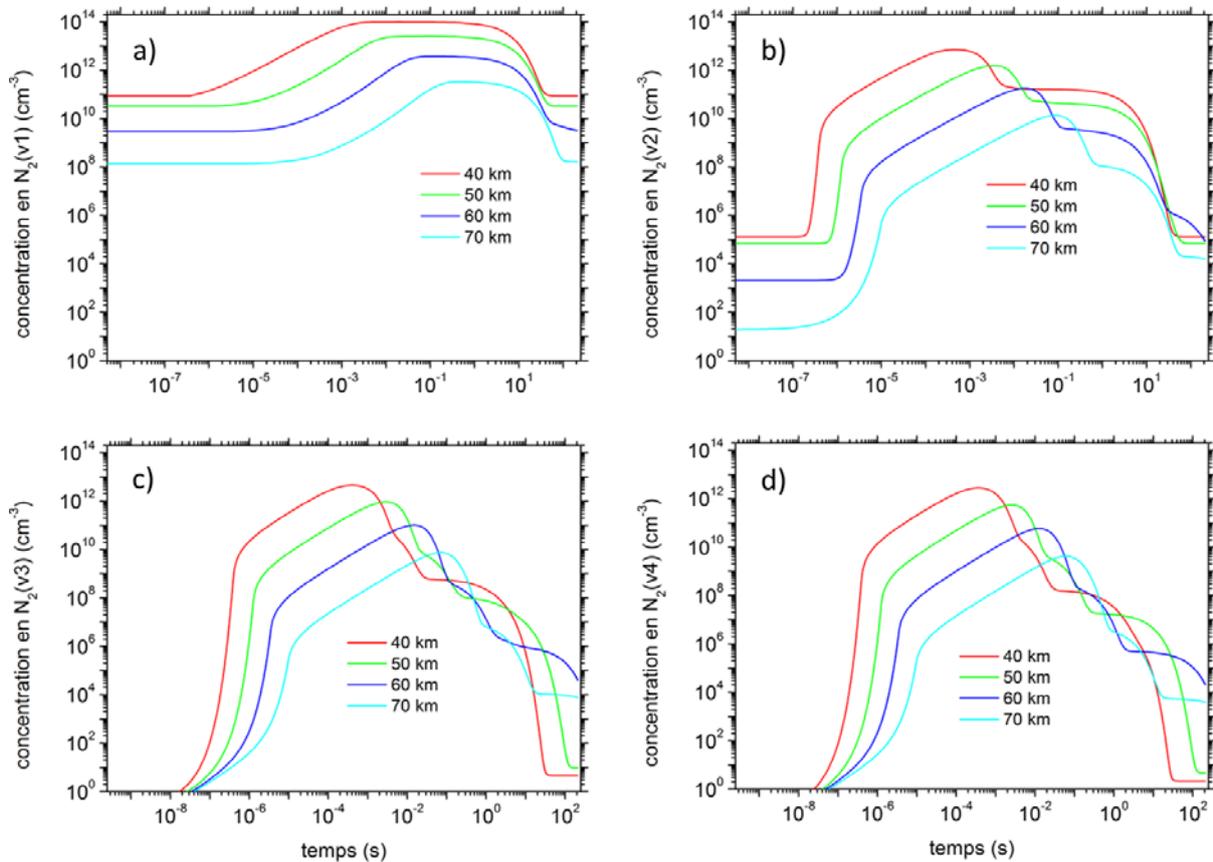


Figure 50 – Évolutions temporelles des concentrations des quatre premiers niveaux vibrationnels de  $N_2$ . Leurs énergies seuil sont données dans la section « 2.1.2 ». En a), le premier niveau vibrationnel, en b), le deuxième, en c), le troisième, en d), le quatrième.

Les premier et deuxième niveaux vibrationnels de  $N_2$  ont des énergies seuil de respectivement 0.291 et 0.590 eV. Énergies suffisamment basses pour que ces niveaux soient déjà peuplés en conditions non perturbées, à l'ETL. Leurs concentrations en début de simulation correspondent à la concentration initialisée suivant la distribution de Maxwell-Boltzmann puisque les électrons n'ont pas encore affecté ces populations. Les concentrations commencent à véritablement dévier de l'ETL à la fin du *pulse*. Celles-ci atteignent, pour le premier niveau, des concentrations de  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$  à 40 km d'altitude. Pour comparaison, la concentration en  $N_2$  fondamental est d'environ  $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  à cette même altitude. Les niveaux suivants, bien que leurs concentrations maximales soient inférieures, sont quand même fortement peuplés. À 40 km, les concentrations des niveaux 2, 3, et 4 atteignent respectivement  $10^{13}$ ,  $7 \times 10^{12}$ , et  $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . Trente kilomètres plus haut, à 70 km, les concentrations maximales sont, pour les niveaux 1 à 4, de  $5 \times 10^{11}$ ,  $2 \times 10^{10}$ ,  $10^{10}$ , et  $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ . Autre aspect intéressant, ces populations demeurent à des concentrations considérablement élevées pendant plusieurs secondes à dizaines de secondes avant de retomber à leurs concentrations à l'ETL.

Les évolutions temporelles des concentrations des 4 niveaux suivants, 5 à 8, sont présentées en (Figure 51) :

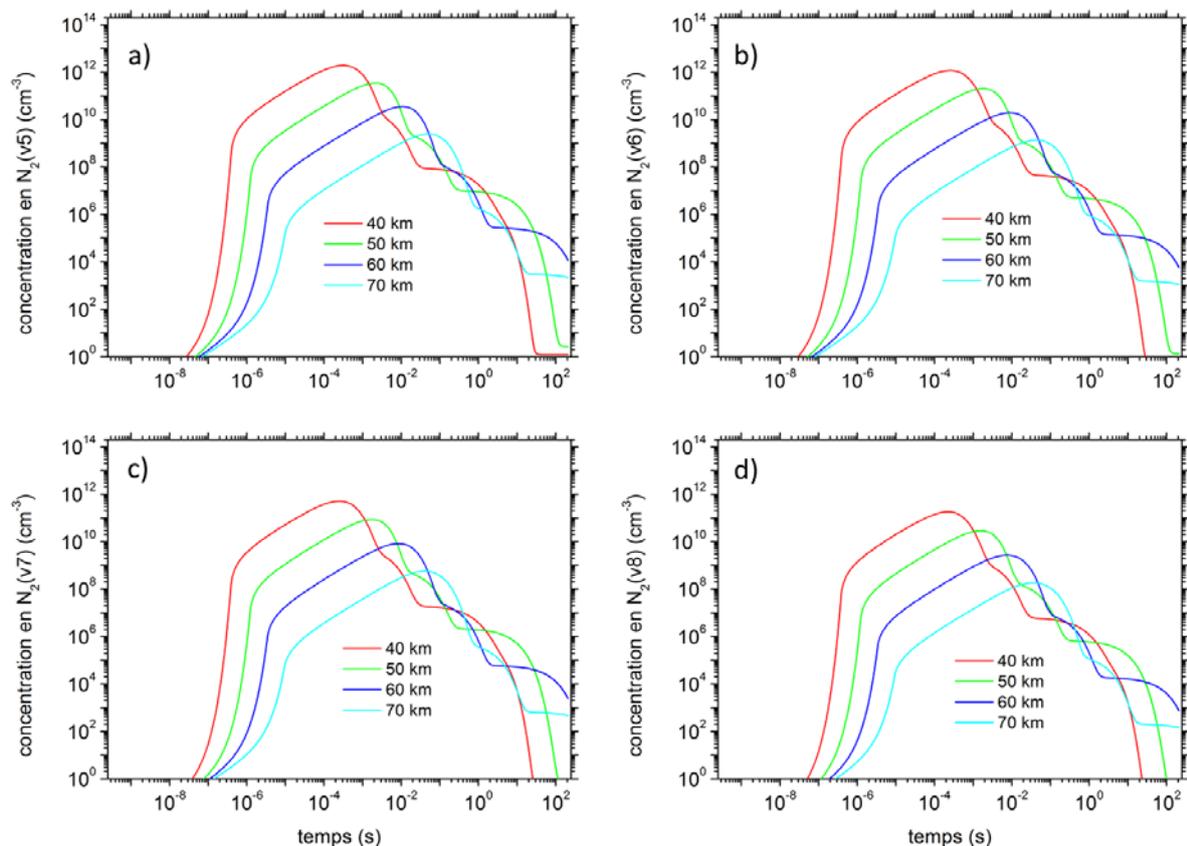


Figure 51 – Évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels 5 à 8 de  $N_2$ . Leurs énergies seuil sont données dans la section « 2.1.2 ». En a), le cinquième niveau vibrationnel, en b), le sixième, en c), le septième, en d), le huitième.

À 40 km, les concentrations des niveaux 5, 6, 7, et 8 atteignent respectivement  $1.5 \times 10^{12}$ ,  $10^{12}$ ,  $9 \times 10^{11}$ , et  $2 \times 10^{11} cm^{-3}$ . À 70 km, les concentrations maximales sont de  $2 \times 10^9$ ,  $10^9$ ,  $8 \times 10^8$ , et  $2 \times 10^8 cm^{-3}$  et persistent pendant une durée similaire de quelques secondes à quelques dizaines de secondes.

Les processus collisionnels électrons – diazote, influents dans l'évolution des concentrations de ces espèces vibrationnelles, sont recensés dans le Tableau 21. Précisons que ces processus sont de type superélastique, on considère donc leur sens direct, ainsi que le sens inverse.

Réaction	Constantes de vitesse pendant la <i>pulse</i> (cm <sup>3</sup> /s)	Constantes de vitesse, pendant la relaxation (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
Sens direct			
$N_2(\text{ground}) + e \rightarrow N_2(v_i) + e$	$1.891 \times 10^{-9}$ à $9.851 \times 10^{-11}$	$2.100 \times 10^{-9}$ à $5.304 \times 10^{-11}$	3 à 10
$N_2(v_j) + e \rightarrow N_2(v_{j+1}) + e$	$2.672 \times 10^{-9}$ à $2.199 \times 10^{-9}$	$2.927 \times 10^{-9}$ à $1.329 \times 10^{-9}$	11 à 17
Sens inverse			
$N_2(v_i) + e \rightarrow N_2(\text{ground}) + e$	$2.000 \times 10^{-9}$ à $1.348 \times 10^{-10}$	$3.415 \times 10^{-9}$ à $2.664 \times 10^{-9}$	3 à 10
$N_2(v_{j+1}) + e \rightarrow N_2(v_j) + e$	$2.795 \times 10^{-9}$ à $2.274 \times 10^{-9}$	$4.818 \times 10^{-9}$ à $2.155 \times 10^{-9}$	11 à 17

Tableau 21 – Processus collisionnels entre électrons et N<sub>2</sub>, et constantes de vitesses associés, pendant les phases de *pulse* et de relaxation.

Notons que, pour les niveaux vibrationnels de plus basses énergies seuil (niveaux 1 à 4), pendant la phase de relaxation, les constantes de vitesses sont élevées, et même supérieures à celles pendant la phase de *pulse*. Contrairement aux niveaux électroniques, dont les énergies sont de l'ordre de quelques eV à quelques dizaines d'eV, les niveaux vibrationnels ont des énergies de l'ordre de quelques dixièmes d'eV (quelques eV pour les niveaux les plus élevés). L'énergie moyenne des électrons pendant la relaxation (environ 0.9 eV), avec un champ plus faible de 30 Td, est plus proche des énergies des plus bas niveaux de N<sub>2</sub> et favorise les échanges d'énergie par collisions (voir « 2.2.2.2.1 »).

Les populations de N<sub>2</sub>(v) sont également influencées par un jeu de réactions de type V-V et V-T. Celles-ci sont présentées dans le Tableau 22. Elles permettent d'introduire le principal processus de population de CO<sub>2</sub>(001) : le transfert V-V.

Réaction	Constantes de vitesse (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
Sens direct		
$N_2(v_1) + N_2(v_j) \rightarrow N_2(v_{j+1}) + N_2(\text{ground})$	$3.000 \times 10^{-14} \text{ à } 5 \times 10^{-14}$	98 à 104
$N_2(v_j) + N_2(\text{ground}) \rightarrow N_2(v_{j-1}) + N_2(\text{ground})$	$3.500 \times 10^{-21} \text{ à } 10^{-19}$	105 à 112
$N_2(v_j) + M \rightarrow N_2(v_{j-1}) + M$ , avec M=[O, N]	$2.300 \times 10^{-13} \times \exp(-1280/T_g) + 2.700 \times 10^{-11} \times \exp(-10840/T_g)$	113 à 128
$N_2(v_1) + CO_2(\text{ground}) \rightarrow N_2(\text{ground}) + CO_2(\text{ground})$	$1.100 \times 10^{-12} \times T_g \times \exp((-218/(T_g^{1/3})) + (690/T_g)) \times (1 - \exp(-3375.19/T_g))^{-1}$	129
$N_2(v_i) + CO_2(\text{ground}) \rightarrow N_2(v_{i-1}) + CO_2(001)$	$3.960 \times 10^{-13}$	144 à 151
Sens inverse		
$N_2(v_{j+1}) + N_2(\text{ground}) \rightarrow N_2(v_1) + N_2(v_j)$	$3.000 \times 10^{-14} \text{ à } 5 \times 10^{-14}$	98 à 104
$N_2(v_{j-1}) + N_2(\text{ground}) \rightarrow N_2(v_j) + N_2(\text{ground})$	$(3.500 \times 10^{-21} \text{ à } 1.000 \times 10^{-19}) \times \exp(-4.650 \times 10^{-20}/(k_b \times T_g))$	105 à 112
$N_2(v_{j-1}) + M \rightarrow N_2(v_j) + M$ , avec M=[O, N]	$2.300 \times 10^{-13} \times \exp(-1280/T_g) + 2.700 \times 10^{-11} \times \exp(-10840/T_g) \times \exp(-4.650 \times 10^{-20}/(k_b \times T_g))$	113 à 128
$N_2(\text{ground}) + CO_2(\text{ground}) \rightarrow N_2(v_1) + CO_2(\text{ground})$	$1.100 \times 10^{-12} \times T_g \times \exp((-218/(T_g^{1/3})) + (690/T_g)) \times (1 - \exp(-3375.19/T_g))^{-1} \times \exp(-4.650 \times 10^{-20}/(k_b \times T_g))$	129
$N_2(v_{i-1}) + CO_2(001) \rightarrow N_2(v_i) + CO_2(\text{ground})$	$4.330 \times 10^{-13}$	144 à 151

Tableau 22 – Processus V-V et V-T, et constantes de vitesses associées, affectant les populations vibrationnelles de N<sub>2</sub>. Les réactions 144 à 151 constituent le principal mécanisme de population de CO<sub>2</sub>(001). « T<sub>g</sub> » est la température cinétique du gaz.

Les échanges V-V et V-T ne dépendent pas du champ électrique puisqu'ils ne font pas intervenir d'espèces électriquement chargées. Les niveaux vibrationnels de N<sub>2</sub>, en plus d'être affectés par les collisions avec les électrons, sont également peuplés par cascade collisionnelle. Un niveau hautement excité finit, après un certain nombre de collisions, par retomber à l'état fondamental. Soit en ayant échangé son énergie vibrationnelle avec une autre espèce vibrationnelle (V-V), soit en ayant cédé cette énergie vibrationnelle au moment cinétique d'une autre molécule (V-T). D'après Parra-Rojas et al. (2015), en dessous de 65 km d'altitude, ces derniers échanges pourraient entraîner une augmentation de la température cinétique d'une dizaine de kelvins (soit un ΔT d'environ 5 %). Nous faisons l'hypothèse que cette variation de température est négligeable.

Les travaux de Gordillo-Vázquez (2008 2010), sont les seuls à présenter la cinétique des premiers niveaux vibrationnels de N<sub>2</sub> à la suite du passage d'un *streamer* de *sprite*, dans des conditions de simulation correspondantes à des altitudes élevées dans l'atmosphère terrestre. La première publication faisait l'hypothèse d'un champ électrique réduit de 1 Td pendant la phase de relaxation, contre 30 Td pour la deuxième. C'est cette seconde hypothèse que nous faisons également. Nous avons également choisi d'initialiser la concentration des niveaux vibrationnels de N<sub>2</sub> avec une statistique de Maxwell-Boltzmann. Ce qui conduit à des concentrations initiales significativement plus élevées que celles de Gordillo-Vazquez, qui part d'une concentration quasi nulle. Les résultats obtenus ici et ceux des deux publications citées sont comparés dans la Figure 52.

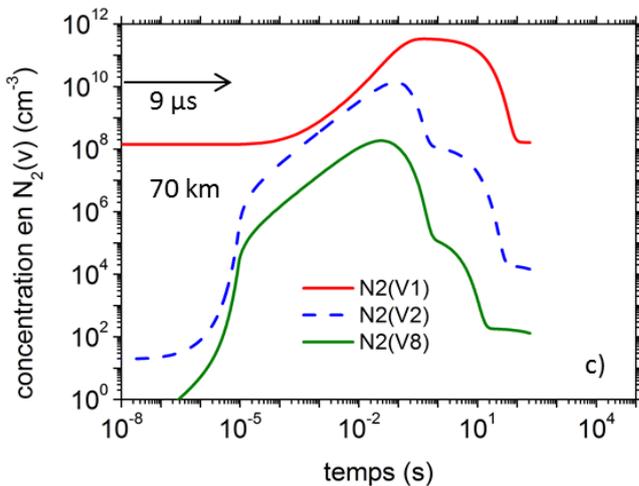
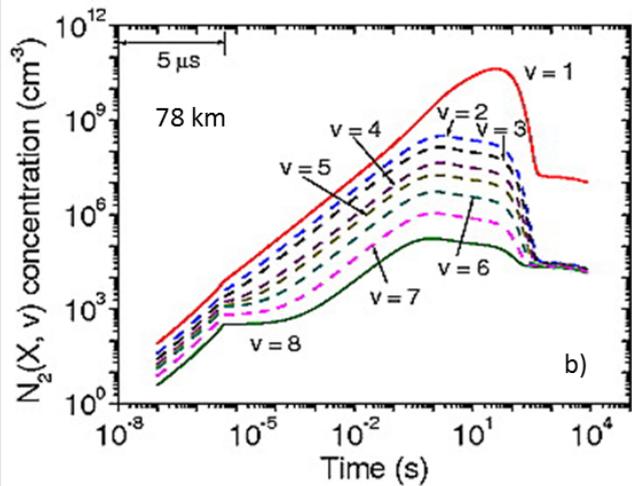
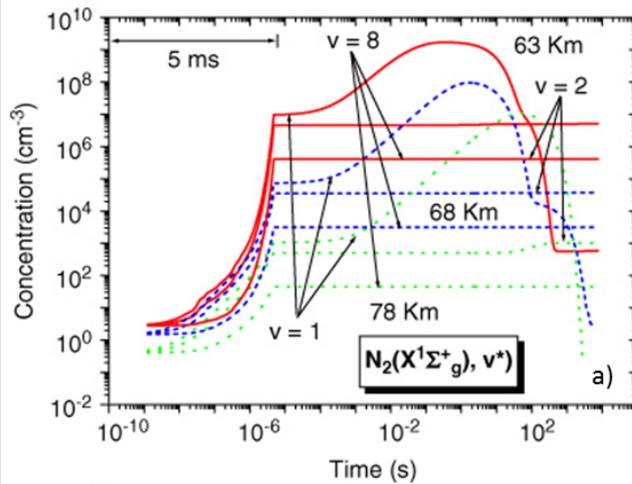


Figure 52 – Comparaison des évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels de  $N_2$ . En a), les résultats de (Gordillo-Vázquez 2008), les niveaux 1, 2, et 8, sont représentés pour des simulations réalisées à 63, 68, et 78 km d'altitude (la flèche indiquant une durée de 5 ms indique en réalité une durée de 5  $\mu$ s). En b), ceux de (Gordillo-Vázquez 2010), les niveaux 1 à 8 sont représentés. Les calculs sont réalisés pour une altitude de 78 km. En c), ceux calculés ici. Les niveaux 1, 2, et 8, sont représentés pour un calcul à 70 km. Dans chaque cas, la durée du *pulse* est représentée par une flèche.

Ces résultats sont également dépendants d'une autre hypothèse qui n'a pas encore été mentionnée : la prise en compte des processus radiatifs associés aux niveaux vibrationnels de  $N_2$ . Ceux-ci ne sont pas inclus dans le modèle de Gordillo-Vázquez (2008). Ils ont été rajoutés pour les calculs dont les résultats sont présentés dans la publication de 2010, puis ont été retirés de la dernière version du modèle, utilisée par Parra-Rojas et al. (2015). Ils ne sont pas non plus inclus dans le modèle utilisé ici. Cette hypothèse est à retenir comme une piste d'investigations à venir. Pour plus de clarté, les différentes hypothèses associées aux différents auteurs sont résumées dans le Tableau 23.

Auteurs	Initialisation des niveaux $N_2(v)$	E/N pendant la relaxation	Prise en compte des processus radiatifs de $N_2(v)$	Prise en compte du sens inverse des réactions V-V et V-T de $N_2(v)$
Gordillo-Vázquez (2008)	De quelques $10^{-1}$ à quelques $10^0$ $\text{cm}^{-3}$ pour les niveaux 1 à 8	1 Td	Non	Non
Gordillo-Vázquez (2010)	De quelques $10^{-1}$ à quelques $10^0$ $\text{cm}^{-3}$ pour les niveaux 1 à 8	30 Td	Oui	Inconnu
Parra-Rojas et al. (2015)	Inconnu <sup>21</sup>	Variable	Non	Oui
Modèle présenté dans ce manuscrit	À l'ETL	30 Td	Non	Oui

Tableau 23 – Principales hypothèses associées aux travaux ayant traité le cas des niveaux vibrationnels de  $N_2$  sous l'influence d'un *streamer* de *sprite*.

La comparaison de ces différents travaux démontre le fort impact des hypothèses utilisées. Considérons d'abord le premier niveau vibrationnel de  $N_2$ , d'importance capitale puisque c'est celui dont la population est la plus importante, quelle que soit la simulation. À 78 km d'altitude, Gordillo-Vázquez (2008) trouve que la concentration maximale est atteinte après un temps de l'ordre de 0.1 s et qu'elle est de  $10^7 \text{ cm}^{-3}$ . Dans ses travaux de 2010, celle-ci atteint  $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , après environ 10 s, alors que le champ électrique de la phase de relaxation est désormais de 30 Td et qu'il a pris en compte les processus de désexcitation radiative de  $N_2(v)$ . Comme ces derniers processus ont plutôt pour effet de faire décroître les concentrations de  $N_2(v)$ , on peut attribuer l'augmentation de plus de 3 ordres de grandeur au changement d'E/N de la phase de relaxation entre les deux publications, aspect qui sera discuté en détail dans le chapitre 4. La différence entre les deux publications, pour le huitième niveau, est de 4 ordres de grandeur ( $10^1$  à  $10^5 \text{ cm}^{-3}$ ).

Dans ce travail, on ne réalise pas les calculs jusqu'à 78 km. On peut toutefois comparer avec les résultats de l'altitude la plus élevée, 70 km. Le maximum de concentration de  $N_2(v_1)$  est atteint après environ  $2 \times 10^{-1}$  s et est de  $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ . C'est un demi-ordre de grandeur supérieur à Gordillo-Vázquez (2010), mais calculé 8 km plus bas, où l'on attend des concentrations plus élevées. Pour ce qui est de  $N_2(v_8)$ , on trouve 3 ordres de grandeur de plus. On explique cette différence par les hypothèses sur l'initialisation des concentrations (voir Tableau 23).

Examinons maintenant la phase de décroissance de la concentration de ces niveaux et, notamment, le temps nécessaire à ce qu'ils retombent à des concentrations de l'ordre des valeurs initiales. Dans Gordillo-Vázquez (2008), à 78 km,  $N_2(v_1)$  décroît à partir de 10 s, et des concentrations négligeables (moins de  $10 \text{ cm}^{-3}$ ) sont atteintes après 200 à 300 s. Dans Gordillo-Vázquez (2010), la décroissance s'amorce après 30 s et retombe à un niveau toujours relativement élevé ( $10^7 \text{ cm}^{-3}$ ), après environ 500

<sup>21</sup> Les résultats de Parra-Rojas et al. (2015) ne sont pas comparés aux autres en Figure 52 car les évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels de  $N_2$  ne sont pas présentées dans la publication. On sait seulement qu'ils sont inclus dans le modèle.

s. Notons que cette concentration après décroissance, qui reste stable sur plusieurs milliers de secondes, est un ordre de grandeur en dessous de la concentration initiale que l'on utilise pour représenter l'atmosphère de fond. Ceci n'est pas étonnant puisque, à l'ETL, le modèle qu'on utilise est équilibré. Or, il est en grande partie identique à ceux de Gordillo-Vazquez (2010 2008). On peut imaginer que la première phase de croissance des niveaux vibrationnels de Gordillo-Vazquez (2010) provienne en fait de la mise à l'équilibre de son modèle, qui n'est pas réalisée avant lancement de la simulation d'un *streamer*. Pour confirmer cela, il faudrait pouvoir examiner les évolutions temporelles de ces espèces pour un champ électrique nul, ce qui n'est pas présenté dans sa publication. À 70 km, nos niveaux persistent sur une durée bien moindre.  $N_2(v_1)$  décroît de sa concentration maximale à sa concentration initiale avant une centaine de secondes. Pour  $N_2(v_8)$ , ce temps est réduit à une dizaine de secondes.

Comme on l'a déjà précisé à propos des électrons, les considérations sur la durée de persistance à des concentrations élevées sont aussi importantes que celles sur les concentrations maximales atteintes. C'est ce qui va contraindre les évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels de  $CO_2$ .

### 3.3.2. Évolutions temporelles des concentrations des états vibrationnels de $CO_2$

La population des niveaux vibrationnels de  $CO_2$  est étroitement liée aux processus d'échanges V-V avec les différents niveaux vibrationnels de  $N_2$ . Alors que les niveaux vibrationnels de  $N_2$  se dépeuplent en cascade par collisions successives avec le  $CO_2$ , le niveau (001) de cette molécule est peuplé. Le  $CO_2$  vibrationnel peut également être peuplé, dans une moindre mesure, par impacts avec les électrons. Les constantes de vitesse de ces processus, pendant les phases de *pulse* et de relaxation, sont présentées dans le Tableau 24.

Réaction	Constantes de vitesse pendant le <i>pulse</i> (cm <sup>3</sup> /s)	Constantes de vitesse, pendant la relaxation (cm <sup>3</sup> /s)	Numéro de réaction
Sens direct			
CO <sub>2</sub> ( <i>ground</i> ) + e → CO <sub>2</sub> (010) + e	5.214 × 10 <sup>-9</sup>	5.218 × 10 <sup>-9</sup>	49
CO <sub>2</sub> ( <i>ground</i> ) + e → CO <sub>2</sub> (100) + e	6.796 × 10 <sup>-9</sup>	3.028 × 10 <sup>-9</sup>	50
CO <sub>2</sub> ( <i>ground</i> ) + e → CO <sub>2</sub> (001) + e	5.227 × 10 <sup>-9</sup>	3.884 × 10 <sup>-9</sup>	51
Sens inverse			
CO <sub>2</sub> (010) + e → CO <sub>2</sub> ( <i>ground</i> ) + e	5.266 × 10 <sup>-9</sup>	5.992 × 10 <sup>-9</sup>	49
CO <sub>2</sub> (100) + e → CO <sub>2</sub> ( <i>ground</i> ) + e	6.941 × 10 <sup>-9</sup>	4.000 × 10 <sup>-9</sup>	50
CO <sub>2</sub> (001) + e → CO <sub>2</sub> ( <i>ground</i> ) + e	5.431 × 10 <sup>-9</sup>	6.308 × 10 <sup>-9</sup>	51

Tableau 24 – Processus de collision entre électrons et niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>.

Les constantes de vitesse restent du même ordre de grandeur pendant les deux phases, l'efficacité de ce processus est principalement gouvernée par l'évolution de la concentration en électrons (voir Figure 39).

Les processus qui vont dépeupler CO<sub>2</sub>(001) sont les mêmes que ceux qui vont peupler CO<sub>2</sub>(100) et CO<sub>2</sub>(010). On peut distinguer les processus de *quenching*, radiatifs, et d'échanges V-V. Ceux-ci sont recensés dans le Tableau 25.

Réaction	Constantes de vitesse (cm <sup>3</sup> /s) ou d'Einstein <sup>22</sup> (s <sup>-1</sup> )	Numéro de réaction
Sens direct		
CO <sub>2</sub> (v <sub>high</sub> ) + M → CO <sub>2</sub> (v <sub>low</sub> ) + M, avec M=[CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> , O, CO, O <sub>2</sub> ]	Voir « 7.2 »	130 à 141
CO <sub>2</sub> (001) → CO <sub>2</sub> (100) + hv	0.200	417
CO <sub>2</sub> (001) → CO <sub>2</sub> (ground) + hv	450	418
CO <sub>2</sub> (100) → CO <sub>2</sub> (010) + hv	2.080	419
CO <sub>2</sub> (010) → CO <sub>2</sub> (ground) + hv	1.560	420
CO <sub>2</sub> (001) + CO <sub>2</sub> (ground) → CO <sub>2</sub> (100) + CO <sub>2</sub> (010)	$3.600 \times 10^{-13} - 1660 \times \exp(-176948/(T_g^{1/3}))$	142
CO <sub>2</sub> (100) + CO <sub>2</sub> (ground) → CO <sub>2</sub> (010) + CO <sub>2</sub> (010)	$2.500 \times 10^{-11}$	141
Sens inverse		
CO <sub>2</sub> (v <sub>low</sub> ) + M → CO <sub>2</sub> (v <sub>high</sub> ) + M, avec M=[CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> , O, CO, O <sub>2</sub> ]	Voir « 7.2.2 »	130 à 141
CO <sub>2</sub> (100) + hv → CO <sub>2</sub> (001)	Voir « 2.2.2.1 »	417
CO <sub>2</sub> (ground) + hv → CO <sub>2</sub> (001)	Voir « 2.2.2.1 »	418
CO <sub>2</sub> (010) + hv → CO <sub>2</sub> (100)	Voir « 2.2.2.1 »	419
CO <sub>2</sub> (ground) + hv → CO <sub>2</sub> (010)	Voir « 2.2.2.1 »	420
CO <sub>2</sub> (100) + CO <sub>2</sub> (010) → CO <sub>2</sub> (001) + CO <sub>2</sub> (ground)	$(3.600 \times 10^{-13} - 1660 \times \exp(-176948/(T_g^{1/3}))) \times \exp(-5.832 \times 10^{-21}/(k_b \times 10 \times T_g))$	142
CO <sub>2</sub> (010) + CO <sub>2</sub> (010) → CO <sub>2</sub> (100) + CO <sub>2</sub> (ground)	$2.5 \times 10^{-11} \times \exp(-1.061 \times 10^{-21}/(k_b \times T_g))$	141

Tableau 25 – Processus de *quenching*, radiatifs, et V-V à l'origine des populations des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>. « k<sub>b</sub> » est la constante de Boltzmann.

Les évolutions temporelles des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>, conséquence des processus décrits, sont présentées en Figure 53.

<sup>22</sup> Dans le sens direct, le coefficient d'Einstein donné est celui de l'émission spontanée (A).

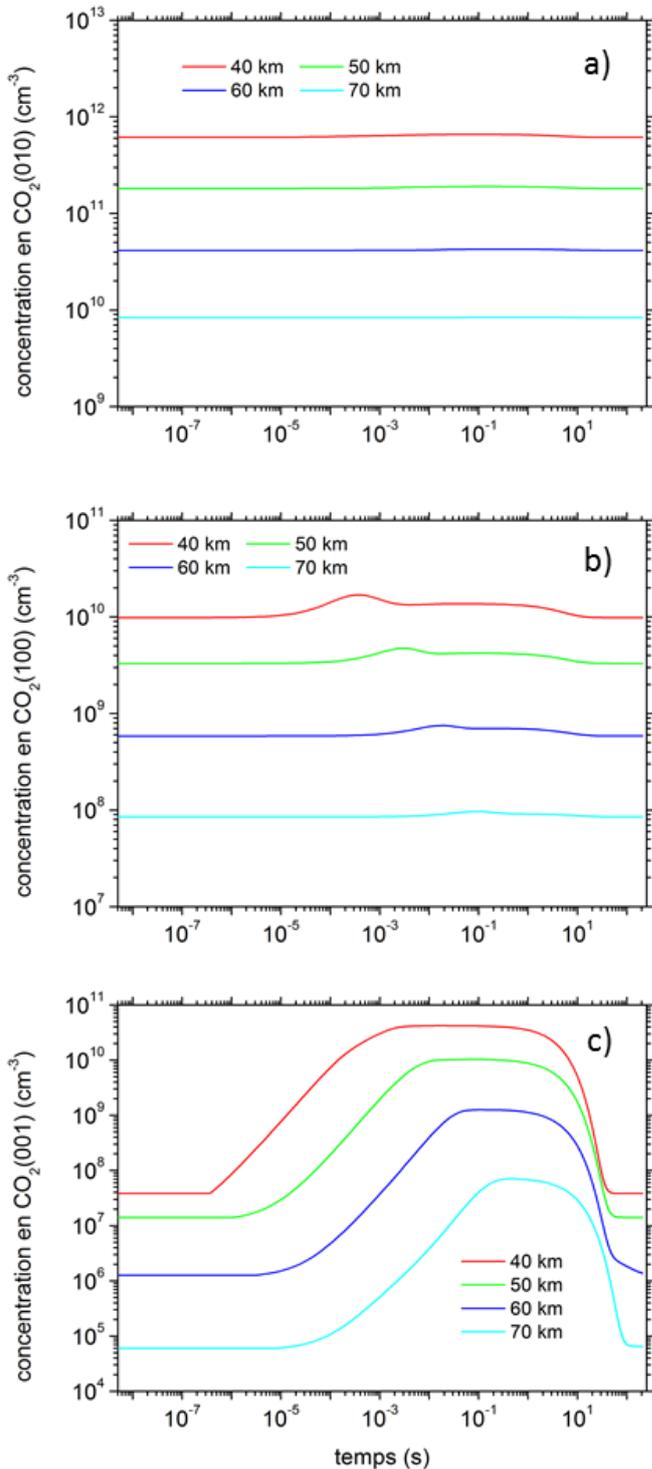


Figure 53 – Évolutions temporelles des concentrations des premiers niveaux de chaque mode de vibration de  $\text{CO}_2$  actif dans l'infrarouge. Pour mieux rendre compte de la perturbation, les échelles des ordonnées ne sont pas identiques d'un graphique à l'autre. En a),  $\text{CO}_2(010)$ , en b),  $\text{CO}_2(100)$ , en c),  $\text{CO}_2(001)$ .

Les concentrations maximales de  $\text{CO}_2(001)$  sont respectivement de  $5 \times 10^{10}$ ,  $10^{10}$ ,  $10^9$ , et  $7 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$  à 40, 50, 60, et 70 km. Soit un accroissement d'environ 3 ordres de grandeur par rapport aux concentrations initiales (à l'ETL). Pour  $\text{CO}_2(100)$ , les concentrations maximales restent du même ordre de grandeur que les concentrations initiales. L'augmentation est limitée à un facteur 2 à 3. L'augmentation des concentrations de  $\text{CO}_2(010)$  est très réduite, elle ne dépasse pas quelques pour cent. La persistance des concentrations de  $\text{CO}_2(001)$  à des niveaux élevés dure plusieurs dizaines de secondes. Il faut entre 35 et 90 s pour qu'elles retombent à leur niveau initial.

Au regard de ces résultats, on peut conclure que seules les émissions associées à  $\text{CO}_2(001)$  seront importantes. En considérant à nouveau un diamètre de *streamer* de 25 mètres, on calcule les EBs (Équation 35) à 4.26 et 9.4  $\mu\text{m}$  (2347 et 1063  $\text{cm}^{-1}$ , Figure 54), respectivement correspondantes aux processus d'émission 418 et 417 (voir annexe « 7.2.8 »).

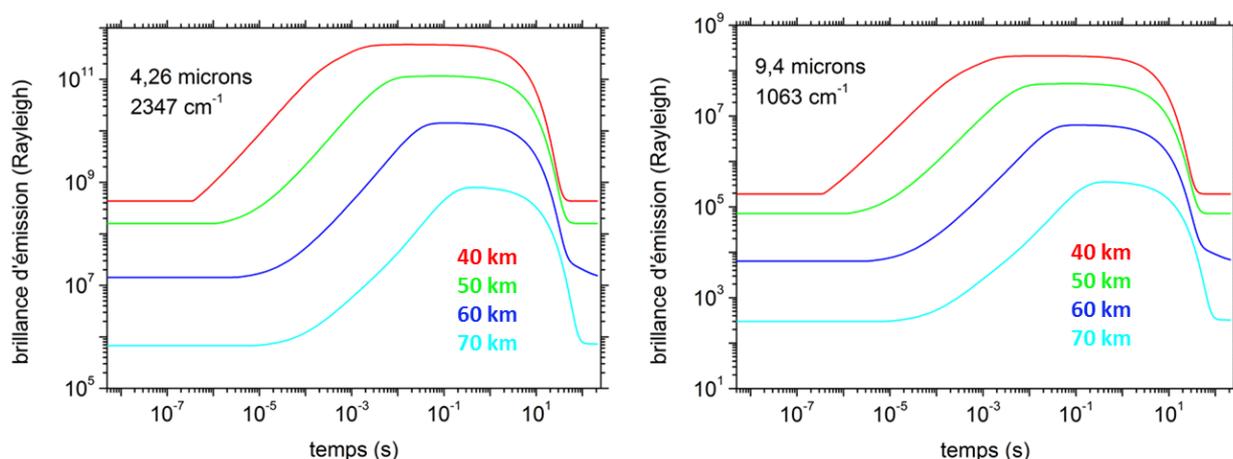


Figure 54 – Brillances d'émission à 4.26  $\mu\text{m}$ , à gauche, et 9.4  $\mu\text{m}$ , à droite, à 40, 50, 60, et 70 km. Ces deux bandes sont associées à  $\text{CO}_2(001)$ .

Les EBs à 4.26 et 9.4  $\mu\text{m}$  atteignent toujours un maximum supérieur de trois ordres de grandeur aux valeurs initiales. Ces résultats ne peuvent pas être directement comparés à ceux de Gordillo-Vázquez (2008) car l'auteur n'initialise pas les concentrations des états excités à l'ETL. Ainsi, même en conditions non perturbées, les émissions sont différentes de 5 à 8 ordres de grandeur. Pour ce qui est des travaux ultérieurs de Parra-Rojas et al. (2015), qui sont basés en partie sur l'approche de Gordillo-Vázquez (2008), l'initialisation des concentrations des niveaux vibrationnels de  $\text{CO}_2$  est la même que celle utilisée ici. Par exemple, les émissions non perturbées de Parra-Rojas et al. (2015), à 50 km et 4.26  $\mu\text{m}$ , sont également de  $10^8$  Rayleighs (voir courbe verte, Figure 54, gauche, valeurs d'EB avant  $10^{-7}$  s). Ensuite, la perturbation maximale est toujours du même ordre de grandeur, excepté à 40 km, altitude non étudiée par ces auteurs. Les émissions à 9.4  $\mu\text{m}$  ne sont pas présentées dans leur publication et ne peuvent donc pas être comparées.

Afin de faciliter la caractérisation de la perturbation des niveaux vibrationnels, on calcule les températures vibrationnelles (voir section « 2.1.2 ») associées à chaque niveau. De cette façon, on peut avoir une idée de l'amplitude de la perturbation par simple comparaison avec la température cinétique. La décroissance des concentrations des niveaux vibrationnels de  $\text{CO}_2$  s'amorce à partir de 1 s environ. Les températures vibrationnelles sont donc représentées entre 1 s et le temps auquel ces populations retombent à leur niveau d'équilibre, quand  $T_{\text{vib}} \approx T_{\text{cin}}$  (Figure 55). On constate que la  $T_{\text{vib}}$  de  $\text{CO}_2(010)$  dévie à peine de sa température à l'équilibre<sup>23</sup> : pas plus de 2.5 Kelvins de différence, quelle que soit l'altitude. Pour  $\text{CO}_2(100)$ , cette différence atteint, au maximum, 8, 6, 5, et 3 K à 40, 50, 60, et 70 km. Pour  $\text{CO}_2(001)$ , la différence maximale aux mêmes altitudes est respectivement de 255, 246, 215, et 168 K. Les deux premiers niveaux mentionnés rejoignent leurs concentrations d'équilibre en moins de 20 s. Comme on l'a vu en examinant ses concentrations, le  $\text{CO}_2(001)$  persiste hors équilibre pendant 35 à 90 s entre 40 et 70 km.

<sup>23</sup> On a montré en début de chapitre que la température d'équilibre des niveaux vibrationnels de  $\text{CO}_2$  n'est pas strictement égale à la température cinétique de l'atmosphère de fond.

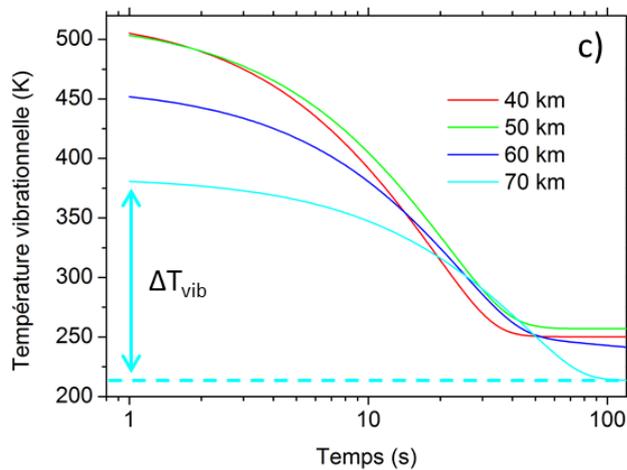
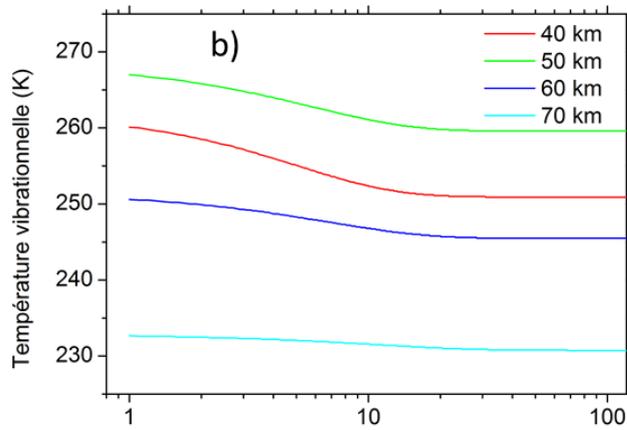
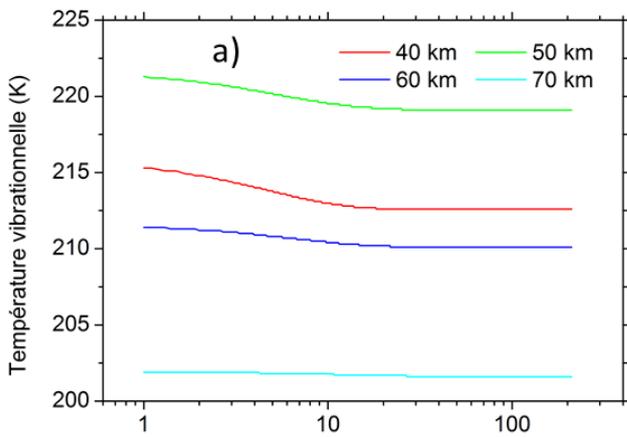


Figure 55 – Évolutions temporelles des températures vibrationnelles des trois niveaux de CO<sub>2</sub> inclus dans le modèle, entre 1 et 100 s. En a), CO<sub>2</sub>(010), en b), CO<sub>2</sub>(100), en c), CO<sub>2</sub>(001). La valeur  $\Delta T_{vib}$  pour CO<sub>2</sub>(001) à 70 km est illustrée en c), avec une flèche verticale bleu clair, et la température cinétique à 70 km avec des tirets.

### 3.4. Bilan du troisième chapitre

Les travaux réalisés ont permis de montrer que les concentrations maximales des électrons, qui correspondent au niveau de ce qu'on a appelé plateau *post-pulse*, persistent pendant  $\sim 10^{-4}$ ,  $10^{-3}$ ,

$10^{-2}$ ,  $10^{-1}$  s à 40, 50, 60, 70 km respectivement. Les résultats sur les évolutions temporelles des concentrations des électrons peuvent être validés avec ceux présentés dans les travaux de Kosar et al. (2013), Liu et Pasko (2004), Parra-Rojas et al. (2015), Sentman et al. (2008), et Winkler et Notholt (2014). En fin de *pulse*, les concentrations sont également identiques à celles calculées par Raizer et al. (1998). Toutefois, 0.1 s après la fin du *pulse*, on a obtenu des concentrations 1 à 2 ordres de grandeur inférieures.

Pour ce qui est des niveaux électroniques de  $N_2$  et  $N_2^+$ , les calculs conduisent à des émissions visibles dont les VERs et EBs sont comprises dans des gammes définies à partir des travaux de Sentman et al. (2008), Parra-Rojas et al. (2015), Gordillo-Vázquez (2008), et Stenbaek-Nielsen et al. (2007).

Pour les niveaux vibrationnels de  $N_2(v_1)$  les résultats des simulations sont proches de ceux de Gordillo-Vázquez (2008 et 2010). Les différences sur les niveaux vibrationnels 2 à 8 de  $N_2$  atteignent plusieurs ordres de grandeur entre Gordillo-Vázquez (2010), Gordillo-Vázquez (2008), et les travaux réalisés ici. Il est possible d'expliquer ces différences par les champs électriques réduits utilisés, les hypothèses sur l'initialisation de la concentration des états vibrationnels dans l'atmosphère de fond, ainsi que par la prise en compte des processus radiatifs de  $N_2$  et des sens inverses des collisions super-élastiques (Tableau 23).

L'espèce  $CO_2(001)$  est la plus affectée par un *streamer de sprite*. Les concentrations maximales de  $CO_2(001)$  atteignent respectivement de  $5 \times 10^{10}$ ,  $10^{10}$ ,  $10^9$ , et  $7 \times 10^7$   $cm^{-3}$  à 40, 50, 60, et 70 km. Soit un accroissement d'environ 3 ordres de grandeur par rapport aux concentrations initiales (environ à l'ETL). Pour  $CO_2(100)$ , l'augmentation est limitée à un facteur 2 à 3. Pour  $CO_2(010)$ , elle ne dépasse pas quelques %. Entre 40 et 70 km d'altitude, il faut entre 35 et 90 s pour que les concentrations de  $CO_2(001)$  retombent à leur niveau initial. La température vibrationnelle de  $CO_2(010)$  dévie à peine de sa température à l'équilibre : pas plus de 2.5 K de différence, quelle que soit l'altitude. Pour  $CO_2(100)$ , cette différence atteint au maximum 8, 6, 5, et 3 K à 40, 50, 60, et 70 km. Pour  $CO_2(001)$ , la différence maximale aux mêmes altitudes est respectivement de 255, 246, 215, et 168 K. En considérant un *streamer* de 25 mètres de diamètre, on valide les EBs à 4.26  $\mu m$  en les comparant à celles calculées par Parra-Rojas et al. (2015). Elles sont du même ordre de grandeur à toutes les altitudes entre 50 et 70 km et aux différents temps de la simulation.



## 4. Analyse de sensibilité préliminaire du modèle cinétique

Le modèle développé dans cette thèse repose sur plusieurs hypothèses, traduites par différents paramètres d'entrée. Sur chacun de ces paramètres, il existe des incertitudes ainsi qu'une certaine variabilité, ce qui peut conduire à réduire la robustesse du modèle. Nous étudions un phénomène naturel qui, par opposition à une expérience de laboratoire, a lieu dans un environnement non contrôlé. Les *sprites* ont donc une variabilité intrinsèque en raison des conditions atmosphériques (électriques, chimiques, dynamiques) qui règnent lorsqu'ils ont lieu. N'étant pas tous identiques, il n'y a aucune raison que les différentes grandeurs physiques utilisées pour les caractériser ne le soient. D'autre part, comme pour tout phénomène naturel, les représentations que l'on fait des *sprites* (expériences de laboratoire ou modèles numériques) ne sont, quels que soient leurs degrés de sophistication, que des approximations d'un type d'événement très complexe. Enfin, les informations acquises à partir d'observations s'accompagnent d'incertitudes de mesure.

Pour ces raisons, nous avons entrepris de quantifier la façon dont l'incertitude sur les paramètres d'entrée influence celle sur les sorties. C'est le principe de l'analyse de sensibilité qui permet, entre autres, de détecter les paramètres qui contribuent le plus à l'incertitude sur les sorties. Pour davantage d'informations, on peut se tourner, par exemple, vers le manuscrit de thèse de Chastaing (2013), qui présente un état de l'art des méthodes et outils de l'analyse de sensibilité.

Dans ce travail, on s'intéresse tout particulièrement aux niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub> (010, 100, 001). On étudiera donc exclusivement les sorties associées. On choisit de travailler avec les températures vibrationnelles plutôt qu'avec les concentrations. Cette grandeur permet plus facilement d'illustrer l'amplitude d'une variation et de l'interpréter physiquement.

Dans ce chapitre, on commencera par introduire les notions de base sur la mise en œuvre d'une analyse de sensibilité, et sur les outils statistiques utilisés pour l'interprétation des résultats. Ensuite, on justifiera le choix de l'étude des paramètres que l'on pense être, à priori, les plus influents. Les deux parties suivantes consisteront à décrire deux plans d'expérience mis en place ainsi que les résultats associés. On présentera d'abord les températures vibrationnelles obtenues pour les simulations alternatives, puis on discutera les indices statistiques obtenus.

### 4.1. Vocabulaire et définitions

L'analyse de sensibilité permet de hiérarchiser l'importance des paramètres sur les sorties d'un modèle, et de déterminer si certains interagissent entre eux. À partir de ces résultats, il est possible de déterminer les principaux axes d'amélioration du modèle, ou des pistes de recherches à privilégier.

Dans ce chapitre, les « paramètres » du modèle sont appelés « facteurs », et les différentes valeurs qui peuvent être attribuées à un facteur sont appelées « niveaux ». Par exemple, le champ électrique

réduit pendant la phase de relaxation, que l'on note «  $E/N_{\text{relax}}$  », est un facteur qui pourra prendre différents niveaux en plus du niveau nominal (30 Td).

### 4.1.1. Plans d'expériences

Les simulations auxquelles seront associées différentes combinaisons de niveaux des différents facteurs constituent le « plan d'expérience ». Une matrice qui contient  $N$  expériences pour  $d$  facteurs est appelée « matrice d'expérience ». Des plans à deux niveaux par facteurs sont souvent utilisés et permettent de classer efficacement les facteurs par ordre d'influence. On peut également utiliser un plus grand nombre de niveaux afin de balayer l'intérieur d'un domaine de variation, en particulier si l'on suspecte une non-linéarité des sorties.

L'« effet principal » d'un facteur qualifie l'influence du niveau de ce facteur sur la moyenne des sorties. Pour des facteurs à deux niveaux, l'effet principal est la demi-différence entre la moyenne des sorties au niveau haut du facteur (niveau noté « 1 ») et la moyenne des sorties au niveau bas du facteur (niveau noté « -1 »).

L'« effet d'interaction » entre deux facteurs A et B traduit la non-additivité des effets principaux de ces deux facteurs : l'effet principal du facteur A dépend du niveau du facteur B. L'interaction entre A et B étant identique à celle entre B et A. Pour des facteurs à deux niveaux, cette interaction est égale à la demi-différence entre l'effet principal de A obtenu avec le niveau haut de B, et l'effet principal de A obtenu avec le niveau bas de B. Sur le même principe, il est possible de définir des interactions entre davantage de facteurs et de niveaux.

Un « plan factoriel complet » consiste à associer chaque niveau de chaque facteur à chaque niveau de chaque autre facteur. Il faut donc  $N = 2^d$  calculs pour un plan à 2 niveaux par facteur (voir exemple en Tableau 26). Le nombre de calculs pose rapidement problème si l'on souhaite intégrer un grand nombre de facteurs.

Calcul	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3
1	-1	-1	-1
2	1	-1	-1
3	-1	1	-1
4	1	1	-1
5	-1	-1	1
6	1	-1	1
7	-1	1	1
8	1	1	1

Tableau 26 – Exemple de plan d'expérience factoriel complet pour 3 facteurs et deux niveaux (1 et -1). Pour ce plan, 8 calculs sont nécessaires.

Un « plan factoriel fractionnaire » permet d'étudier l'ensemble des facteurs avec un nombre de calculs inférieur à celui nécessaire pour réaliser un plan factoriel complet. On ne garde donc qu'une fraction d'un plan complet. Pour cela, on regroupe certaines inconnues. On appelle ce groupe un

« contraste ». Les inconnues de ce contraste sont dites « aliasées ». Pour construire un tel plan, toujours dans le cadre d'un exemple à 2 niveaux par facteur, on part d'un plan factoriel complet à  $N = 2^{d-q}$ ,  $q$  étant le nombre de facteurs que l'on retire pour construire ce plan complet. Par exemple, si l'on a 4 facteurs, qu'on en retire 1, on commence par écrire la matrice complète à  $N = 2^{4-1} = 8$  calculs. Cette matrice comprend les niveaux -1 et 1 pour chacun des 3 facteurs restants et pour toutes les interactions. La colonne associée à une interaction s'obtient en faisant le produit ligne à ligne des colonnes de tous les facteurs qui la composent (Tableau 27).

Calcul	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Interaction 12	Interaction 13	Interaction 23	Interaction 123
1	-1	-1	-1	1	1	1	-1
2	1	-1	-1	-1	-1	1	1
3	-1	1	-1	-1	1	-1	1
4	1	1	-1	1	-1	-1	-1
5	-1	-1	1	1	-1	-1	1
6	1	-1	1	-1	1	-1	-1
7	-1	1	1	-1	-1	1	-1
8	1	1	1	1	1	1	1

Tableau 27 – Calcul des interactions pour un plan d'expérience à  $2^{d-q}$  calculs. L'interaction 12, par exemple, correspond au produit ligne à ligne des colonnes 1 et 2.

On choisit ensuite une colonne associée à une interaction et on l'attribue au facteur restant, qu'on avait éliminé pour construire le plan complet. Pour cet exemple, c'est le facteur 4. Ici, on lui attribue les niveaux de l'interaction 123. On dit que le facteur 4 est aliasé avec l'interaction 123. On obtient le plan fractionnaire suivant (Tableau 28) :

Calcul	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Facteur 4
1	-1	-1	-1	-1
2	1	-1	-1	1
3	-1	1	-1	1
4	1	1	-1	-1
5	-1	-1	1	1
6	1	-1	1	-1
7	-1	1	1	-1
8	1	1	1	1

Tableau 28 – Exemple de plan d'expérience fractionnaire pour 4 facteurs à 2 niveaux. Le plan d'expérience complet nécessiterait  $2^4 = 16$  calculs.

Un plan factoriel fractionnaire est caractérisé par sa « résolution ». Ce terme indique dans quelle mesure les effets du plan possèdent des alias. Dans un plan de résolution III, aucun effet principal ne possède d'alias avec un autre effet principal, mais les effets principaux possèdent des alias avec des interactions à 2 facteurs. Dans un plan de résolution IV, aucun effet principal ne possède d'alias avec un autre effet principal, ou avec une interaction à 2 facteurs, mais certaines interactions à 2 facteurs possèdent des alias avec d'autres interactions à 2 facteurs, et des effets principaux possèdent des

alias avec des interactions à 3 facteurs (exemple du plan en Tableau 28). Dans un plan de résolution V, les effets principaux ne sont aliasés qu'avec des interactions impliquant 4 facteurs, qui sont en général négligeables, et les interactions entre 2 facteurs sont aliasées avec des interactions entre 3 facteurs, elles aussi très souvent faibles<sup>24</sup>.

L'interprétation des résultats des simulations du plan d'expérience peut se faire de deux façons :

- en apprenant (c'est-à-dire en ajustant) un modèle linéaire sur les résultats des simulations, puis en réalisant des tests statistiques de significativité sur les coefficients du modèle linéaire,
- ou bien à l'aide d'une décomposition fonctionnelle de la variance, qui permet de quantifier l'influence des facteurs sur la variabilité de la sortie au moyen d'indices, les indices de Sobol (Sobol 1993).

## 4.1.2. Analyse de variance fonctionnelle et indices de Sobol

D'après la méthode développée par Sobol (Saltelli et al. 1999 ; Sobol 1993), la variance peut être décomposée en une somme de termes, chacun représentant la part de variance expliquée par l'interaction associée à un groupe de facteurs. Un modèle peut être considéré comme une fonction  $Y = f(X)$ , avec  $X$  un vecteur de  $d$  facteurs d'entrée  $\{X_1, X_2, \dots, X_d\}$ , et  $Y$  une sortie de ce modèle.  $f(X)$  peut être décomposée de la façon suivante (Équation 47) :

$$Y = f_0 + \sum_{i=1}^d f_i(X_i) + \sum_{i<j}^d f_{ij}(X_i, X_j) + \dots + f_{1,\dots,d}(X_1, X_2, \dots, X_d) \quad \text{Équation 47}$$

Avec :

- $f_0$  une constante,
- $f_i$  une fonction de  $X_i$ ,
- $f_{ij}$  une fonction de  $X_i, X_j$ .

Avec comme condition que l'intégrale de chaque somme de chacun des termes soit nulle (Équation 48) :

$$\int_0^1 f_{i_1 i_2 \dots i_s}(X_{i_1}, X_{i_2}, \dots, X_{i_s}) dX_k = 0 \quad \text{Équation 48}$$

<sup>24</sup> Ces définitions proviennent de la page web d'assistance du logiciel d'analyse de données Minitab® Statistical Software (<http://www.minitab.com/>) : Technical Support by Minitab™.

Avec  $k = i_1, \dots, i_s$ .

Il en résulte que les termes de cette décomposition sont orthogonaux (Équation 49) :

$$\int_{[0,1]^d} f_u(x)f_v(x)dx = 0 \quad \text{Équation 49}$$

Avec  $u \neq v, u \subseteq \{1, \dots, d\}, v \subseteq \{1, \dots, d\}$ .

Supposons maintenant que  $X$  est un vecteur de variables aléatoires indépendantes uniformes. La décomposition donnée en Équation 47, sous la condition d'orthogonalité, reste vraie pour le modèle  $Y(X)$ . Cela permet de conduire à une décomposition de la variance de type (Équation 50) :

$$Var(Y) = \sum_{i=1}^d D_i + \sum_{i<j}^d D_{ij} + \dots + D_{1\dots d} \quad \text{Équation 50}$$

Avec :

- $D_i = var(f_i(X_i))$ ,
- $D_{ij} = var(f_{ij}(X_i, X_j))$ ,
- et ainsi de suite.

Pour évaluer de façon quantitative l'effet des niveaux des facteurs d'entrée, on calcule les indices de Sobol. En notant  $I$  un sous-ensemble de  $\{1, \dots, d\}$ , l'indice de Sobol est alors (Équation 51) :

$$S_I = \frac{D_I}{Var(Y)} \quad \text{Équation 51}$$

Cet indice décrit la part de variance de  $Y$  expliquée par l'interaction entre les facteurs d'indices dans  $I$ . L'indice principal, associé à un élément  $i$  de  $\{1, \dots, d\}$ , est compris entre 0 et 1. S'il est proche de 1, le facteur associé est très influent.

On peut également calculer l'indice total, qui représente la somme de l'indice principal et de tous les indices associés aux interactions entre le facteur  $i$  et les autres facteurs :

$$S_{ti} = \sum_{\substack{I \subset \{1, \dots, d\} \\ i \in I}} S_I = 1 - \frac{D_{-i}}{\text{Var}(Y)} \quad \text{Équation 52}$$

Avec  $D_{-i}$  la part de variance expliquée par tous les facteurs sauf  $X_i$ . S'il est proche de 0, le facteur associé est peu influant.

### 4.1.3. Tests de significativité sur un modèle linéaire

Pour évaluer la significativité d'un des facteurs ou d'une interaction entre deux facteurs, on utilise un modèle linéaire du type :

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^d \beta_i X_i + \sum_{1 \leq i < j \leq d} \beta_{ij} X_i X_j + \epsilon \quad \text{Équation 53}$$

appris<sup>25</sup> sur  $N$  simulations, où  $Y = \begin{bmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ \vdots \\ Y_N \end{bmatrix}$  et  $\epsilon = \begin{bmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \vdots \\ \epsilon_N \end{bmatrix}$  sont les vecteurs (de longueur  $N$ ) des observations et des résidus. Le vecteur  $\epsilon$  est supposé de loi normale et de variance  $\sigma^2$ . La méthode des moindres carrés donne un estimateur (noté avec un chapeau « ^ ») des différents coefficients  $\beta$  et de l'écart-type  $\sigma$ .

On effectue ensuite un test statistique de Student pour voir si les effets principaux des facteurs et les effets d'interactions entre deux facteurs sont significatifs ou non. L'hypothèse  $H_0$ , pour un coefficient  $\beta_I$  non significatif, est associée à  $\beta_I = 0$ , et l'hypothèse alternative à  $\beta_I \neq 0$ . Pour un plan factoriel fractionnaire, on utilise<sup>26</sup> :

$$T = \frac{\sqrt{N} |\hat{\beta}_I|}{\hat{\sigma}} \quad \text{Équation 54}$$

Sous l'hypothèse  $H_0$ ,  $T$  suit une loi de Student de paramètre  $N - 2$ . On rejette  $H_0$  si et seulement si  $T \geq t_{N-2, 1-\alpha}$ , où  $t_{N-2, 1-\alpha}$  est le  $(1 - \alpha)$  quantile de la distribution de Student de paramètre  $N - 2$ . On utilise souvent une valeur de  $\alpha$  égale à 0.05. La densité de probabilité de  $T$  est donnée en Équation 55 :

<sup>25</sup> En physique, on utilise plutôt le terme « ajusté », ou encore l'anglicisme « fité ».

<sup>26</sup> Voir Azaïs et Bardet (2006) pour la démonstration.

$$f_T(t) = \frac{1}{\sqrt{k\pi}} \frac{\Gamma\left(\frac{k+1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{k}{2}\right)} \left(1 + \frac{t^2}{k}\right)^{-\frac{k+1}{2}}, \text{ pour } k > 0. \quad \text{Équation 55}$$

Avec  $\Gamma$  la fonction Gamma d'Euler (Équation 56) :

$$\Gamma(x) = \int_0^{+\infty} t^{x-1} e^{-t} dt, \text{ avec } x \text{ un réel.} \quad \text{Équation 56}$$

Si  $T$  est grand, il fait partie de la queue de distribution de la loi de Student. C'est donc une valeur extrêmement peu probable (voir Figure 56). On rejette alors l'hypothèse  $H_0$  qui a conduit à cette valeur, et on a  $\beta_I \neq 0$ , ce qui signifie que le coefficient du modèle linéaire est significatif.

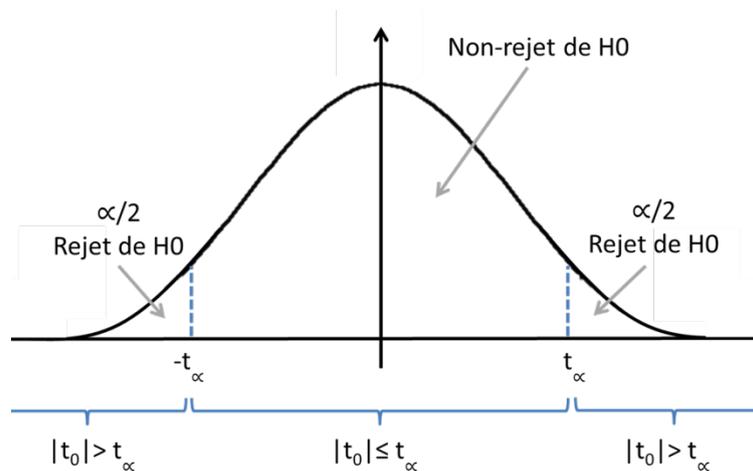


Figure 56 – Exemple schématique d'une densité de probabilité de Student.

Cela revient à fixer un seuil sur  $T$  en dessous duquel le coefficient est considéré comme négligeable, ce qui permet alors de sélectionner les variables influentes. De façon schématique, on peut retenir que, pour qu'un facteur ait un effet significatif, il faut que la part de variance de la sortie du modèle qu'il explique soit « suffisamment grande » par rapport à la variance résiduelle estimée  $\hat{\sigma}^2$ .

## 4.2. Choix des sorties, facteurs et niveaux à étudier

Pour expliquer au mieux l'effet des différents facteurs sur les températures vibrationnelles obtenues en sortie du modèle cinétique, nous pourrions mettre en place un plan factoriel complet qui considérerait l'ensemble des facteurs et leur attribuerait plusieurs niveaux (plus de 2 si l'on souhaite caractériser la non-linéarité du modèle). Toutefois, la réalité des ressources informatiques impose certaines limites.

À titre d'illustration, une seule résolution du modèle cinétique pour les altitudes entre 40 et 70 km, avec un pas d'altitude de 1 km, sur le calculateur CICLAD<sup>27</sup> (Calcul Intensif pour le Climat, l'Atmosphère et la Dynamique) demande plusieurs heures de calcul. En considérant chacun des paramètres du modèle comme un facteur indépendant, le total est de plusieurs centaines (principalement à cause du grand nombre de réactions). En ne considérant que 2 niveaux pour chaque facteur, on arrive déjà à des nombres de calculs tout à fait irréalistes, même devant les possibilités de parallélisation de CICLAD. Il est donc nécessaire de réduire le nombre de facteurs à étudier.

Le modèle dépend de paramètres électriques et chimiques. La partie « électricité » repose principalement sur l'intensité et la durée d'application du champ électrique réduit. Selon la phase de simulation, il influence soit la quantité d'électrons produits, soit la durée pendant laquelle ils vont persister. La partie « chimie » repose sur des profils initiaux de concentrations et des températures. Ceux-ci dépendent du choix de la position géographique à laquelle la simulation est réalisée (latitude, longitude, altitudes). La chimie dépend aussi des réactions et des constantes de vitesse utilisées. Parmi les plus de 400 réactions du modèle, notre intérêt se porte particulièrement sur la chimie vibrationnelle du CO<sub>2</sub>.

Nous choisissons donc de nous focaliser sur les facteurs (paramètres) suivants :

- La quantité d'électrons laissée à la suite du passage de la tête d'un *streamer*, parce qu'elle influence les populations vibrationnelles de N<sub>2</sub>, puis CO<sub>2</sub>.
- Le champ électrique réduit pendant la phase de relaxation, car il détermine l'efficacité des phénomènes consommateurs d'électrons, et donc leur durée de persistance à des concentrations élevées.
- Les profils de composition et de température initiaux, pour évaluer l'effet de la latitude. Nous ne ferons pas varier la longitude, dont l'impact est mineur dans la haute stratosphère et dans la mésosphère.
- Les constantes de vitesse de la cinétique V-T (vibration – translation) du CO<sub>2</sub>,
- et les constantes de vitesse de la cinétique V-V (vibration – vibration) du CO<sub>2</sub>. Ces deux derniers facteurs influencent la production et consommation de niveaux vibrationnels.

Les niveaux nominaux des facteurs cités sont résumés dans le Tableau 29.

<b>E/N<sub>relax</sub> (Td)</b>	<b>Concent. e<sub>0</sub><sup>-</sup> (cm<sup>-3</sup>)</b>	<b>Latitude des profils (degré)</b>	<b>Réac. V-T CO<sub>2</sub> vib</b>	<b>Réac. V-V CO<sub>2</sub> vib</b>
30	10 <sup>14</sup>	45 °	Nominal <sup>28</sup>	Nominal

Tableau 29 – Valeurs nominales des facteurs pour le calcul de référence. La première colonne correspond au champ électrique réduit pendant la phase de relaxation. La deuxième, à la concentration dans les têtes de *streamers* de laboratoire à altitude zéro. La troisième correspond à la latitude de laquelle sont issus les profils de composition et de température atmosphérique. Les quatrième et cinquième colonnes correspondent aux constantes de vitesse des deux groupes de réactions de la chimie vibrationnelle associée au CO<sub>2</sub> : la chimie V-T, et la chimie V-V. Leurs valeurs nominales sont celles présentées dans l'annexe « 7.2 ».

<sup>27</sup> CICLAD est un calculateur de l'IPSL (Institut Pierre Simon Laplace) qui comprend 24 nœuds de type 640 AMD core 64 bits d'une fréquence de 2.4 gigahertz. Chacun de ces nœuds représente un calculateur de 8, 12, 32 ou 64 cœurs. 4 GB (*gigabytes*) de mémoire Ram sont alloués à chaque cœur de chaque nœud.

<sup>28</sup> Voir annexe « 7.2.2 ».

On choisit d'attribuer deux valeurs alternatives à chacun des facteurs, en plus de sa valeur nominale. On a alors 3 niveaux par facteur. La difficulté repose sur le choix de ces niveaux, qui doit permettre de réaliser un test dans un cadre physiquement réaliste.

La quantité d'électrons à la suite du passage de la tête d'un *streamer* est gouvernée par la loi de similitude présentée en section « 2.2.3 » (Équation 25). Celle-ci repose sur la concentration en électrons obtenue pour des *streamers* à pression de 1 atm. Cette concentration est toujours de l'ordre de  $10^{14}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>3</sup>. Nous choisissons de définir l'incertitude associée à +/- 1 ordre de grandeur : on utilisera les niveaux alternatifs  $10^{13}$  et  $10^{15}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>3</sup>. Les concentrations en électrons et durées de *pulse*, qui dépendent du choix de la valeur associée à ce facteur, sont présentées en Figure 57.

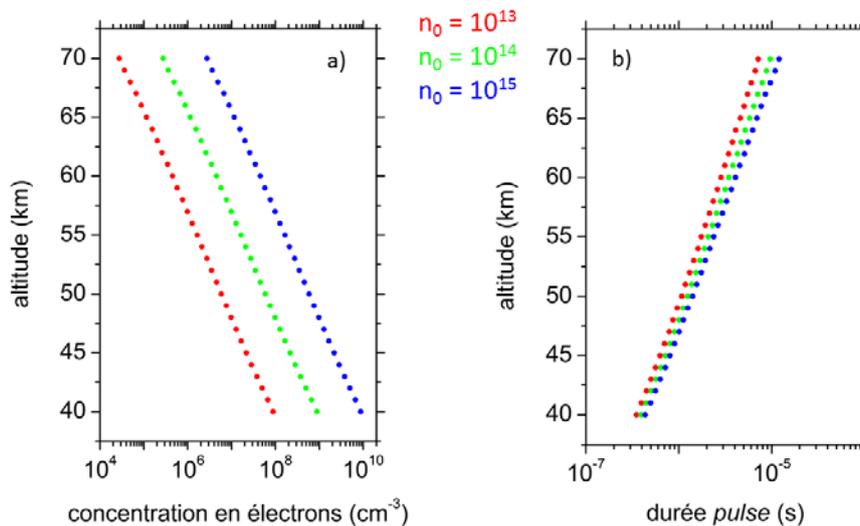


Figure 57 – Concentrations en électrons en fin de *pulse*, en a), et durées des phases de *pulse*, en b), en fonction de l'altitude, calculées à partir des concentrations en électrons de *streamers* à une pression de 1 atm ( $n_0$ ).

Le champ électrique pendant la phase de relaxation doit être inférieur à la limite d'ionisation. Autrement, la concentration en électrons divergerait à la suite du *pulse*, et le rayonnement visible des *sprites* perdurerait indéfiniment, ce qui n'est pas le cas dans la nature. Cette limite d'ionisation est de 100 Td environ (voir Figure 27). À 0 Td, les réactions de la chimie plasma sont désactivées, il ne devient plus possible de décrire la plupart des phénomènes consommateurs d'électrons qui deviennent importants lorsque le champ est faible. Ceci conduirait les électrons à persister pendant des durées incompatibles avec les estimations de la littérature, présentées en « 3.2.1.2 ». En conséquence, nous choisissons, sans autre considération physique, des niveaux de champs électriques réduits alternatifs de 5 et 60 Td.

Les profils de température et concentrations initiaux correspondaient à 45 ° de latitude. Il n'y a pas de raison que de plus hautes latitudes soient explorées. Au-delà de 45 °, il y a peu d'orages, et donc peu de *sprites*. Pour compléter le cas nominal, nous choisissons d'utiliser les conditions atmosphériques à 0 ° et 25 °. Ce qui permettra d'étudier les régions tropicales et équatoriales, très soumises aux orages. Pour illustration, les profils de température et de concentration en CO<sub>2</sub> sont présentés en Figure 58.

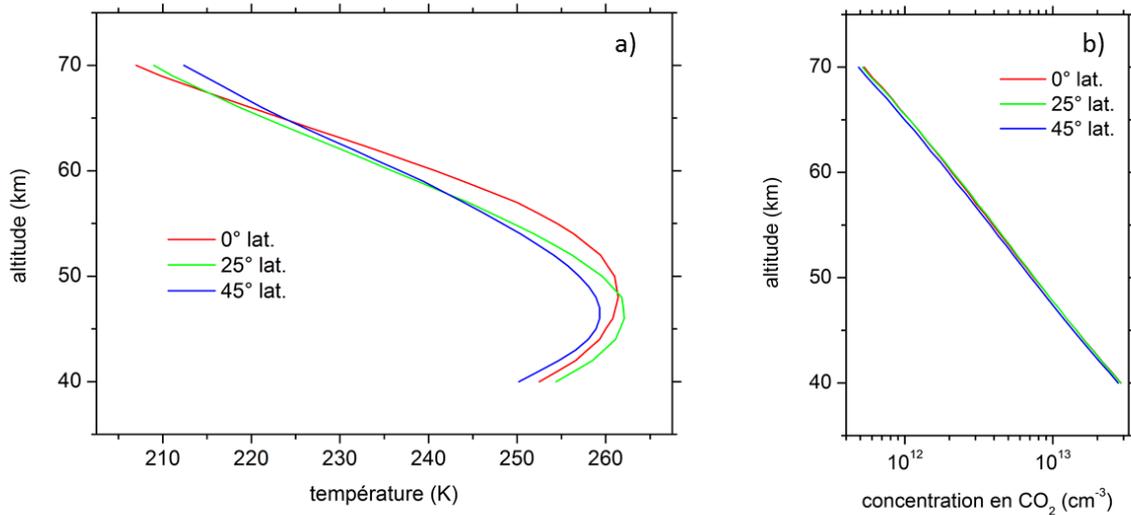


Figure 58 – Profils de température, en a), et de concentration en CO<sub>2</sub>, en b), à 0, 25, et 45 ° de latitude, et 0 ° de longitude. Les différences de température entre les différents profils, à une altitude donnée, atteignent un maximum de 5 K. Les différences sur les concentrations en CO<sub>2</sub> atteignent un facteur 2 au maximum, aux plus hautes altitudes.

On distingue la chimie vibrationnelle du CO<sub>2</sub> en deux catégories : les échanges d'énergie V-V d'une part, les échanges d'énergie V-T d'autre part. La première catégorie décrit, selon le sens de la réaction, l'activation ou la désactivation des états vibrationnels lors d'impact avec les molécules de fond (O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, etc). La seconde catégorie décrit les échanges d'énergie vibrationnelle entre N<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub>, principal mode de production des états vibrationnels de CO<sub>2</sub> actifs dans l'infrarouge. Dans l'ignorance totale des incertitudes associées aux constantes de vitesse de ces processus, nous choisissons d'appliquer une variation + ou - 10 % au niveau nominal de chaque coefficient.

### 4.3. Plan de screening

Un plan d'expérience factoriel complet à 5 facteurs et 3 niveaux nécessiterait 3<sup>5</sup> = 243 calculs, ce qui est encore trop important. Un plan factoriel fractionnaire de résolution V nécessiterait 3<sup>4</sup> = 81 calculs. Parmi les 5 facteurs sélectionnés, nous suspectons les deux premiers (E/N<sub>relax</sub> et concentration e<sub>0</sub><sup>-</sup>) d'avoir un effet important. Pour les trois autres, soit nous n'avons aucun a priori sur leur effet (latitude), soit nous pensons qu'il sera faible (facteurs associés à la chimie vibrationnelle de CO<sub>2</sub>). Nous choisissons donc de commencer l'analyse avec un plan de criblage (*screening*) de résolution III, à 3 niveaux, comprenant 27 calculs<sup>29</sup>. Celui-ci permettra d'avoir un premier aperçu des variations des températures vibrationnelles pour les niveaux choisis et de réaliser l'analyse de sensibilité s'il n'y a aucune interaction entre facteurs. Dans le cas contraire, nous pourrions au moins étudier pleinement l'influence du facteur « Réac. V-V CO<sub>2</sub> vib ».

<sup>29</sup> Pour une étude plus détaillée, celui-ci pourra être complété pour constituer le plan factoriel fractionnaire de résolution V à 81 calculs.

En effet, ce plan d'expérience contient un seul effet principal non aliasé avec des interactions entre 2 facteurs, que nous avons associés à « Réac. V-V CO<sub>2</sub> vib ». Si les résultats sont ceux que nous attendons, il pourra être éliminé par la suite. Les  $3^{5-2} = 27$  calculs nécessaires à ce plan sont présentés dans le Tableau 30. Notons que le cas nominal (Tableau 29) n'est pas utilisé.

Numéro calcul	E/N <sub>relax</sub> (Td)	Concentrations e <sub>0</sub> <sup>-</sup> (cm <sup>-3</sup> )	Latitude des profils (degré)	Constantes de vitesse V-T CO <sub>2</sub> vib	Constantes de vitesse V-V CO <sub>2</sub> vib
1	5	10 <sup>13</sup>	0	-10 %	-10 %
2	5	10 <sup>13</sup>	0	-10 %	nominal
3	5	10 <sup>13</sup>	0	-10 %	+10 %
4	5	10 <sup>14</sup>	25	+10 %	-10 %
5	5	10 <sup>14</sup>	25	+10 %	nominal
6	5	10 <sup>14</sup>	25	+10 %	+10 %
7	5	10 <sup>15</sup>	45	nominal	-10 %
8	5	10 <sup>15</sup>	45	nominal	nominal
9	5	10 <sup>15</sup>	45	nominal	+10 %
10	30	10 <sup>13</sup>	25	nominal	-10 %
11	30	10 <sup>13</sup>	25	nominal	nominal
12	30	10 <sup>13</sup>	25	nominal	+10 %
13	30	10 <sup>14</sup>	45	-10 %	-10 %
14	30	10 <sup>14</sup>	45	-10 %	nominal
15	30	10 <sup>14</sup>	45	-10 %	+10 %
16	30	10 <sup>15</sup>	0	+10 %	-10 %
17	30	10 <sup>15</sup>	0	+10 %	nominal
18	30	10 <sup>15</sup>	0	+10 %	+10 %
19	60	10 <sup>13</sup>	45	+10 %	-10 %
20	60	10 <sup>13</sup>	45	+10 %	nominal
21	60	10 <sup>13</sup>	45	+10 %	+10 %
22	60	10 <sup>14</sup>	0	nominal	-10 %
23	60	10 <sup>14</sup>	0	nominal	nominal
24	60	10 <sup>14</sup>	0	nominal	+10 %
25	60	10 <sup>15</sup>	25	-10 %	-10 %
26	60	10 <sup>15</sup>	25	-10 %	nominal
27	60	10 <sup>15</sup>	25	-10 %	+10 %

Tableau 30 – Plan de *screening* de résolution III à cinq facteurs et trois niveaux. Les facteurs considérés sont le champ électrique réduit pendant la phase de relaxation (2<sup>e</sup> colonne), la concentration en électrons dans les têtes de *streamer* de laboratoire (3<sup>e</sup> colonne), la latitude de simulation, ce qui consiste à faire varier les profils de composition et de température atmosphérique (4<sup>e</sup> colonne), les constantes de vitesse de la chimie vibrationnelle.

### 4.3.1. Présentation des sorties du plan de screening

Afin d'illustrer les résultats des différents calculs, les évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001), à 40 km d'altitude, sont représentées en Figure 59.

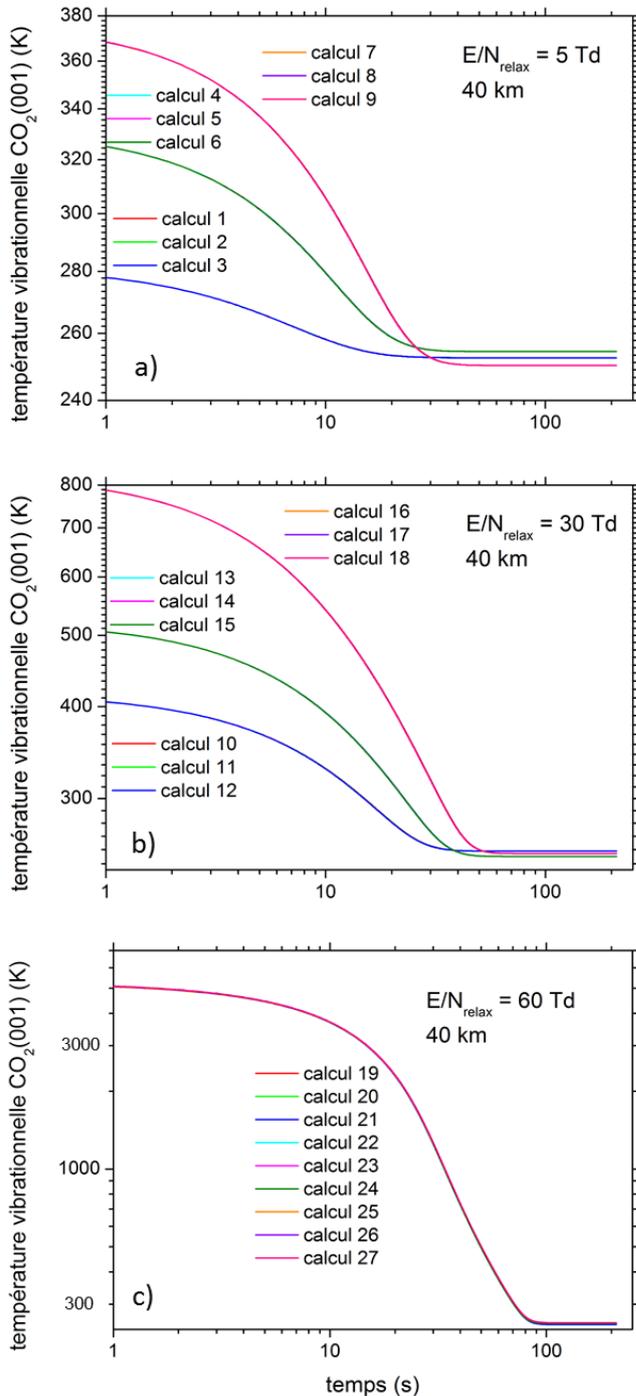


Figure 59 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001) pour les 27 cas du premier plan d'expérience, à 40 km d'altitude. En a), tous les calculs réalisés avec un champ électrique réduit pendant la phase de *pulse* de 5 Td. En b), ce champ est de 30 Td. En c), il est de 60 Td.

Cette représentation graphique permet de reconnaître les effets les plus importants. On voit que les différences entre les champs électriques réduits à 5, 30, et 60 Td sont très fortes. Pour les calculs 1 à 9 ( $E/N_{relax} = 5 \text{ Td}$ ), les températures vibrationnelles maximums varient de 278 à 370 K ( $\Delta T_{vib}$  de 25 à

120 K environ). Pour les calculs 10 à 18 ( $E/N_{\text{relax}} = 30 \text{ Td}$ ), elles varient de  $\sim 400$  à  $800 \text{ K}$  ( $\Delta T_{\text{vib}}$  de  $180$  à  $580 \text{ K}$  environ). Pour les calculs 19 à 27 ( $E/N_{\text{relax}} = 60 \text{ Td}$ ), toutes les sorties sont très proches, et la température vibrationnelle maximale est d'environ  $5000 \text{ K}$  ( $\Delta T_{\text{vib}}$  20 fois supérieure à la température d'équilibre) quel que soit le cas. De même, les températures persistent hors équilibre pendant des durées comprises entre  $20$  et  $30 \text{ s}$  pour les calculs 1 à 9,  $30$  à  $60 \text{ s}$  pour les calculs 10 à 18, et  $80$  à  $90 \text{ s}$  pour les calculs 19 à 27. On peut distinguer 3 populations de sorties pour les calculs réalisés à  $E/N_{\text{relax}} = 5$  et  $30 \text{ Td}$  (Figure 59 a et b). Il semblerait que le facteur responsable soit « concentration  $e_0^-$  », mais en possible présence d'interactions, on ne peut pas être plus précis dans l'interprétation.

À cette même altitude de  $40 \text{ km}$ , et pour  $E/N_{\text{relax}} = 5 \text{ Td}$ , les simulations ne conduisent à aucune perturbation significative des autres espèces vibrationnelles ( $\text{CO}_2(010)$  et  $\text{CO}_2(100)$ ), quelques dixièmes de Kelvins tout au plus. Les évolutions temporelles de  $\text{CO}_2(010)$  et  $\text{CO}_2(100)$ , pour les calculs réalisés  $E/N_{\text{relax}} = 30 \text{ Td}$  et  $40 \text{ km}$  d'altitude, sont présentés dans la Figure 60.

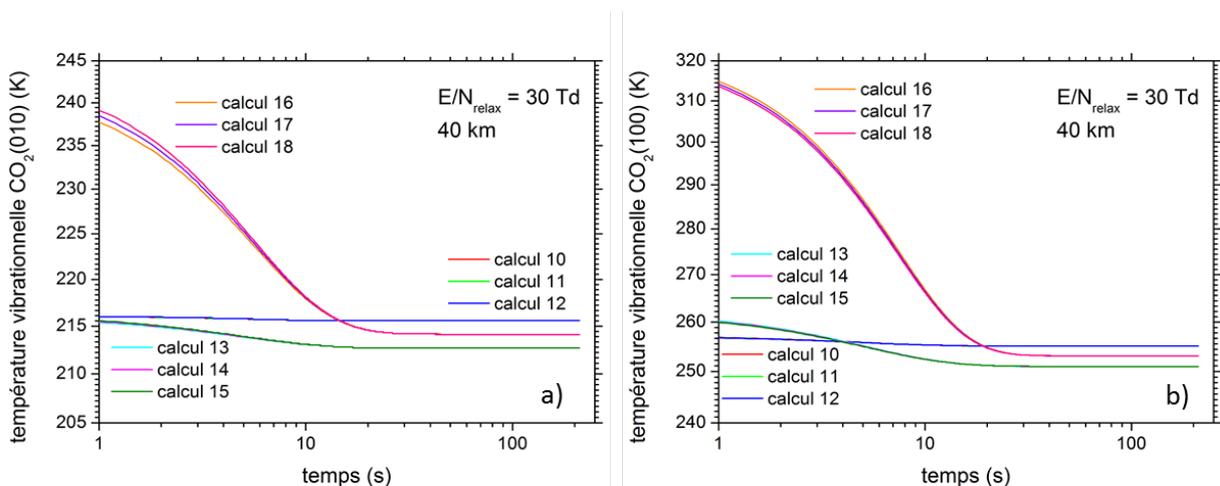


Figure 60 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2(010)$ , en a), et  $\text{CO}_2(100)$ , en b), à  $40 \text{ km}$  d'altitude, pour  $E/N_{\text{relax}} = 30 \text{ Td}$ .

On peut également distinguer 3 populations de résultats. Les  $\Delta T_{\text{vib}}$  de l'espèce  $\text{CO}_2(010)$  ne sont pratiquement pas affectées pour les calculs 10, 11, et 12. Pour les calculs 13, 14, et 15,  $\Delta T_{\text{vib}}$  est de  $2$  à  $3 \text{ Kelvins}$ . Les calculs 16, 17, 18 sont ceux pour lesquels  $\Delta T_{\text{vib}}$  est la plus forte avec  $20$  à  $25 \text{ K}$ .

Les sorties de l'espèce  $\text{CO}_2(100)$  présentent un comportement similaire et des perturbations légèrement supérieures, excepté pour les calculs 10, 11, et 12, qui ne sont toujours pas affectés. On a  $\Delta T_{\text{vib}} = 7$  à  $8 \text{ K}$  pour les calculs 13, 14, et 15, et environ  $60 \text{ K}$  pour les calculs 16, 17, et 18. Les résultats pour  $\text{CO}_2(010)$  et  $\text{CO}_2(100)$  des calculs réalisés à  $E/N_{\text{relax}} = 60 \text{ Td}$  sont présentés dans la Figure 61. Pour le cas à  $60 \text{ Td}$ , il n'est plus possible de distinguer visuellement les 3 différentes populations de sorties mentionnées pour les niveaux inférieurs de  $E/N_{\text{relax}}$ . L'ensemble des simulations affectent les températures vibrationnelles dans une proportion similaire. Les  $\Delta T_{\text{vib}}$  de l'espèce  $\text{CO}_2(010)$  sont comprises entre  $465$  et  $485 \text{ K}$ . On remarque la même chose pour l'espèce  $\text{CO}_2(100)$ , avec des perturbations supérieures, comprises entre  $1050$  et  $1150 \text{ K}$ .

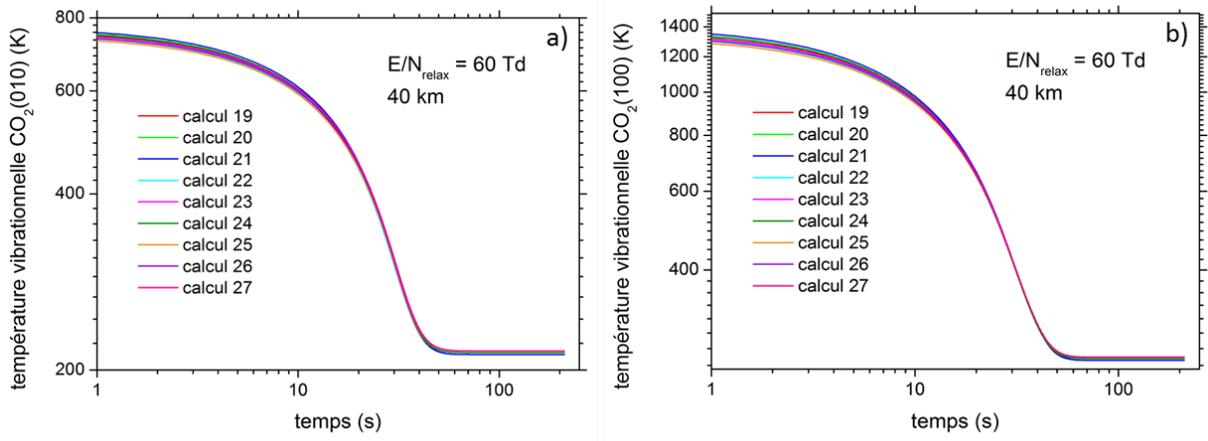


Figure 61 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(010), en a), et CO<sub>2</sub>(100), en b), à 40 km d’altitude, pour  $E/N_{relax} = 60$  Td.

Aux autres altitudes, les comportements sont similaires. Pour illustration, les sorties de  $T_{vib}$  de CO<sub>2</sub>(001) pour les 27 calculs et une altitude de 70 km sont présentées dans la Figure 62.

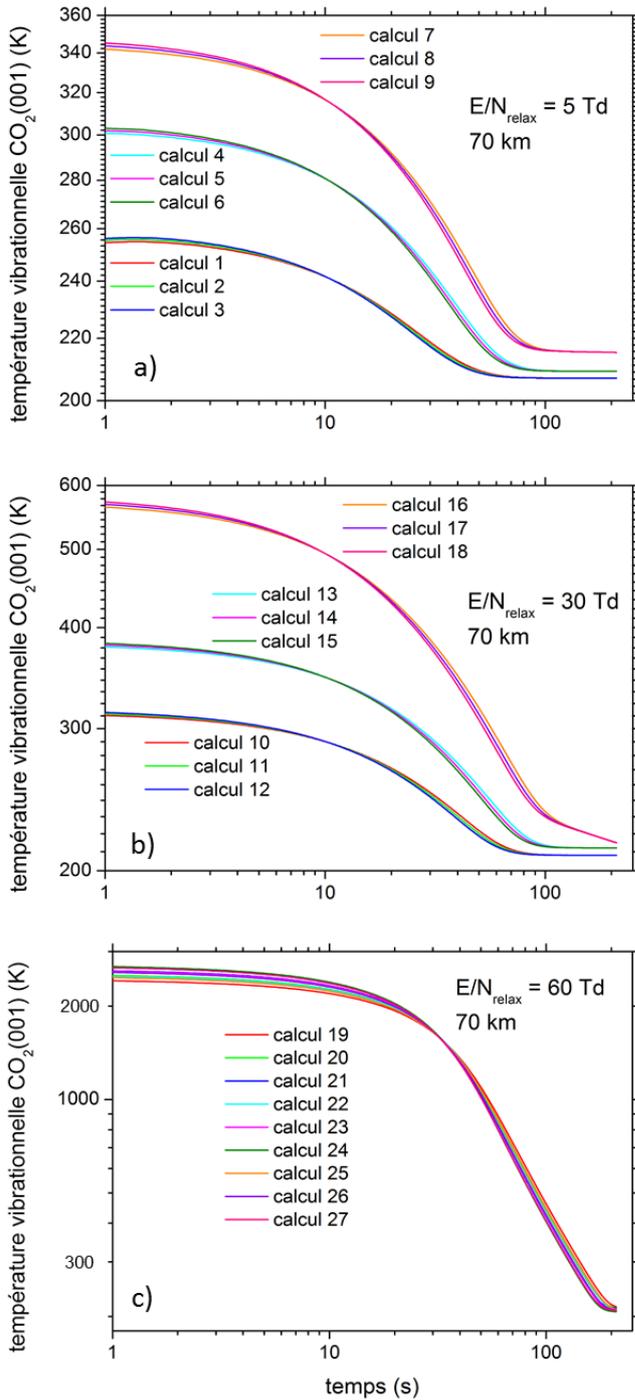


Figure 62 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001) pour les 27 cas du premier plan d’expérience, à 70 km d’altitude. En a), tous les calculs réalisés avec un champ électrique réduit pendant la phase de *pulse* de 5 Td. En b), ce champ est de 30 Td. En c), il est de 60 Td.

Les amplitudes de perturbation diminuent à mesure que l’altitude augmente, alors que la durée de la perturbation augmente avec l’altitude. Pour les calculs à 5 Td, les  $T_{vib}$  mettent 60 à 100 s pour retomber à leur valeur d’équilibre. À 30 Td, elles mettent 80 à 200 s. À 60 Td, pour les 9 simulations, elles mettent environ 200 s.

Pour conclure sur cette présentation des résultats du premier plan d’expérience, on peut dire que l’effet d’ $E/N_{relax}$  est particulièrement important. Pour  $E/N_{relax} = 60$  Td, les  $\Delta T_{vib}$  sont supérieurs d’un ordre de grandeur au cas nominal (avec, pour rappel,  $E/N_{relax} = 30$  Td). Aucun auteur ne mentionne la présence de champs électriques aussi forts pendant une durée supérieure à quelques ms. On ne

saurait donc justifier l'étude de champs électriques réduits supérieurs à 60 Td. D'autre part, les sorties à 5 et 30 Td sont très similaires, à la variation d'amplitude de  $\Delta T_{\text{vib}}$  près. Le changement le plus intéressant dans les sorties se produit entre 30 et 60 Td, nous pourrions donc concentrer nos efforts sur l'étude de la gamme 30 – 60 Td. Cet aspect constituera une perspective à court terme, qui fera suite aux travaux présentés ici. Si on en revient à l'objectif premier de ce plan d'expérience, à savoir évaluer l'impact du facteur « Constantes de vitesse V-V CO<sub>2</sub> vib », que l'on préjugeait faible, on peut conclure que, visuellement, aucune variation significative de température vibrationnelle ne peut lui être attribuée. Pour valider cette observation, il est nécessaire d'interpréter les sorties calculées à l'aide des outils statistiques introduits en « 4.1 ».

### 4.3.2. Interprétation des indices de Sobol

La Figure 63 montre les indices principaux et totaux associés au facteur « constantes de vitesse V-V » et à la sortie correspondante aux évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001). Ceux-ci sont exprimés en pour cent. Ils sont estimés de manière analytique à partir du modèle linéaire appris à partir des résultats des 27 simulations associées au plan d'expérience.

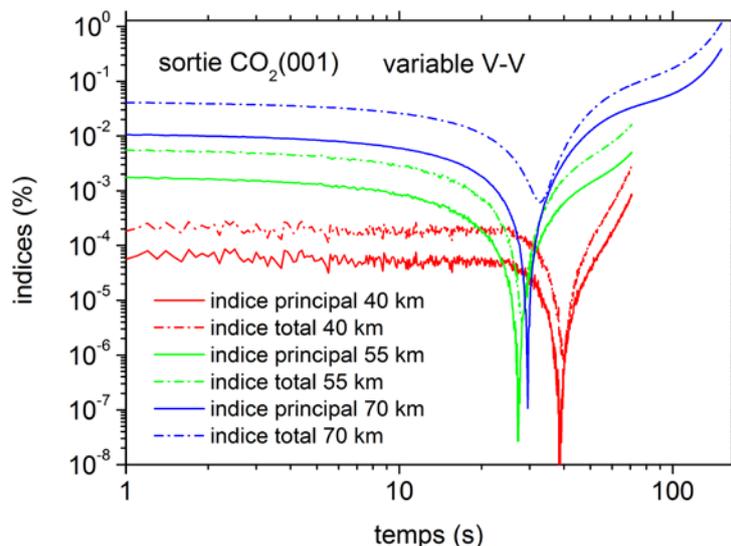


Figure 63 – Indices principaux et totaux pour le facteur « constantes de vitesse V-V » et la sortie « températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001) ».

Les indices évoluent peu temporellement jusqu'à une vingtaine de secondes. Ils ont un comportement similaire aux trois altitudes représentées. Après 20 s, les variations d'indice sont moins significatives car elles correspondent à des temps où les températures vibrationnelles varient moins et sont plus proches des températures d'équilibre. La différence entre indices principaux et totaux indique la présence d'interactions (indice total = indice principal + indices des différentes interactions, voir Figure 64). On peut d'ailleurs préciser que les interactions sont importantes car, avant 20 s, les indices totaux sont 2 à 5 fois supérieurs aux indices principaux.

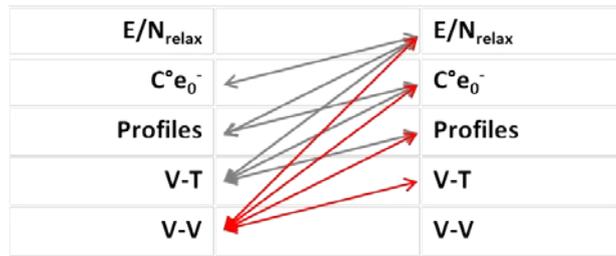


Figure 64 – Schéma des interactions 2 à 2 de V-V avec les autres facteurs. Avec 5 facteurs, V-V a 4 interactions, et il y a 10 interactions au total.

À 70 km, la Figure 63 montre que, jusqu'à 20 s environ,  $10^{-2}$  % de la variance de la sortie « températures vibrationnelles de  $CO_2(001)$  » s'explique par le facteur « constantes de vitesse V-V ». De plus, environ  $3 \times 10^{-2}$  % de la variance s'explique par l'effet cumulé du facteur « constantes de vitesse V-V » et de ses interactions avec les autres facteurs (4 interactions). De cette façon, on déduit que  $2 \times 10^{-2}$  % de la variance s'explique uniquement par les différentes interactions. On peut en conclure que l'effet de ce facteur sur la sortie « températures vibrationnelles de  $CO_2(001)$  » est négligeable. La même conclusion s'applique également pour les sorties associées aux espèces  $CO_2(010)$  et  $CO_2(100)$ .

Comme on l'a vu, en raison de sa construction, ce plan d'expérience ne permet pas de réaliser des interprétations fiables sur les autres facteurs puisque « constantes de vitesse V-V » est le seul effet principal à ne pas être aliasé avec des interactions entre deux facteurs. De plus, les interactions ne sont pas négligeables. Toutefois, la représentation des évolutions temporelles des températures vibrationnelles en Figure 59, Figure 60, Figure 61, et Figure 62, a permis de constater un fort effet de  $E/N_{relax}$ . Pour illustration, l'évolution temporelle de l'indice principal associé à ce facteur est représentée en Figure 65.

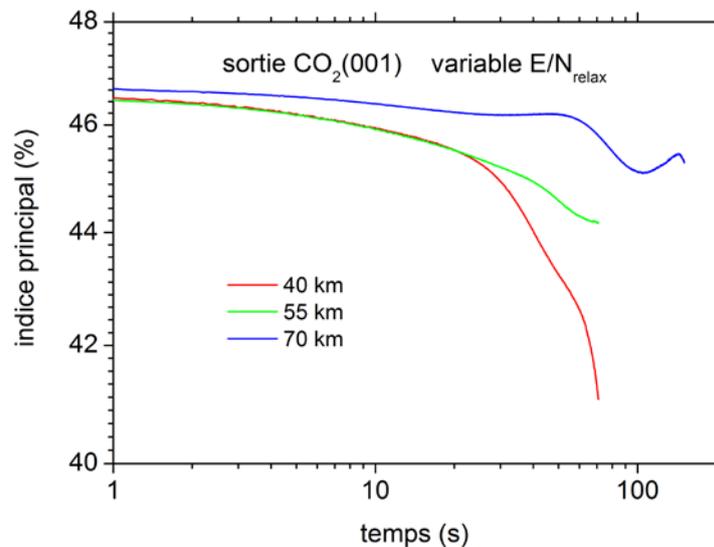


Figure 65 – Indices principaux pour le facteur «  $E/N_{relax}$  » et la sortie « températures vibrationnelles de  $CO_2(001)$  ».

Sans s'attarder sur la valeur de l'indice, on note quand même que celui-ci est beaucoup plus élevé que celui de « constantes de vitesse V-V » puisqu'il est compris entre 41 et 47 %. Précisons que c'est

le facteur à l'indice principal le plus élevé et que, pour les autres espèces CO<sub>2</sub>(010) et CO<sub>2</sub>(100), les valeurs des indices sont similaires. De la même façon qu'avec le facteur « constantes de vitesse V-V », les variations d'indice après 20 s sont peu significatives.

Le bilan de ce premier plan d'expérience est que l'effet de « constantes de vitesse V-V » est négligeable. On peut donc éliminer ce facteur. Par ailleurs, on a constaté que la différence des sorties est beaucoup plus importante entre les cas à 30 et 60 Td, qu'entre les cas à 5 et 30 Td. On élimine donc le niveau « 5 Td » du facteur « E/N<sub>relax</sub> ».

## 4.4. Plan factoriel complet

Afin de caractériser l'effet de l'ensemble des facteurs qu'il nous reste, on définit un plan factoriel complet à 2 niveaux et 4 facteurs, ce qui nous permet de limiter le nombre de calculs à 16, moins ceux qui ont déjà été réalisés pour le premier plan, et le calcul de référence, qui sera utilisé cette fois-ci. Ces calculs, comme un tiers de ceux du plan de screening de résolution III, font partie du plan factoriel complet pour 4 facteurs à 3 niveaux de 81 calculs.

Pour le facteur « E/N<sub>relax</sub> », on garde les niveaux 30 et 60 Td, pour « Concentrations e<sub>0</sub>- », on garde les niveaux 10<sup>14</sup> et 10<sup>15</sup> cm<sup>-3</sup>, pour « Latitude », on garde les niveaux 0 et 45 °, et pour « Constantes de vitesse V-T CO<sub>2</sub> vib », on garde le niveau nominal et +10 %. Le plan d'expérience associé est présenté en Tableau 31.

Numéro calcul	E/N <sub>relax</sub> (Td)	Concentrations e <sub>0</sub> <sup>-</sup> (cm <sup>-3</sup> )	Latitude des profils (degré)	Constantes de vitesse V-T CO <sub>2</sub> vib
1	30	10 <sup>14</sup>	45	Nominal
2	30	10 <sup>14</sup>	45	+10 %
3	30	10 <sup>14</sup>	0	Nominal
4	30	10 <sup>14</sup>	0	+10 %
5	30	10 <sup>15</sup>	45	Nominal
6	30	10 <sup>15</sup>	45	+10 %
7	30	10 <sup>15</sup>	0	Nominal
8	30	10 <sup>15</sup>	0	+10 %
9	60	10 <sup>14</sup>	45	Nominal
10	60	10 <sup>14</sup>	45	+10 %
11	60	10 <sup>14</sup>	0	Nominal
12	60	10 <sup>14</sup>	0	+10 %
13	60	10 <sup>15</sup>	45	Nominal
14	60	10 <sup>15</sup>	45	+10 %
15	60	10 <sup>15</sup>	0	Nominal
16	60	10 <sup>15</sup>	0	+10 %

Tableau 31 – Plan factoriel complet à 2 niveaux et 4 facteurs.

Toutes les sorties associées à ces calculs sont présentées dans la Figure 66 pour 40 et 70 km d'altitude.

#### 4.4.1. Présentation des sorties du plan factoriel complet

Comme le premier plan d'expérience le montrait déjà, le principal effet provient du facteur «  $E/N_{\text{relax}}$  », qui engendre deux populations de sorties, quelle que soit l'altitude, et quelle que soit l'espèce considérée. La première population de sorties correspond aux calculs 1 à 8 (30 Td), la seconde aux calculs 9 à 16 (60 Td).

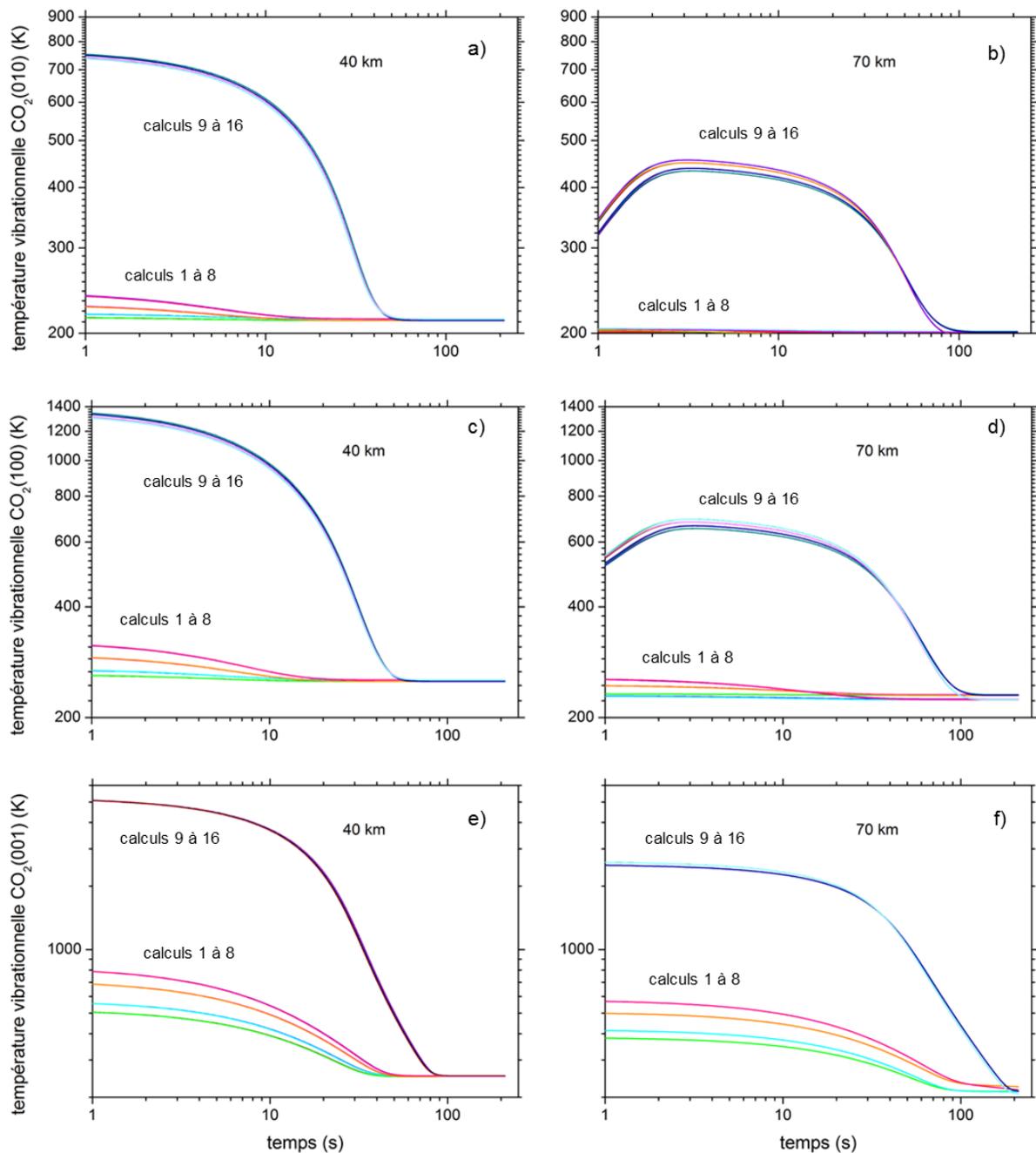


Figure 66 – Comparaisons des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(010), CO<sub>2</sub>(100), et CO<sub>2</sub>(001), issues du second plan d'expérience, à 40 et 70 km d'altitude. En a) et b) les sorties de CO<sub>2</sub>(010), à 40 et 70 km respectivement. Même chose en c) et d) pour CO<sub>2</sub>(100), et en e) et f) pour CO<sub>2</sub>(001). Pour rappel, le cas nominal dont les résultats sont décrits en « 3.3.2 » correspond au calcul n° 1.

À 40 km, pour les sorties avec  $E/N_{\text{relax}} = 60 \text{ Td}$  (calculs 9 à 16), l'effet des autres facteurs est totalement occulté par la prédominance de  $E/N_{\text{relax}}$ . Les sorties à 30 Td (calculs 1 à 9) permettent de distinguer visuellement quatre populations, qui semblent dépendre à la fois de « Concentrations  $e_0^-$  » et de « latitude ». Des zooms sur ces sorties à 40 km sont présentés en Figure 67, pour une meilleure illustration de ces effets.

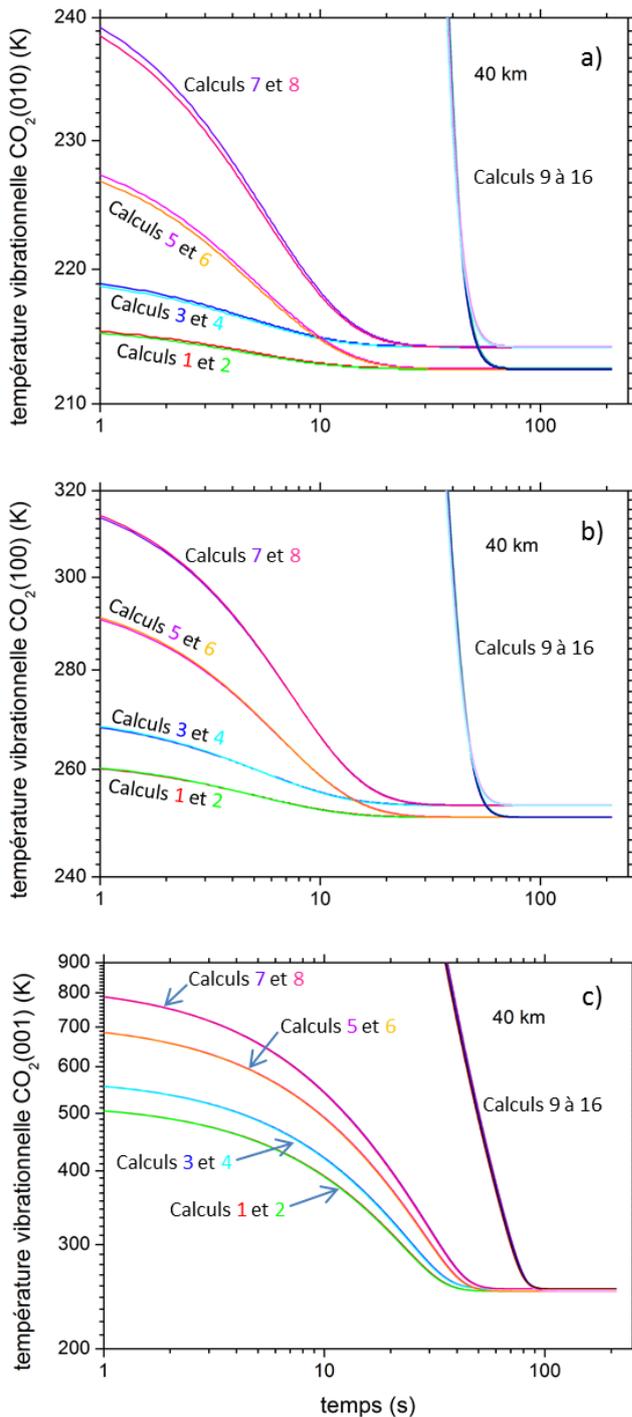


Figure 67 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2(010)$ ,  $\text{CO}_2(100)$ , et  $\text{CO}_2(001)$ , issues du second plan d'expérience, à 40 km. Zoom sur les calculs 1 à 8, réalisés avec un  $E/N_{\text{relax}}$  de 30 Td.

Les résultats associés à l'espèce  $\text{CO}_2(010)$ , en a), sont ceux pour lesquels la distinction entre les différents effets est la plus nette. Parmi les sorties 1 à 8, on peut distinguer les 1, 2, 3, 4, pour lesquelles le facteur « Concentrations  $e_0^-$  » vaut  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$ , et 5, 6, 7, 8, pour lesquelles il est de  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Ensuite, les calculs 1, 2, 5, 6 correspondent à  $45^\circ$  de latitude, et les 3, 4, 7, 8 à  $0^\circ$  de latitude. On peut même distinguer une très légère contribution de « Constantes de vitesse V-T  $\text{CO}_2$  vib », qui conduit à une différence de l'ordre de 1 K entre les calculs 1 et 2, 3 et 4, 5 et 6, 7 et 8. On fait le même constat pour  $\text{CO}_2(100)$  et  $\text{CO}_2(001)$ , même si la différence causée par « Constantes de vitesse V-T  $\text{CO}_2$  vib » est « écrasée » par l'amplitude de la perturbation des températures vibrationnelles. La même chose est visible aux autres altitudes, avec des variations de température moins importantes.

À 70 km d'altitude (voir Figure 66), pour les calculs 1 à 8, les températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(010) ne sont pratiquement pas affectées : moins de 5 K de  $\Delta T_{\text{vib}}$  maximum. Pour CO<sub>2</sub>(100), le  $\Delta T_{\text{vib}}$  maximum atteint 20 K, et les effets de « Concentrations  $e_0^-$  » et de « latitude » se distinguent. Mêmes remarques pour l'espèce la plus perturbée, CO<sub>2</sub>(001), avec un  $\Delta T_{\text{vib}}$  qui atteint 150 K, pour les calculs 1 et 2 (30 Td,  $10^{14}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>3</sup>, 45 ° de latitude), à 350 K, pour les calculs 7 et 8 (30 Td,  $10^{15}$  e<sup>-</sup>/cm<sup>3</sup>, 0 ° de latitude).

À cette même altitude, on peut désormais percevoir des différences au sein de la population de calculs à 60 Td. L'exemple des sorties pour CO<sub>2</sub>(010) est donné en Figure 68.

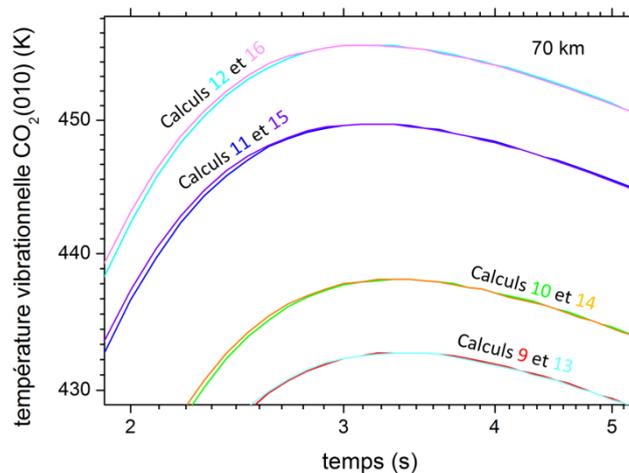


Figure 68 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(010), issues du second plan d'expérience, à 70 km. Zoom sur les calculs 9 à 16, réalisés avec un  $E/N_{\text{relax}}$  de 60 Td.

Cette représentation permet de distinguer 2 populations selon le niveau de latitude : 45 ° pour les calculs 9, 10, 13, 14, et 0 ° pour les calculs 11, 12, 15, 16. Au sein de chacune de ces populations, on peut en distinguer deux autres, issues du niveau de « constantes de vitesse V-V CO<sub>2</sub> vib. » : nominal pour les calculs 9, 13 et 11, 15, et à +10 % pour les calculs 10, 14 et 12, 16. L'effet restant, au sein de chaque paire de calculs (9 et 13, 10 et 14, 11 et 15, 12 et 16), est réduit à quelques dixièmes de K et est attribuable à « Concentrations  $e_0^-$  ».

À 70 km et 60 Td, on fait le même constat avec l'espèce CO<sub>2</sub>(100), avec des amplitudes de  $\Delta T_{\text{vib}}$  plus importantes. Pour l'espèce CO<sub>2</sub>(001), on ne distingue plus que deux populations de calculs (Figure 69).

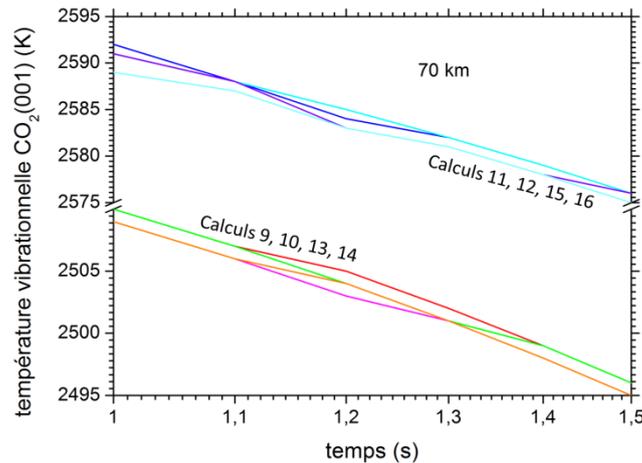


Figure 69 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2(001)$ , issues du second plan d'expérience, à 70 km. Zoom sur les calculs 9 à 16, réalisés avec un  $E/N_{\text{relax}}$  de 60 Td.

Les calculs 11, 12, 15, 16 sont réalisés à  $0^\circ$  de latitude, et les calculs 9, 10, 13, 14 à  $45^\circ$ . Les autres effets ne sont plus discernables pour cette espèce.

Pour apporter une évaluation plus quantitative de ces effets, on examine les évolutions temporelles des différents indices.

#### 4.4.2. Indices de Sobol et tests de significativité

Les indices principaux, d'interactions, et totaux, pour  $\text{CO}_2(001)$ , à 40 km, sont présentés dans la Figure 70. Les indices principaux montrent une forte prédominance de  $E/N_{\text{relax}}$ , qui explique plus de 99 % de la variance des sorties<sup>30</sup>. Viennent ensuite les facteurs « profils », « Concentrations  $e_0^-$  », et « Constantes de vitesse V-T  $\text{CO}_2$  vib ». Ils expliquent une très faible part de variance. De plus, au niveau de précision de l'estimation, on ne peut pas discriminer des parts de variance inférieures à 0.1 %. On ne peut donc pas véritablement hiérarchiser les effets de ces trois facteurs. Les indices sont similaires pour les autres espèces et les autres altitudes.

<sup>30</sup> Comme la variance correspond au carré des écarts-types, l'impact des facteurs est accentué.

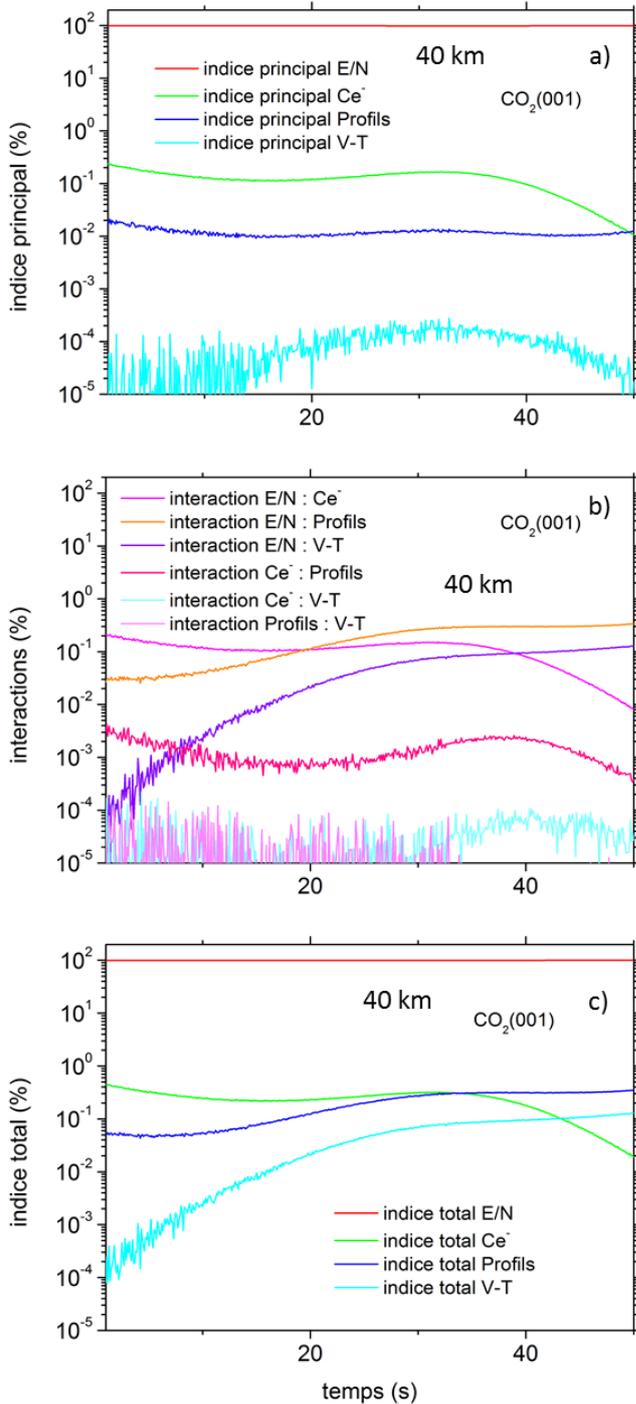


Figure 70 – Indices principaux, en a), d'interactions 2 à 2, en b), et totaux, en c), pour les quatre facteurs, pour l'espèce  $\text{CO}_2(001)$ , et 40 km d'altitude. Les indices après 50 s ne sont pas représentés. Les températures vibrationnelles étant retombées à leur valeur d'équilibre, ils présentent des variations qui ne sont pas significatives.

Pour expliquer davantage le comportement des sorties, on s'intéresse aux coefficients de régression du modèle linéaire décrit dans « 4.1.3 ». On peut ainsi obtenir le sens de variation de la sortie quand le niveau d'un facteur augmente, et déterminer la proportion de cette augmentation attribuable à chaque facteur, et également aux interactions 2 à 2. Les coefficients associés à chaque facteur et interactions 2 à 2 du modèle linéaire (Équation 53) sont présentés en Figure 71.

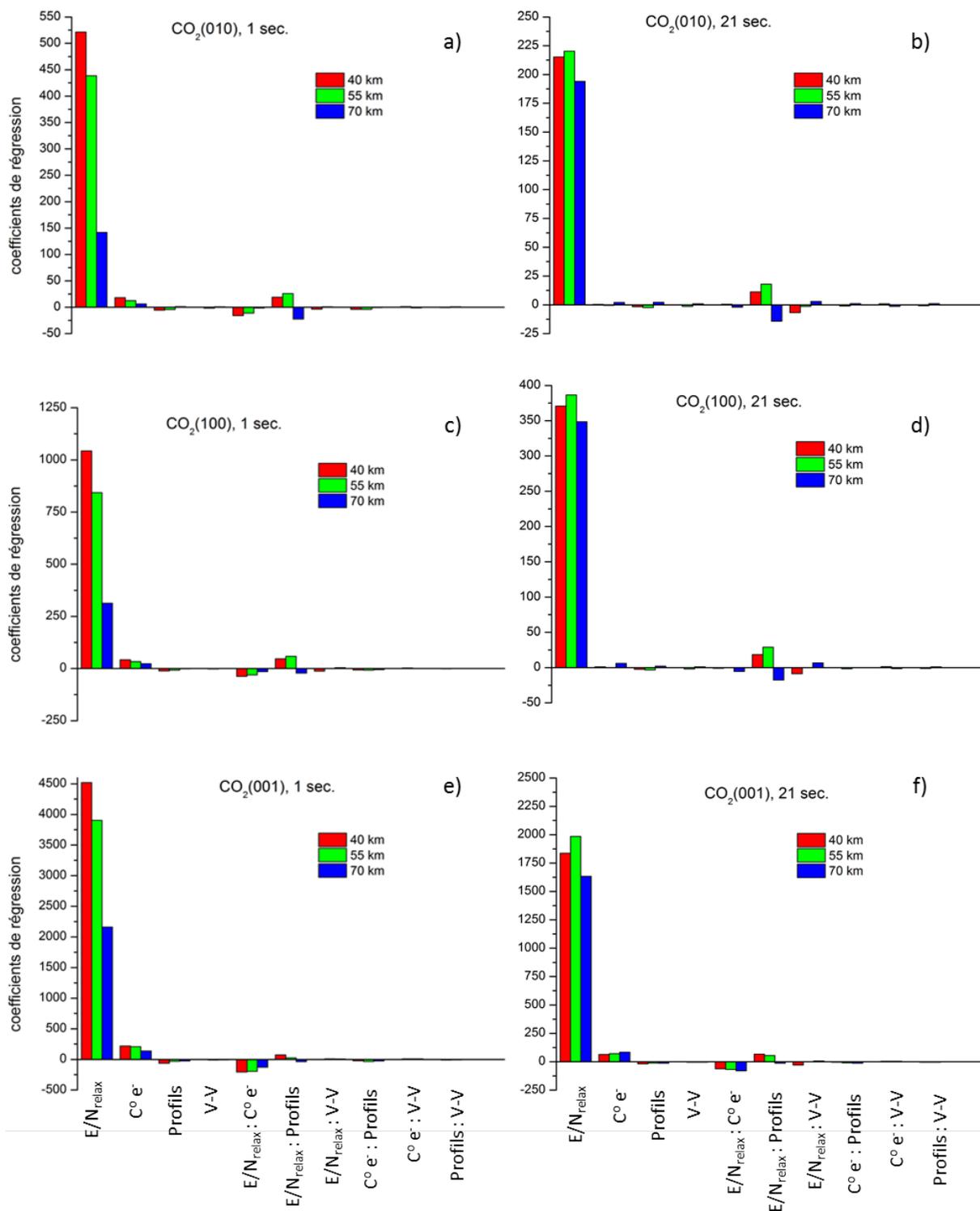


Figure 71 – Coefficients de régression du modèle linéaire appris sur les simulations du plan d’expérience factoriel complet. Les coefficients sont donnés à 1 et 21 s, à 40, 55, 70 km, pour les trois espèces CO<sub>2</sub>(010), CO<sub>2</sub>(100), et CO<sub>2</sub>(001). De gauche à droite sont représentés les coefficients associés aux 4 facteurs et aux 6 interactions 2 à 2.

La contribution de E/N<sub>relax</sub> est, comme on l’a vu avec les indices de Sobol, celle qui ressort le plus puisque le coefficient de régression qui lui est associée est toujours supérieur d’au moins un ordre de grandeur aux coefficients associés aux autres facteurs. Le second coefficient le plus important est

celui de « Concentrations  $e_0^-$  ». Celui-ci présente une importance plus marquée pour l'espèce  $\text{CO}_2(001)$ . Les coefficients de « Profils » sont négatifs, ce qui indique que la perturbation de température vibrationnelle est plus forte pour les calculs à  $0^\circ$  de latitude que pour ceux à  $45^\circ$ . À 1 s, les interactions les plus importantes sont «  $E/N_{\text{relax}}$  : Concentrations  $e_0^-$  », dont les coefficients sont négatifs, et «  $E/N_{\text{relax}}$  : Profils », aux coefficients positifs, sauf à 70 km. Après 21 s, le constat est similaire mis à part une importance moindre de «  $E/N_{\text{relax}}$  : Concentrations  $e_0^-$  » et supérieure de «  $E/N_{\text{relax}}$  : Profils ».

Les résultats des tests de Student permettent de classer l'importance des facteurs. Ceux-ci sont présentés dans la Figure 72. Les facteurs pour lesquels l'estimation de « t » est significative, c'est-à-dire ceux pour lesquels  $(Pr > |t|) < 0.05$  sont marqués d'une étoile « \* ».

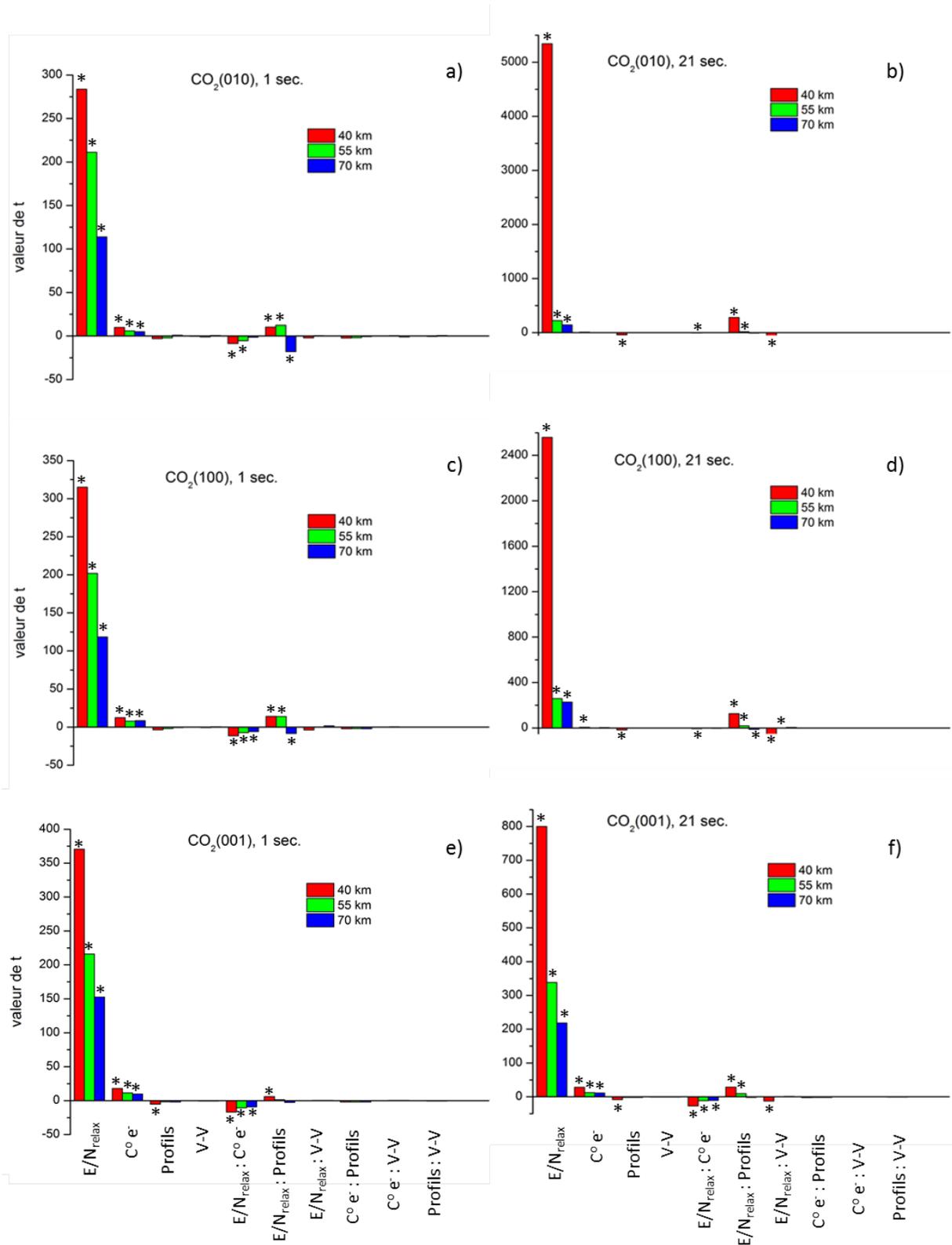


Figure 72 – Résultats des tests de Student réalisés à partir du modèle linéaire appris sur les simulations du plan d'expérience factoriel complet. Les « t » sont donnés à 1 et 21 s, à 40, 55, 70 km, pour les trois espèces  $CO_2(010)$ ,  $CO_2(100)$ , et  $CO_2(001)$ . De gauche à droite sont représentées les valeurs de « t » associées aux 4 facteurs et aux 6 interactions 2 à 2. Les valeurs de « t » significatives sont marquées d'une « \* ».

Quelle que soit l'espèce vibrationnelle ou l'altitude, le facteur le plus important, celui pour lequel le « t » est le plus élevé, est celui associé à « E/N<sub>relax</sub> ». Ce facteur est d'autant plus important que l'altitude est basse. Pour CO<sub>2</sub>(001), à toutes les altitudes et aux deux temps présentés (1 et 21 s) on peut classer les facteurs, du plus important au moins important : « E/N<sub>relax</sub> », « Concentrations e<sub>0</sub><sup>-</sup> », « Profils », et, en dernier, « Constantes de vitesse V-T CO<sub>2</sub> vib ». Au niveau des interactions, seules « E/N<sub>relax</sub> : Concentrations e<sub>0</sub><sup>-</sup> », et « E/N<sub>relax</sub> : Profils » sont significatives à 1 s. À 21 s, et 40 km, « E/N<sub>relax</sub> : Constantes de vitesse V-T CO<sub>2</sub> vib » joue également un rôle. Pour CO<sub>2</sub>(100), seuls les facteurs « E/N<sub>relax</sub> » et « Concentrations e<sub>0</sub><sup>-</sup> » sont significatifs à 1 s. À 21 s, « E/N<sub>relax</sub> » est important à toutes altitudes alors que « Concentrations e<sub>0</sub><sup>-</sup> », « Profils » ne sont significatifs qu'à 40 km. Au niveau des interactions, « E/N<sub>relax</sub> : Profils » est désormais la plus importante à 1 s ainsi qu'à 21 s. « E/N<sub>relax</sub> : Constantes de vitesse V-T CO<sub>2</sub> vib » semble également jouer un certain rôle à 40 km. On peut faire un constat similaire pour l'espèce CO<sub>2</sub>(010). Pour conclure à propos de la significativité des interactions, mis à part quelques cas où celles avec « E/N<sub>relax</sub> » sont significatives, les autres sont négligeables.

## 4.5. Bilan du quatrième chapitre et discussion des résultats obtenus

L'objectif de ce chapitre était d'étudier et de hiérarchiser les effets des différents paramètres (facteurs) du modèle cinétique développé. Une étude exhaustive n'était pas réalisable dans le cadre de cette thèse pour deux raisons. D'abord, il aurait fallu pouvoir attribuer des incertitudes à chacun des paramètres du modèle, ce que nous ne pouvions pas faire devant le grand nombre de réactions. D'autre part, cela aurait nécessité un nombre de calculs irréaliste pour évaluer l'effet de chacun de ces paramètres. Problème appelé « fléau de la dimension » (Bellman 1961). Nous nous sommes focalisés sur les 5 facteurs dont les effets étaient pressentis comme les plus importants.

Au vu des résultats, on estime que l'effet d'une incertitude de +/- 10 % sur les constantes de vitesse de la cinétique vibrationnelle de CO<sub>2</sub>, processus V-T ou V-V, est négligeable (< à 1 K). Toutefois, on n'a pas étudié indépendamment les réactions, et l'on a choisi la gamme de variation de façon arbitraire, sans justification physique, le besoin étant ici de tester son effet. Dans ce cadre, la seule chose que l'on peut conclure est que, si l'on attribue une incertitude de +/- 10 % à ces constantes de vitesse, alors la variation sur les sorties est inférieure à 1 K. Pour en apprendre davantage, il faudrait déterminer chaque incertitude de chaque réaction (une cinquantaine pour la chimie vibrationnelle, plus de 400 si l'on étendait cette étude à toutes les réactions). Ceci nécessiterait un travail de bibliographie conséquent.

On a démontré que le champ électrique réduit appliqué pendant la phase de relaxation est le paramètre dont l'incertitude influencera le plus les sorties. Toutefois, on peut émettre des critiques vis-à-vis de la gamme de variation choisie. En effet, aucune publication ne mentionne de champ électrique réduit entretenu au-dessus des cumulonimbus aussi élevé que 60 Td. Picard et al. (1997) parle d'un champ de 30 Td. Gordillo-Vázquez (2008), dans sa simulation de *streamer*, impose un champ de 1 Td, puis 30 Td dans sa publication de 2010. Pour Parra-Rojas (2015), qui calcule son évolution dans le canal d'un *streamer*, ce champ est variable : il est autour de 100 Td pendant quelques 10<sup>-5</sup> s, tombe à environ 30 Td jusqu'à plusieurs 10<sup>-2</sup> s, avec des oscillations, et retombe ensuite à quelques Td jusqu'à la fin de la simulation. Pour cette étude de sensibilité, on a défini la valeur supérieure de niveau de champ électrique réduit pendant la relaxation en faisant un unique

postulat, qui était que ce champ devait être supérieur à celui du cas nominal et inférieur à la limite d'ionisation. La différence de comportement entre les sorties à 5 et 30 Td, et celles à 60 Td nous pousse à penser que ce dernier cas n'est pas réaliste. Pour s'en convaincre, on peut regarder l'évolution temporelle des concentrations de  $N_2(v_1)$ , principal vecteur de transmission d'énergie vers  $CO_2(001)$ , pour une simulation réalisée avec  $E/N_{relax} = 60$  Td (Figure 73). On constate alors que les concentrations trouvées pour cette espèce atteignent des maximums beaucoup plus importants que celles obtenues par Gordillo-Vazquez (2010 2008), présentées en Figure 52. La différence est de plus de 6 ordres de grandeur. De même, les concentrations de  $N_2(v_1)$  atteignent presque 20 % de la concentration totale de l'atmosphère ( $1.5 \times 10^{16}$  contre  $8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  à 40 km). Par ailleurs, en appliquant un tel champ, l'évolution temporelle des concentrations en électrons pendant la relaxation n'a plus rien à voir avec celle du cas nominal et des différents cas de la littérature utilisés pour validation et présentés en « 3.2.1.2 ». Pour la suite, on ignore donc les résultats obtenus à 60 Td, que l'on juge irréalistes. Enfin, précisons qu'entre les sorties à 5 et à 30 Td, on obtient une différence de presque un facteur 2 sur les températures vibrationnelles. Celles à 30 Td étant toutefois celles pour lesquelles les sorties associées aux électrons et aux niveaux vibrationnels de  $N_2$  sont les plus proches des cas de la littérature (voir « 3.2.1.2 »).

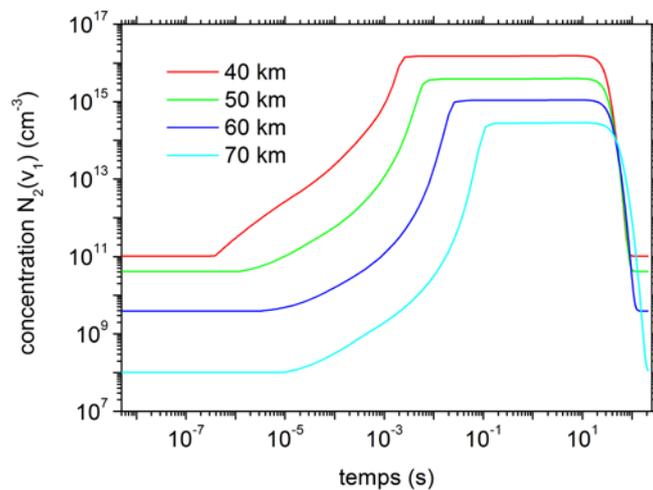


Figure 73 – Évolutions temporelles des concentrations de  $N_2(v_1)$  obtenues pour un calcul alternatif réalisé pour l'analyse de sensibilité. Le champ électrique réduit de la phase de relaxation est de 60 Td, les autres paramètres sont à leur valeur nominale.

Le second paramètre le plus influent est la concentration en électrons dans les têtes de *streamers* à l'altitude zéro, utilisée pour la mise à l'échelle des concentrations maximales atteintes à chacune des altitudes étudiées dans ce travail. Pour ce paramètre, on a basé l'incertitude sur les résultats de différentes simulations analogiques (décharges de laboratoire) et numériques (voir section « 3.2.1.2 »). Ainsi, on définit l'incertitude à  $+/- 1$  ordre de grandeur de la valeur nominale, qui était de  $10^{14} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ . Cette incertitude conduit, pour  $CO_2(001)$ , à des variations maximales de  $+/- 20$  à  $40\%$  sur les températures vibrationnelles de sortie. Pour les deux autres espèces vibrationnelle,  $\Delta T_{vib}$  atteint un maximum d'environ 50 K (excepté pour les calculs à 60 Td, exclus de cette discussion). Or, c'est ce qu'on verra dans le chapitre suivant, une variation de température vibrationnelle inférieure à 50 K conduit à une perturbation radiative trop faible pour envisager une détection. On considère que d'aussi faibles variations ne sont pas significatives.

Le dernier paramètre à présenter une influence notable est la latitude à laquelle est réalisée la simulation. La variation de latitude n'est pas une incertitude, cela correspond à une variabilité

géographique, qui influence les profils de composition chimique et de température. Pour ce paramètre, l'incertitude au sens strict serait attribuable aux concentrations et températures fournies par WACCM. Nous avons utilisé des valeurs moyennes estivales. Un moyen d'évaluer l'incertitude serait donc de calculer l'écart-type pour chacun des profils de composition et celui de température. Pour en revenir aux effets de la variabilité géographique, selon l'espèce vibrationnelle et l'altitude, on obtient une variation maximale de +/- 10 % sur les  $\Delta T_{\text{vib}}$  de sortie (par rapport à la latitude intermédiaire de 25 °). Les perturbations les plus fortes étant obtenues à l'équateur, et les moins fortes à 45 °.

Enfin, selon les hypothèses formulées dans cette étude de sensibilité (« 4.2 »), on propose de définir l'incertitude sur les températures vibrationnelles du calcul nominal à partir des résultats des simulations qui produisent les perturbations les plus faibles et les plus fortes (à l'exception de celles pour lesquelles le champ électrique de la phase de relaxation est de 60 Td). Ainsi, la borne inférieure est constituée par les températures vibrationnelles issues du calcul numéro 1 (Tableau 30), et la borne supérieure par les températures vibrationnelles du calcul numéro 18 (Tableau 30). À titre d'illustration, ces températures vibrationnelles sont données en fonction de l'altitude, pour  $\text{CO}_2(001)$ , en Figure 74.

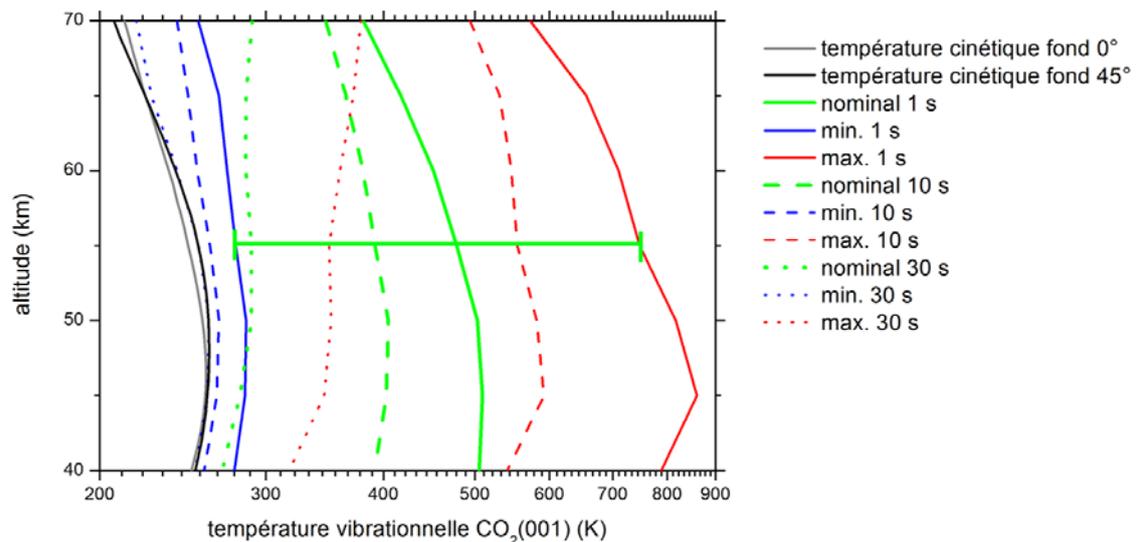


Figure 74 – Températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2(001)$  entre 40 et 70 km d'altitude. En vert, les températures vibrationnelles pour le cas nominal, décrit en détail dans le chapitre 3. En bleu, celles du calcul numéro 1 (Tableau 30). En rouge, celles du calcul numéro 18 (Tableau 30). En trait plein, les résultats à 1 s, en tirets, à 10 s, en pointillés, à 30 s. La représentation des résultats à ces différents temps permet de constater la décroissance des températures vibrationnelles plus rapide à basse altitude. L'incertitude sur les valeurs nominales à 1 s est matérialisée par un trait horizontal vert à 55 km.

De cette façon, on a globalement une incertitude sur les températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2(001)$  de + 60 / - 40 %. Cette estimation est étroitement liée aux hypothèses formulées pour définir les incertitudes sur les paramètres d'entrée. La principale difficulté repose sur le fait que la plupart des incertitudes d'entrée ne sont pas des incertitudes de mesure. Comme précisé en introduction du chapitre, cette analyse de sensibilité avait pour unique but de déterminer quels paramètres sont les plus influents. Pour aller plus loin, et proposer des estimations plus robustes de l'incertitude sur les sorties du modèle, il faudrait d'abord réaliser un travail bibliographique afin de déterminer les incertitudes sur les entrées de façon plus rigoureuse.

## 5. Modélisation des luminances infrarouges atmosphériques consécutives à la perturbation de la chimie vibrationnelle de CO<sub>2</sub> par un sprite, considérations instrumentales, et signature infrarouge des aurores

Jusqu'à présent, seuls quelques auteurs ont travaillé sur les émissions infrarouges des *sprites* (voir « 1.5.2.4 »), et deux publications prédisent une possible détection de ce rayonnement depuis les airs ou depuis l'espace (Gordillo-Vázquez 2008 ; Parra-Rojas 2015). À notre connaissance, une seule étude de transfert radiatif a été réalisée afin de quantifier les signatures infrarouges (SIRs) des *sprites* : celle de Milikh et al. (1998). Toutefois, l'énergie des électrons était sous-estimée d'environ 1 ordre de grandeur, et seules les émissions à 4.26  $\mu\text{m}$  étaient étudiées.

Dans cette partie, les SIRs des *sprites*, calculées à partir des perturbations des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub> discutées en « 3.3.2 », seront présentées et comparées aux luminances atmosphériques non perturbées, qu'on appellera également luminances de fond. Cela permettra de répondre à la seconde problématique principale de cette thèse : dans quelle mesure la perturbation énergétique causée sur l'atmosphère par les *sprites* peut-elle influencer ses luminances infrarouges ?

On discutera d'abord les luminances spectrales de l'atmosphère de fond dans l'infrarouge moyen et lointain. Ensuite, les luminances atmosphériques perturbées à différents temps après le *pulse* seront présentées. Ceci permettra de caractériser l'évolution temporelle de la signature infrarouge du *sprite*. Différentes géométries d'observation seront simulées. On se penchera sur le cas de la principale plateforme envisagée pour l'expérience HALESIS, de type Ballon Stratosphérique Ouvert (BSO), en présentant les luminances calculées pour un observateur situé à 40 km d'altitude. Le cas de la plateforme alternative de type HAPS (*High Altitude Pseudo-Satellite*), dont on a présenté l'exemple de Stratobus<sup>TM</sup> en section « 1.5.4 », sera abordé en discutant les luminances calculées pour un observateur à 20 km, altitude nominale de Stratobus<sup>TM</sup>. Les résultats obtenus pour les géométries associées à ces deux types de plateformes seront comparés.

Par la suite, l'effet du diamètre du *sprite* sera présenté en le faisant varier de 5 à 20 km. On s'intéressera également aux effets de l'angle zénithal de la ligne de visée et de la distance entre *sprite* et observateur. Ensuite, d'autres alternatives seront explorées à travers la présentation des luminances obtenues pour des observateurs situés à 10000 mètres (altitude courante des avions), et au sol, à des altitudes correspondantes à des observatoires de montagne : 3000 mètres, pour des observatoires alpins ou pyrénéens par exemple, et 5000 mètres, pour des observatoires situés en Amérique du Sud ou en Chine. Le cas d'un observateur spatial à 800 km d'altitude, en visée au nadir, sera également présenté. On terminera cette partie en discutant brièvement des incertitudes sur les luminances spectrales, associées aux incertitudes sur les températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>.

Dans une dernière partie, on discutera des spécifications techniques du futur instrument de la mission HALESIS, on abordera les synergies possibles entre l'étude des TLEs et l'étude des aurores, et l'on présentera une évaluation préliminaire de la signature infrarouge d'aurores pour un observateur stratosphérique.

L'ensemble des résultats de ce chapitre sera présenté en luminances spectrales, calculées pour une ligne de visée unique. Pour ces calculs, on considère qu'il n'y a pas d'aérosols, que la température en bout de ligne de visée, quand celle-ci atteint l'espace, est de 3 K (température du fond diffus cosmologique), et la limite atmosphère – espace est fixée à 120 km.

## 5.1. Signatures infrarouges des sprites pour des observateurs situés dans la stratosphère

### 5.1.1. Luminances spectrales de l'atmosphère non perturbée

Avant de discuter de la perturbation des luminances spectrales atmosphériques perturbées par un *sprite*, intéressons-nous à ces luminances en conditions non perturbées. Pour rappel, les simulations ont lieu à une latitude de 0 °, 45 ° de longitude (dans le cas nominal), et à minuit heure locale. On sait, à partir des 4 processus radiatifs associés aux niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub> inclus dans le modèle cinétique, que les émissions auront lieu entre 600 et 2500 cm<sup>-1</sup>, autour de ~ 670, 720, 1060, et 2350 cm<sup>-1</sup> (voir Tableau 5). Parmi elles, au regard des résultats obtenus en « 3.3.2 », on sait que les émissions les plus intenses seront celles liées à CO<sub>2</sub>(001), autour de 1060, et 2350 cm<sup>-1</sup>. Un exemple de spectre en luminance de l'atmosphère non perturbée est présenté en Figure 75. Celui-ci est calculé pour une géométrie typique de l'expérience HALESIS, pour un observateur situé à 40 km d'altitude.

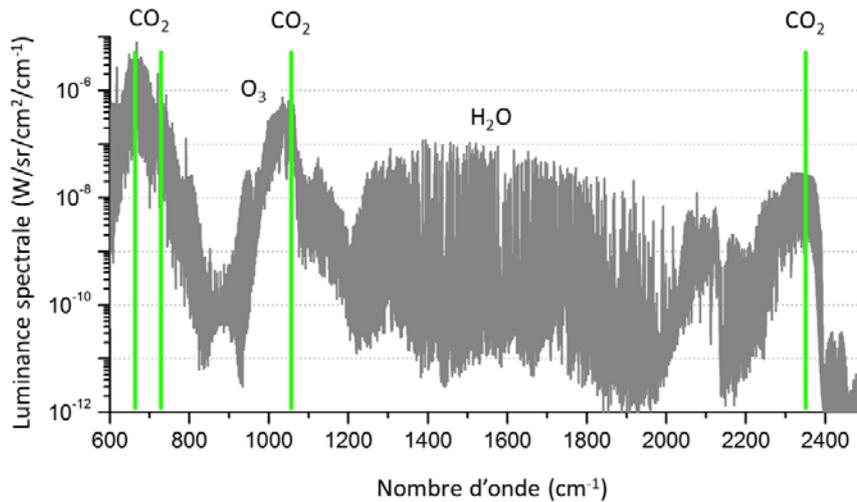


Figure 75 – Spectre de l’atmosphère non perturbée. Les énergies des 4 transitions incluses dans le modèle cinétique sont représentées par un trait vertical vert. L’observateur est situé à 40 km d’altitude et la ligne de visée, oblique, a un angle zénithal de 78 ° et un azimut de 0 °. La résolution spectrale (FWHM) est de 0.4 cm<sup>-1</sup>.

Les principales molécules contributrices aux luminances dans cette gamme sont CO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, et H<sub>2</sub>O. Si l’observateur était placé à l’altitude zéro, la bande associée à l’eau correspondrait à une région spectrale pratiquement opaque. Cette représentation, en conditions standard non perturbées, illustre l’intérêt de l’étude des premiers niveaux de chaque mode de vibration de CO<sub>2</sub>. Les nombres d’ondes d’émission des processus radiatifs associés à ces niveaux vibrationnels coïncident avec les principales contributions de CO<sub>2</sub> au spectre de l’atmosphère de fond<sup>31</sup>. Notons que l’étude détaillée de la chimie vibrationnelle d’O<sub>3</sub> pourra constituer une perspective intéressante, la concentration en ozone étant importante dans la stratosphère, cette molécule pourrait avoir un effet dans la gamme spectrale d’intérêt, vers 1000 – 1100 cm<sup>-1</sup>. De plus, on peut s’attendre à une production significative d’ozone à la suite d’un TLE, à l’instar de ce qu’on observe avec les éclairs troposphériques.

Le choix de la résolution spectrale (FWHM de la fonction instrumentale, voir « 2.3.1.4 », Figure 36) à laquelle sont tracés les spectres influence à la fois l’amplitude des luminances et la finesse des structures spectrales qui peuvent être identifiées. Pour illustrer ce propos, les spectres de l’atmosphère de fond (non perturbée), pour un observateur situé à 40 km d’altitude et une ligne de visée avec un angle zénithal de 78 °, sont présentés pour une FWHM de 0.4, 4, et 40 cm<sup>-1</sup>, dans la Figure 76.

<sup>31</sup> Entre 600 – 2500 cm<sup>-1</sup>, plusieurs autres niveaux vibrationnels peuvent contribuer. Ceux-ci sont recensés dans l’ouvrage de López-Puertas et Taylor (2001). C’est pourquoi la complexification de la cinétique vibrationnelle de CO<sub>2</sub> constituera une des principales perspectives de ce travail.

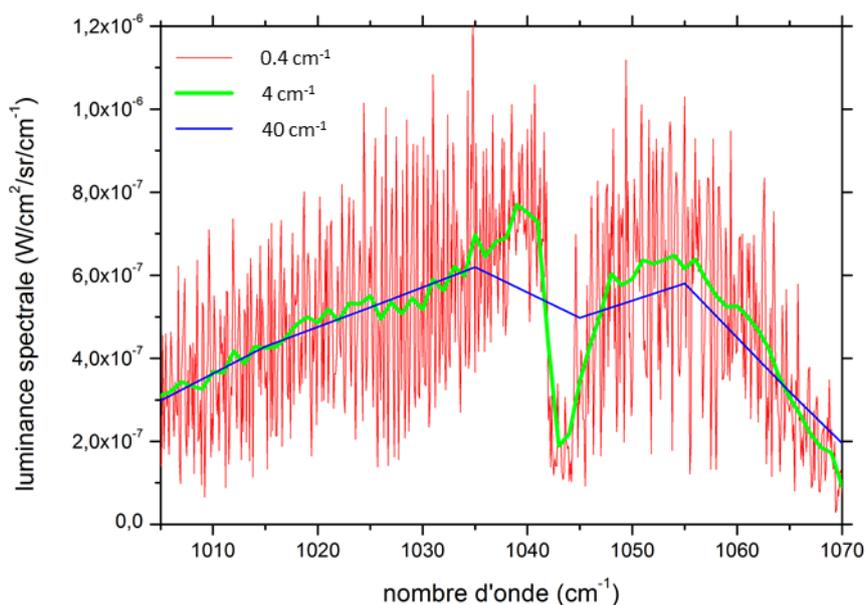


Figure 76 – Spectres de l’atmosphère de fond non perturbée pour 3 résolutions spectrales, entre 1005 et 1070  $\text{cm}^{-1}$ , pour un observateur situé à 40 km d’altitude et une ligne de visée de  $78^\circ$  d’angle zénithal.

Avec une résolution spectrale de quelques dixièmes de  $\text{cm}^{-1}$ , il est possible d’identifier individuellement les raies. Pour identifier la structure des bandes, une résolution de quelques  $\text{cm}^{-1}$  à quelques dizaines de  $\text{cm}^{-1}$  est suffisante.

La variation de l’amplitude du signal causée par la résolution spectrale est illustrée en Figure 77, à deux nombres d’ondes différents, qui correspondent aux maximums de luminance dans les bandes LWIR et MWIR affectées par la désexcitation radiative de  $\text{CO}_2(001)$ .

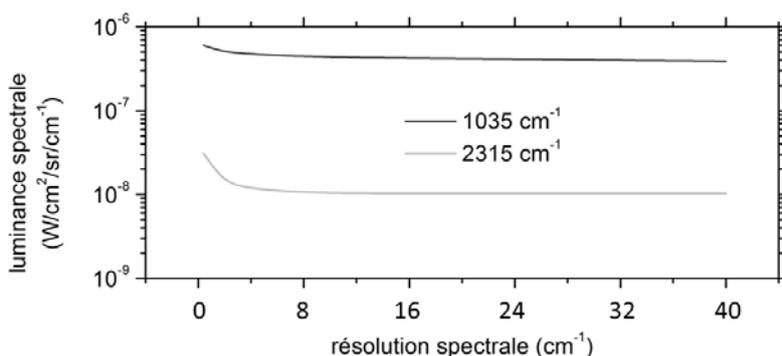


Figure 77 – Luminances spectrales maximales en fonction de la résolution spectrale, dans les deux gammes affectées par les émissions de  $\text{CO}_2(001)$ . La courbe noire représente le maximum de luminance à  $1035 \text{ cm}^{-1}$ , la courbe verte, à  $2315 \text{ cm}^{-1}$ .

L’amplitude maximale de la luminance à  $1035 \text{ cm}^{-1}$  diminue de 30 % entre  $0.4$  et  $4 \text{ cm}^{-1}$  de résolution. À  $2315 \text{ cm}^{-1}$ , celle-ci diminue d’un facteur 3. Au-delà de  $8 \text{ cm}^{-1}$ , l’amplitude maximale reste pratiquement constante. Ici, on considère que la résolution de la structure en bande du spectre est suffisante, les spectres obtenus seront présentés à une résolution spectrale de  $4 \text{ cm}^{-1}$ .

## 5.1.2. Luminances spectrales pour un observateur de type ballon stratosphérique ouvert

Pour commencer, on se place à une altitude qui peut être atteinte par les ballons stratosphériques ouverts (BSOs), 40 km. L'observateur<sup>32</sup> est situé à une distance de 50 km d'un *sprite* (distance projetée à l'horizontale). Le diamètre du *sprite* est de 10 km et l'on fait en sorte que la ligne de visée le traverse à 50 km d'altitude. Cette altitude représente un compromis entre intensité des émissions et durée de persistance. Cette géométrie représente un cas idéal pour HALESIS. Dans la Figure 78, le spectre de fond est comparé au spectre perturbé 1 s après le *pulse*. La perturbation est donc maximale.

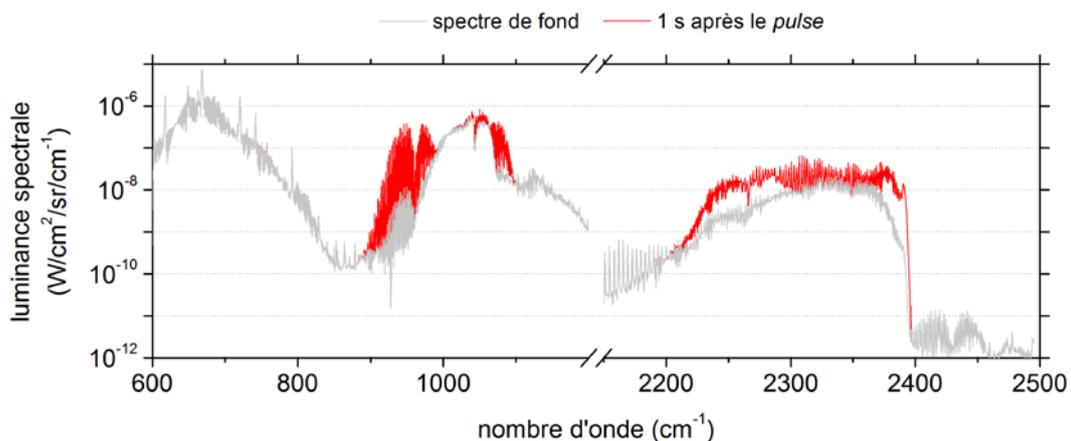


Figure 78 – Spectres de l'atmosphère non perturbée, en gris, et perturbée, 1 s après le *pulse*, en rouge. Les résultats entre 1200 et 2150  $\text{cm}^{-1}$  ont été retirés. Dans les conditions de ce travail, il n'y a pas de signature dans cette gamme.

Comme on s'y attendait, il existe une nette augmentation de luminances autour de 1000 et 2300  $\text{cm}^{-1}$  (régions spectrales affectées par  $\text{CO}_2(001)$ ). Vers 600 – 700  $\text{cm}^{-1}$ , on ne remarque pas de différence entre le spectre de fond et le spectre perturbé. Toutefois, ce graphique représente les spectres en absolu avec une échelle verticale logarithmique. Les luminances de l'atmosphère de fond vers 600 – 700  $\text{cm}^{-1}$  étant déjà élevées (elles dépassent les  $10^{-6} \text{ W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ ), une différence, même importante, ne sera pas nécessairement visible sur ce genre de représentation.

Afin d'examiner plus en détails la contribution du *sprite*, les signatures infrarouges (SIRs, spectre avec *sprite* – spectre sans *sprite*) sont représentées en Figure 79, de 1 à 40 s après le *pulse*.

<sup>32</sup> Dans la réalité, il s'agira d'un instrument placé dans la nacelle du ballon.

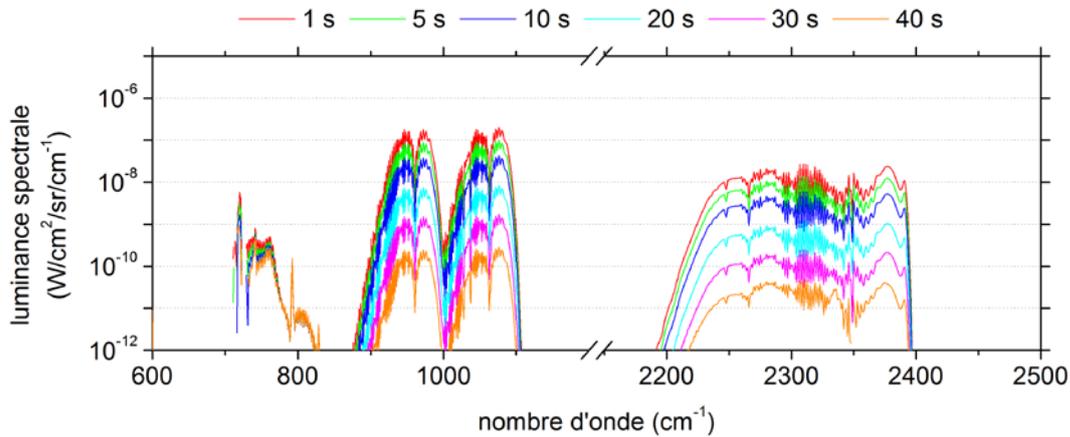


Figure 79 – SIRs calculées 1, 5, 10, 20, 30, et 40 s après le *pulse*. À 50 s, les températures vibrationnelles sont à nouveau à l'équilibre<sup>33</sup>, la signature est donc nulle.

Cette représentation en termes de signature permet de mettre en évidence trois gammes spectrales distinctes. Entre 700 et 800  $\text{cm}^{-1}$ , la signature est issue des émissions de  $\text{CO}_2(010)$  et  $\text{CO}_2(100)$  (réactions 420 et 419). Celle-ci est d'amplitude moindre ( $6 \times 10^{-9} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$  au maximum) et également moins étendue spectralement que les signatures dans les autres gammes. Cette région est en effet très affectée par la réabsorption du  $\text{CO}_2$  (*self-trapping*) le long de la ligne de visée.

Entre 900 et 1100  $\text{cm}^{-1}$ , la signature provient de la désexcitation radiative de  $\text{CO}_2(001)$  vers  $\text{CO}_2(100)$  (réaction 417). C'est donc une bande chaude<sup>34</sup>. L'amplitude de la signature à son maximum, 1 s après le *pulse*, est supérieure à  $10^{-7} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ . On reconnaît nettement la présence de deux jeux de branches P et R. La présence de deux jeux distincts s'explique par le phénomène de résonance de Fermi. Des interactions entre mode propre et harmoniques introduisent un décalage à la fois en intensité et en nombre d'onde. Les modes de hautes énergies sont décalés à plus hautes énergies, les modes de basses énergies sont décalés à plus basses énergies. De plus, les modes de basse énergie gagnent en intensité, alors que les modes de haute énergie perdent en intensité. Ceci provoque une sorte de « dédoublement » du jeu de branches. L'observation de ces formes typiques est rendue possible par l'absorption modérée sur le trajet optique entre le phénomène et l'observateur, situé à 40 km d'altitude, au-dessus des couches atmosphériques les plus épaisses (optiquement). Dans cette gamme spectrale, l'absorption est principalement causée par l'ozone.

Entre 2200 et 2400  $\text{cm}^{-1}$ , la signature provient de la désexcitation radiative de  $\text{CO}_2(001)$  vers  $\text{CO}_2$  dans son état fondamental (réaction 418). C'est donc une bande fondamentale<sup>35</sup>. L'amplitude de la signature 1 s après le *pulse* est supérieure à  $10^{-8} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ . S'il n'y avait pas d'absorption, l'amplitude de la signature serait supérieure à celle dans la bande 900 – 1100  $\text{cm}^{-1}$ . Le  $\text{CO}_2(001)$  émet davantage de photons autour de 2300  $\text{cm}^{-1}$  (coefficient d'Einstein de l'émission spontanée supérieur de 3 ordres de grandeur), mais ceux-ci sont réabsorbés par  $\text{CO}_2$  (et  $\text{H}_2\text{O}$  dans une moindre mesure) sur le trajet optique<sup>36</sup>.

<sup>33</sup> Comme discuté en section « 3.3.2 », la température d'équilibre n'est pas tout à fait égale à la température cinétique du fond.

<sup>34</sup> Une bande chaude est issue de la désexcitation d'un état excité vers un autre état excité.

<sup>35</sup> Une bande fondamentale provient de la désexcitation d'un état excité vers l'état fondamental.

<sup>36</sup> Ce point sera illustré par la suite, avec le calcul de luminances pour un observateur situé dans l'espace.

Les variations de température vibrationnelle responsables de ces signatures sont données dans le Tableau 32. Pour la géométrie d'observation considérée, la ligne de visée entre dans le *sprite* à 50 km et en ressort à 52 km. Les  $\Delta T_{\text{vib}}$  présentés sont une moyenne entre 50 et 52 km.

	1 s	5 s	10 s	20 s	30 s	40 s
$\Delta T_{\text{vib}} \text{ CO}_2(001)$ (K) à 50 km	~ 250	~ 200	~ 130	~ 70	~ 20	~ 5
Max. signature 900 - 1100 $\text{cm}^{-1}$ ( $\text{W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ )	$2 \times 10^{-7}$	$10^{-7}$	$4.3 \times 10^{-8}$	$8.5 \times 10^{-9}$	$1.7 \times 10^{-9}$	$2.9 \times 10^{-10}$
Max. signature 2200 - 2400 $\text{cm}^{-1}$ ( $\text{W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ )	$2.4 \times 10^{-8}$	$1.2 \times 10^{-8}$	$5.3 \times 10^{-9}$	$10^{-9}$	$2.1 \times 10^{-10}$	$3.9 \times 10^{-11}$

Tableau 32 – Perturbations de températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2(001)$  et signatures radiatives associées, de 1 à 40 s après le *pulse*.

Entre 900 – 1100  $\text{cm}^{-1}$ , une variation de température vibrationnelle de plus de 200 K conduit à une variation maximale de luminance de l'ordre de  $10^{-7} \text{ W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ . Pour une variation d'une centaine de K, celle-ci est de l'ordre de  $10^{-8} \text{ W}/\text{cm}^2/\text{sr}/\text{cm}^{-1}$ . Entre 2200 – 2400  $\text{cm}^{-1}$ , les variations en luminances sont inférieures d'un ordre de grandeur pour les mêmes perturbations en température vibrationnelle.

Comme discuté lors de la présentation des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de  $\text{CO}_2$ , les températures d'équilibre de ces espèces ne sont pas strictement identiques aux températures cinétiques de l'atmosphère de fond. La différence maximale atteint 15 % pour l'espèce  $\text{CO}_2(010)$ , 8 % pour l'espèce  $\text{CO}_2(100)$ , et 1.5 % pour l'espèce  $\text{CO}_2(001)$ . Il est donc nécessaire de garder en tête que, en absolu, on peut associer une erreur sur les températures vibrationnelles perturbées d'une  $30^{\text{aine}}$  de K pour  $\text{CO}_2(010)$ , d'une  $15^{\text{aine}}$  de K pour  $\text{CO}_2(100)$ , et de 1 à 2 K pour  $\text{CO}_2(001)$ . En relatif, et donc pour les signatures, cela ne conduit probablement qu'à une très faible erreur. Pour le confirmer, cet aspect pourrait être traité par une analyse de sensibilité des sorties à cette condition initiale.

### 5.1.3. Comparaison entre ballon stratosphérique ouvert et high altitude pseudo-satellite

Les luminances calculées pour un observateur de type « BSO » vont maintenant être comparées à celles calculées pour un observateur de type « HAPS » (*High Altitude Pseudo-Satellite*). Pour commencer, les spectres calculés pour un observateur situé à 20 km (altitude de vol géostationnaire du HAPS Stratobus<sup>TM</sup>) sont présentés en Figure 80. La distance horizontale entre observateur et *sprite* est la même que dans la situation précédente, 50 km, et la ligne de visée traverse également le *sprite* à une altitude de 50 km. L'angle zénithal est donc de 59 °.

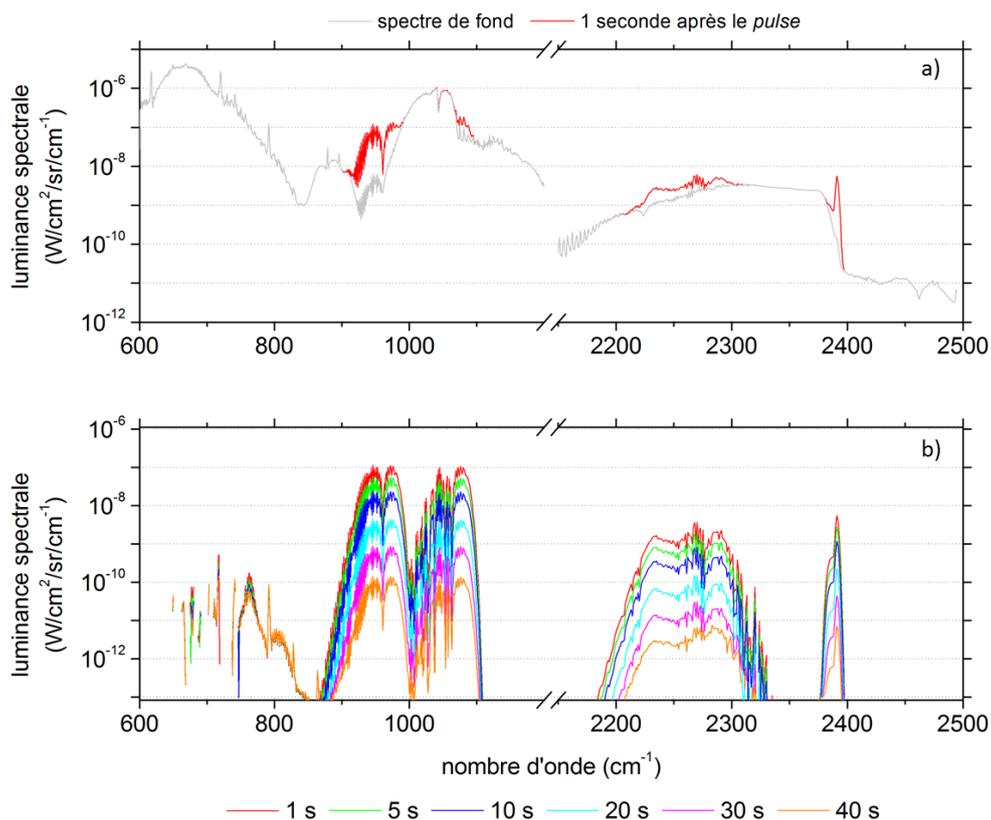


Figure 80 – Spectres absolus de l’atmosphère de fond et de l’atmosphère perturbée, 1 s après le *pulse*, en a), et SIR du *sprite* à différents temps après le *pulse*, en b), pour un observateur de type HAPS.

Pour le spectre en absolu (Figure 80 a), 1 s après le *pulse*, on a toujours une nette augmentation de luminance autour de 1000 et 2300  $\text{cm}^{-1}$  même si, l’observateur étant situé 20 km plus bas que dans le cas précédent, l’absorption est plus forte. En examinant les signatures (Figure 80 b), on note que les émissions de  $\text{CO}_2(010)$  et  $\text{CO}_2(100)$ , vers 600 – 700  $\text{cm}^{-1}$ , sont très affectées par cette absorption, seuls quelques pics d’émission spectralement étroits (généralement de quelques  $\text{cm}^{-1}$ ) persistent. Entre 900 et 1100  $\text{cm}^{-1}$ , la signature atteint au maximum  $10^{-7} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ . Le jeu de branches entre 1000 et 1100  $\text{cm}^{-1}$  est plus affecté par l’absorption. Entre 2200 et 2400  $\text{cm}^{-1}$ , la signature est scindée en deux (entre  $\sim 2325$  et  $2375 \text{ cm}^{-1}$ , l’amplitude de la signature diminue à environ  $10^{-14} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ , ce qui n’est pas visible sur ce graphique). La signature maximale consiste en un pic de quelques  $10^{-9} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$  entre 2375 et 2400  $\text{cm}^{-1}$ .

Pour comparer les évolutions temporelles des signatures dans les deux cas de figure (BSO et HAPS), on représente le maximum de luminances dans les bandes 900 – 1100, et 2200 – 2400  $\text{cm}^{-1}$ , en fonction du temps (Figure 81). On ne s’intéresse pas davantage aux signatures entre 600 – 800  $\text{cm}^{-1}$ , qui sont insuffisantes pour envisager une détection depuis la stratosphère. Par la suite, la bande 900 – 1100  $\text{cm}^{-1}$  sera appelée bande A, et la bande 2200 – 2400  $\text{cm}^{-1}$ , bande B.

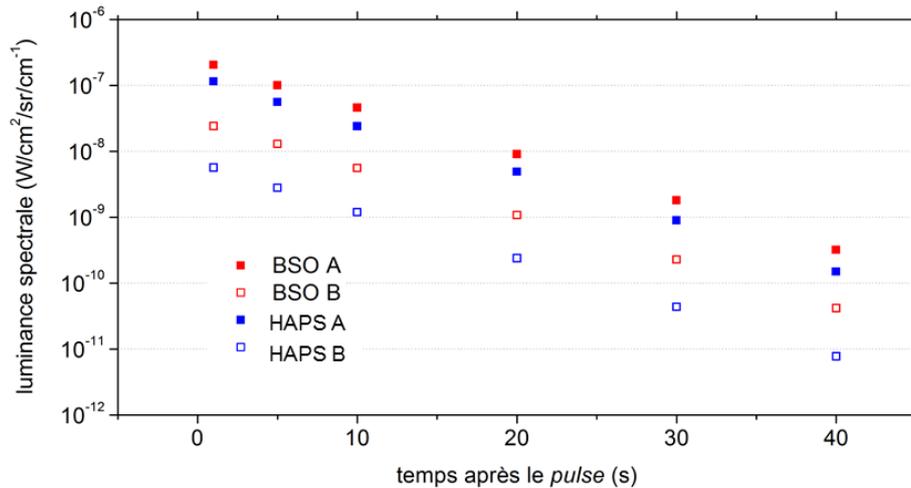


Figure 81 – SIRs maximales dans les bandes A et B, calculées pour des observateurs de type BSO et HAPS, à différents temps après le *pulse*. En rouge, les valeurs maximales depuis un BSO. Le symbole plein correspond à la bande A, le symbole vide à la bande B. En bleu, les valeurs maximales depuis un HAPS. Même signification pour les symboles pleins et vides.

Pour la bande A, entre les calculs réalisés depuis un BSO et un HAPS, les différences de luminance maximales sont constamment d'un facteur 2, contre un facteur 5 à 1 ordre de grandeur pour la bande B. La différence d'amplitude entre les deux bandes est toujours d'environ 1 ordre de grandeur pour le cas BSO, et plutôt d'1.5 ordre de grandeur pour le cas HAPS.

## 5.2. Effets géométriques sur la signature infrarouge des sprites

### 5.2.1. Effet du diamètre du sprite

Pour illustrer l'effet du diamètre du *sprite*, on se place dans les mêmes conditions géométriques (20 ou 40 km d'altitude, 50 km de distance horizontale, 59 ou 78 ° d'angle zénithal), en considérant toujours les deux types d'observateurs, et on fait varier le diamètre de 5 à 20 km. Jusqu'à présent, on a fait l'hypothèse qu'en considérant le nombre de *streamers* (plusieurs milliers) et leur taille (dizaines à centaines de mètres de diamètre), on pouvait représenter le volume d'atmosphère perturbé équivalent avec un cylindre de 10 kilomètres de diamètre. Cette estimation ne représente qu'un ordre de grandeur. On sait qu'un *sprite* de type carotte mesure, en général, une 40<sup>aine</sup> de kilomètres de diamètre. Or, la section du *sprite* n'est pas intégralement occupée par des *streamers*. En admettant que tous les *streamers* aient un diamètre identique de 100 mètres, quelle que soit l'altitude, il en faudrait plus de 10<sup>5</sup> pour occuper une section horizontale de  $\pi \times 20^2$  (section totale du *sprite*, en km<sup>2</sup>). En considérant un diamètre équivalent de 20 km, soit une section de  $\pi \times 10^2$ , il faudrait un peu plus de 30000 *streamers*. Cela reviendrait à dire que 25 % de la surface d'une section horizontale d'un *sprite* est occupée par des *streamers*. Considérons que ce diamètre équivalent de 20 km constitue la borne supérieure. En considérant un diamètre équivalent de 5 km, il

faut un peu moins de 2000 *streamers*. Cela revient à dire que 1.5 % de la section horizontale d'un *sprite* est occupée par des *streamers*. Nous ferons l'hypothèse qu'il s'agit de la limite basse du diamètre équivalent. Les SIRs maximales dans chaque bande, pour le cas BSO et le cas HAPS, sont présentées en fonction du diamètre équivalent en Figure 82.

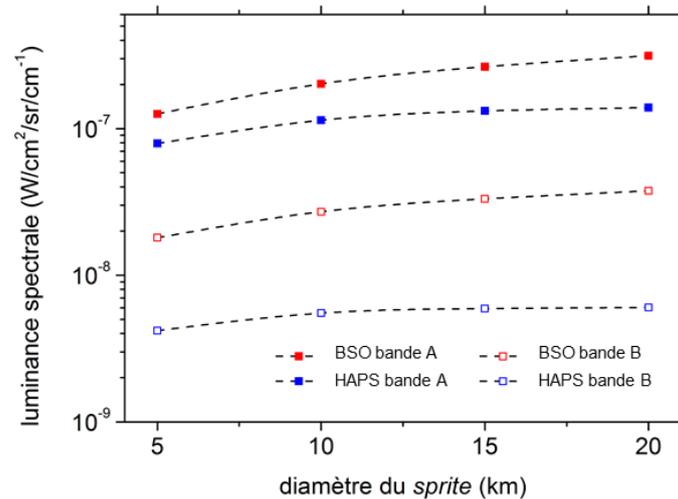


Figure 82 –SIRs maximales dans les bandes A et B, pour un BSO et un HAPS, en fonction du diamètre équivalent du *sprite*.

Entre un diamètre de 5, et de 20 km, pour le cas BSO, les luminances maximales augmentent d'un peu plus d'un facteur 2, en bande A comme en bande B. Pour le cas HAPS, cette augmentation est un peu inférieure, d'un facteur 1.4 et 1.9 en bandes A et B respectivement. Le diamètre du *sprite* n'engendre pas de variations importantes des SIRs.

## 5.2.2. Effet de l'angle zénithal de la ligne de visée

Afin d'illustrer l'effet de la variation de l'angle zénithal, qui influence l'altitude à laquelle le *sprite* est traversé par la ligne de visée, on définit un cas intermédiaire au BSO et au HAPS. Avec LBLRTM, il n'est pas possible de simuler la présence d'un *sprite* si l'angle zénithal de la ligne de visée est égal à 90 ° (voir Figure 34). Pour contourner ce problème et pouvoir viser le *sprite* à 40 km d'altitude, on peut se placer, par exemple, un peu plus bas. On conserve donc la même géométrie, avec un diamètre de *sprite* de 10 km, mais, cette fois-ci, l'observateur est situé à 30 km d'altitude. En faisant varier l'altitude à laquelle la ligne de visée traverse le *sprite* avec un pas de 5 km, entre 40 et 60 km, on obtient les SIRs maximales (1 s après le *pulse*) dans les bandes A et B représentées en Figure 83.

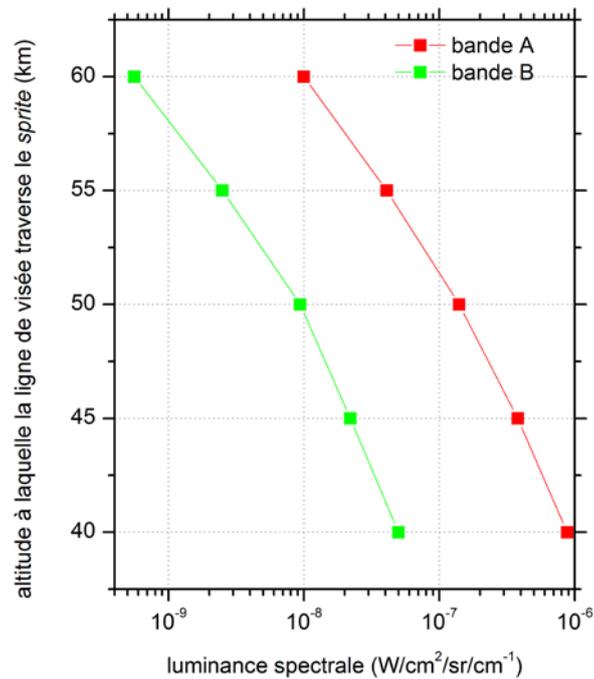


Figure 83 – Effet de l’angle zénithal sur les SIRs maximales pour un observateur situé à 30 km d’altitude et 50 km de distance horizontale d’un *sprite*.

Dans les bandes A et B, entre les cas où la ligne de visée traverse le *sprite* à 40 et à 60 km, la décroissance des SIRs maximales est de deux ordres de grandeur. En diminuant l’angle zénithal, la ligne de visée traverse des régions où les températures vibrationnelles sont moins fortement perturbées. Notons toutefois que, à plus haute altitude, les températures vibrationnelles persistent plus longtemps au-delà de la température d’équilibre, la différence est d’environ 20 s entre 40 et 60 km.

### 5.2.3. Effet de la distance entre observateur et sprite

Pour illustrer l’effet de la distance, on reprend le cas d’un observateur à 30 km. Les calculs sont réalisés à 50, 100, et 300 km de distance (toujours projetée à l’horizontale). À chaque distance, on adapte l’angle zénithal pour forcer la ligne de visée à traverser le *sprite* à 50 km d’altitude. Comme précédemment, les signatures maximales dans les bandes A et B, 1 s après la fin du *pulse*, sont représentées.

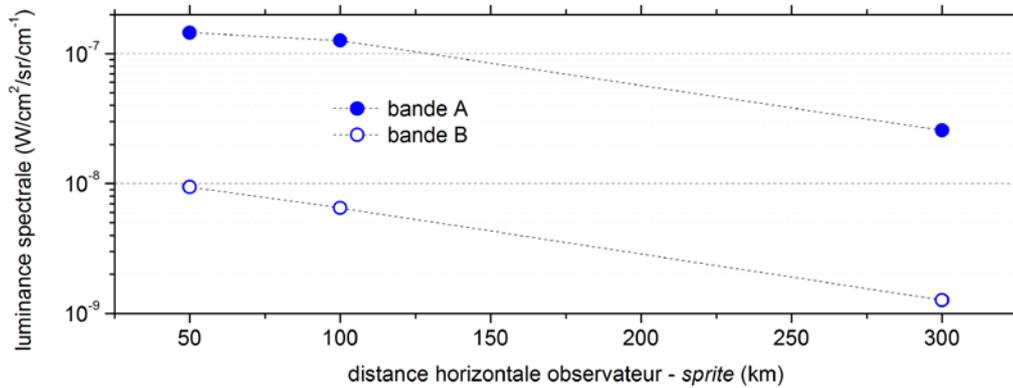


Figure 84 – Effet de la distance entre observateur et *sprite* sur les luminances maximales (1 s après la fin du *pulse*) dans les bandes A et B.

Entre 50 et 100 km, l'amplitude du signal varie d'un facteur 0.8 pour la bande A, et 0.7 pour la bande B. Entre 50 et 300 km, cette variation est d'un facteur 0.18, et 0.13 respectivement. Cette variation est causée par la réabsorption des émissions par CO<sub>2</sub> (*self-trapping*), l'ozone, et, dans une moindre mesure à ces altitudes, par l'eau.

### 5.3. Signatures infrarouges préliminaires des sprites pour des observateurs situés dans la troposphère et dans l'espace

#### 5.3.1. Luminances calculées pour un observateur situé dans la troposphère

Les signatures calculées depuis la stratosphère sont encourageantes au regard des objectifs de détection de la future mission HALESIS et posent, désormais en connaissance de cause, la question du risque de fausse alarme à travers les systèmes de détection de tirs de missiles de la Défense.

La bande A, dans le LWIR, assez peu affectée par l'absorption, nous incite à évaluer les SIRs pour des observateurs situés plus bas, dans la troposphère. L'altitude typique de vol des avions, 10000 m sera donc étudiée. De plus, différentes observations dans le visible ont été menées depuis l'observatoire du Pic du Midi (Soula et al. 2014), on se demande alors quelle pourrait être la signature infrarouge depuis cette altitude (2877 m). Par ailleurs, plusieurs observatoires se situent au-delà de 5000 m au Chili, en Bolivie, et en Chine. Les spectres de l'atmosphère de fond non perturbée, ainsi que les spectres avec *sprite*, 1 s après le *pulse*, sont présentés, pour des observateurs situés à 3000, 5000, et 10000 m, en Figure 85.

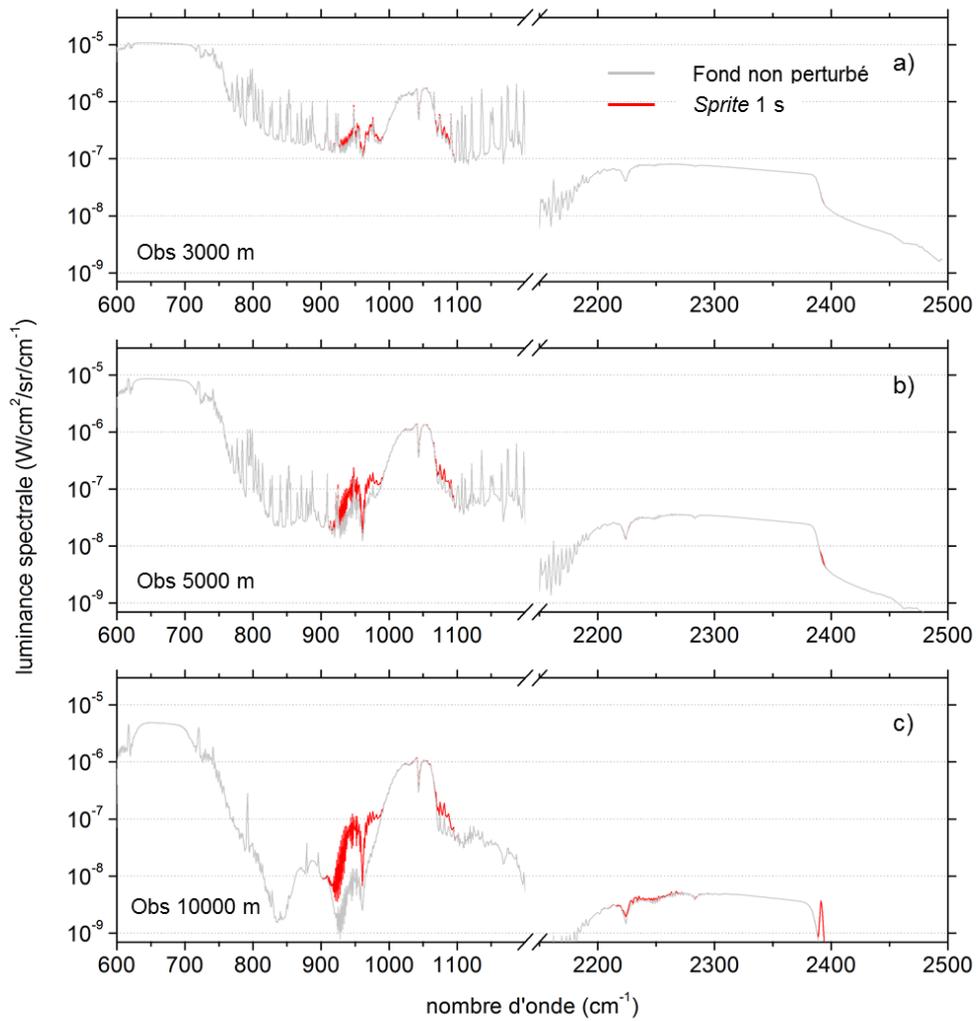


Figure 85 – Spectres de fond et spectres perturbés 1 s après le *pulse*, pour un observateur situé à 3000 m, en a), à 5000 m, en b), et à 10000 m, en c).

Les SIRs calculées à partir de ces spectres sont présentées dans la figure suivante (Figure 86) :

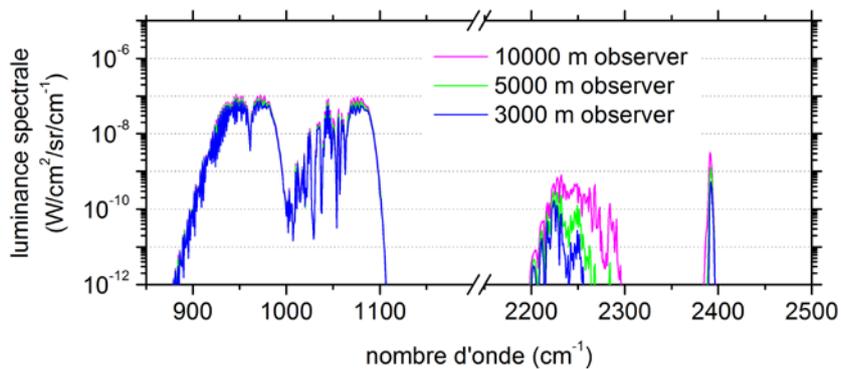


Figure 86 – SIRs de *sprites* pour des observateurs situés à 3000, 5000, et 10000 m d'altitude.

Ces résultats semblent confirmer l'hypothèse que les SIRs des *sprites* peuvent rester importantes dans le LWIR, même pour un observateur situé à basse altitude, dans la troposphère. Toutefois, les hypothèses de départ deviennent plus problématiques, en particulier pour les deux cas aux altitudes les moins élevées, 3000 et 5000 m. On a fait l'hypothèse de l'absence d'aérosols, et le profil de concentration en vapeur d'eau est un profil standard nocturne de période estivale. De plus, ces calculs préliminaires ont été réalisés à la distance standard utilisée jusqu'à présent, 50 km. Dans ce cadre, à faible distance du cumulonimbus qui permet le déclenchement d'un *sprite*, il est très probable que les conditions météorologiques affectent les conditions chimiques atmosphériques sur le segment de ligne de visée qui traverse la troposphère, voire la base de la stratosphère. La présence de nuages, de précipitations, et la variabilité des profils de concentration en vapeur d'eau peuvent influencer les luminances. Le risque étant que le signal soit fortement absorbé. Une évaluation plus robuste des SIRs des *sprites* pour des observateurs situés dans la troposphère demandera une caractérisation plus fine des conditions atmosphériques à faible altitude (< 15 km).

### 5.3.2. Signatures infrarouges calculées pour un observateur situé dans l'espace

Pour compléter ce tour d'horizon des SIRs de *sprites* pour différentes géométries d'observation, on s'intéresse au cas où un observateur serait situé dans l'espace. Gordillo-Vázquez (2008) et Parra-Rojas et al. (2015), en se basant sur leurs calculs d'EBs (*emission brightnesses*) supposent que la détection des émissions du CO<sub>2</sub> devrait être possible pour un instrument embarqué à bord d'un satellite. Optiquement fine au-delà des altitudes couvertes par un *sprite*, l'atmosphère absorbe très peu. Les auteurs ne réalisent toutefois pas les calculs de transfert radiatif pour confirmer cette hypothèse.

Pour ce calcul, on considère un observateur situé à 800 km d'altitude, et une ligne de visée au nadir. En bout de ligne de visée, à 10 km d'altitude, on simule la présence d'un nuage (cumulonimbus à l'origine de l'orage) par une surface lambertienne à 250 K. Pour cette géométrie, le *sprite* est traversé de haut en bas, de 70 à 40 km d'altitude. Les résultats sont présentés dans la Figure 87.

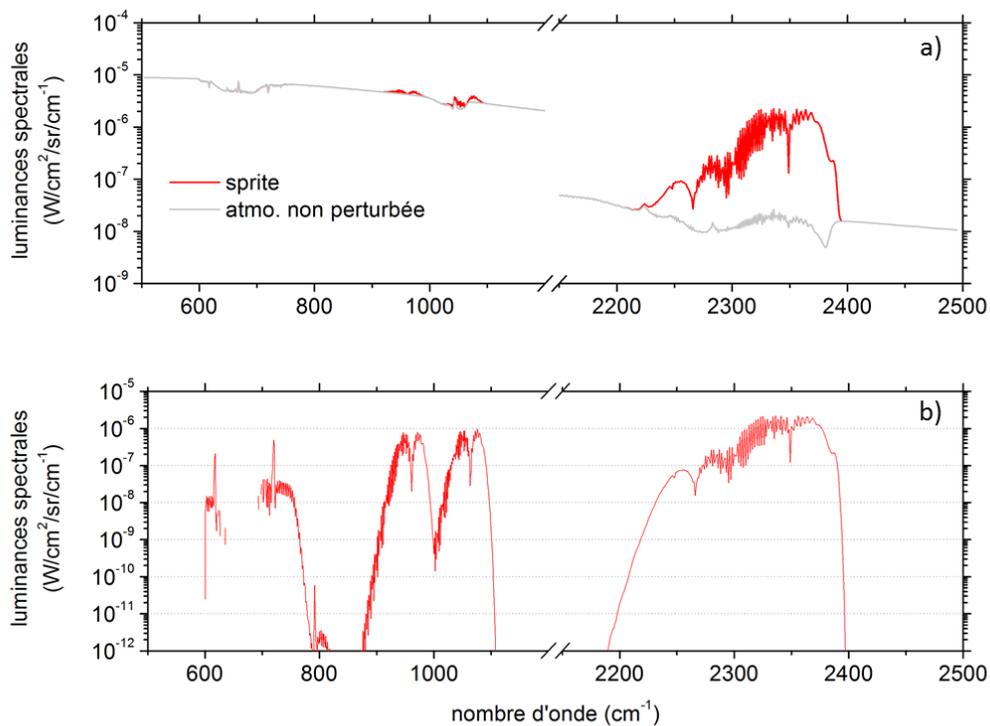


Figure 87 – Spectres absolus de l’atmosphère de fond et de l’atmosphère perturbée, 1 s après le *pulse*, en a), et SIR du *sprite*, 1 s après, le *pulse*, en b), pour un observateur situé dans l’espace, à 800 km d’altitude.

La signature en bande B est désormais particulièrement forte, car peu absorbée. En absolu, l’amplitude de la luminance de l’atmosphère de fond est d’environ  $3 \times 10^{-8} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ , contre  $2 \times 10^{-6}$  en présence du *sprite*. Ce qui correspond à une SIR maximale de l’ordre de  $10^{-6} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ . En bande A, l’amplitude de la luminance maximale de l’atmosphère de fond est de 3 à  $4 \times 10^{-6} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$  et la signature du *sprite* atteint un maximum de  $9 \times 10^{-7} \text{ W/cm}^2/\text{sr/cm}^{-1}$ .

Au vu de ces résultats, on peut imaginer que de telles émissions ont déjà pu être enregistrées par certains dispositifs spatiaux. Pour étudier cette possibilité, il serait possible d’explorer les données satellitaires acquises au cours de différentes missions spatiales équipées d’instruments infrarouges. En retrouvant les données correspondantes à des régions orageuses, on pourrait, selon les spécifications orbitales, instrumentales, et de visée, trouver des SIRs attribuables aux *sprites* autour de  $2300 \text{ cm}^{-1}$ , voire autour de 1000 ou encore entre 600 et  $800 \text{ cm}^{-1}$ . On pourrait envisager de réaliser un tel travail à partir des données IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l’Infrarouge) ou AIRS (*Atmospheric InfraRed Sounder*) par exemple.

## 5.4. Évaluation préliminaire des incertitudes sur les signatures infrarouges des *sprites*

Les simulations réalisées dans le cadre de l’analyse de sensibilité (chapitre 4) ne sont pas toutes effectuées à la même latitude. Les signatures de l’atmosphère de fond seront donc différentes

selon qu'on se place à 0, 25, ou 45 °. Pour estimer les incertitudes sur les SIRs de *sprites*, on place l'observateur à 30 km d'altitude. Les luminances spectrales de l'atmosphère de fond sont présentées en Figure 88, à 0 et 45 ° de latitude. Dans les deux cas, l'angle zénithal de la ligne de visée est de 78 ° et l'azimut de 0 °. La différence de composition chimique et de température atmosphérique (présentées en Figure 58) conduit, entre 0 et 45 ° de latitude, à des différences en luminances qui atteignent un maximum de plusieurs  $10^{-7}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup>, en bande A, et quelques  $10^{-9}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande B (Figure 88 b).

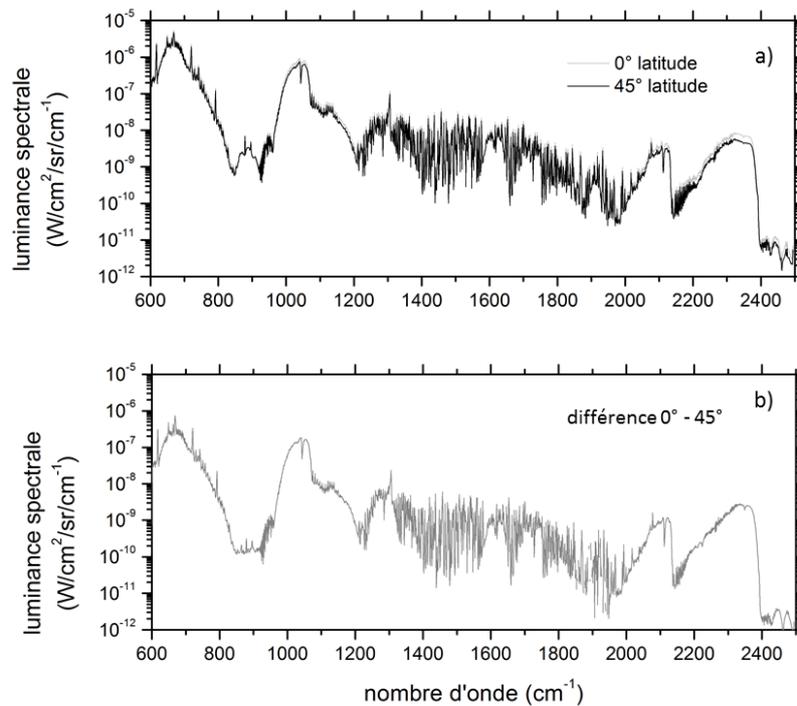


Figure 88 – Luminances de fond à 0 et à 45 ° de latitude, en a), et différence entre les luminances à 0 et à 45 °, en b). Calculs réalisés pour un observateur situé à 30 km d'altitude, un angle zénithal de la ligne de visée de 78 °, et un azimut de 0 °.

En fin d'analyse de sensibilité (chapitre 4), on a proposé de définir l'incertitude sur les températures vibrationnelles nominales en se basant sur les résultats des simulations alternatives qui ont permis d'obtenir l'estimation la plus faible, pour définir la borne inférieure, et la plus forte, pour définir la borne supérieure (voir Figure 74). Ces températures vibrationnelles alternatives nous permettent de calculer les luminances spectrales atmosphériques associées. Les profils de température vibrationnelle de CO<sub>2</sub>(001) utilisés, à 1 s, ainsi que les signatures correspondantes, sont présentés en Figure 89.

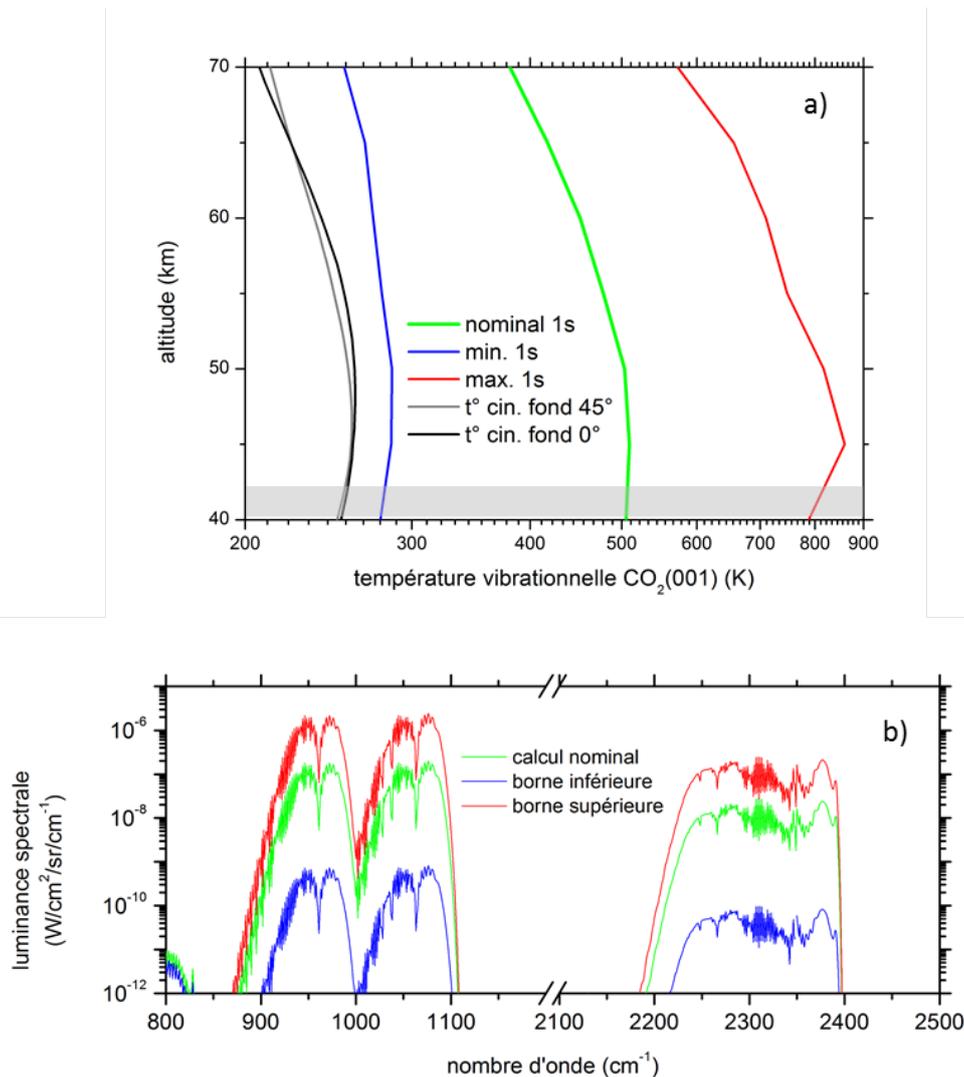


Figure 89 – Températures vibrationnelles, en a), utilisées pour le calcul de la SIR nominale, minimale, et maximale d'un *sprite*, en b). Les spectres sont calculés à 1 s. La SIR maximale est obtenue à 0 ° de latitude. Pour l'obtenir, on a donc soustrait les luminances de fond obtenues à cette même latitude. La SIR minimale est obtenue à 45 ° de latitude, elle est calculée de la même façon. Pour la géométrie d'observation définie, la ligne de visée traverse le *sprite* entre 40 et 42 km d'altitude. La partie grisée, en a), indique cette région.

Pour cette géométrie d'observation, la ligne de visée traverse le *sprite* (dont le diamètre est de 10 km) entre 40 et 42 km d'altitude (elle entre dans la région perturbée à 40 km, et en ressort à 42 km). On peut donc dire que, en moyennant  $\Delta T_{\text{vib}}$  de CO<sub>2</sub>(001) sur ces altitudes, une perturbation de la température vibrationnelle de fond de  $\sim +245$  K (cas nominal) conduit à des signatures maximales de  $\sim 2 \times 10^{-7}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande A, et  $\sim 3 \times 10^{-8}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande B. Pour  $\Delta T_{\text{vib}} \simeq 25$  K, ce qui correspond à la borne inférieure de l'estimation, on obtient des signatures maximales de  $\sim 8 \times 10^{-10}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande A, et  $\sim 10^{-10}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande B. Enfin, pour  $\Delta T_{\text{vib}} \simeq 545$  K, on obtient des signatures maximales de  $\sim 2 \times 10^{-6}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande A, et  $\sim 2 \times 10^{-7}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup> en bande B. Pour cette géométrie, on peut conclure que l'incertitude sur la température vibrationnelle de CO<sub>2</sub>(001), issue de la variabilité latitudinale et de l'incertitude sur les paramètres d'entrée présentés en section « 4.2 », conduit à une incertitude sur les luminances de + 1 / - 2 ordres de grandeur.

Pour aller plus loin dans l'estimation des incertitudes sur les luminances, il faudra, chaque fois que l'on souhaite réaliser une simulation de transfert radiatif, effectuer les calculs à partir des températures vibrationnelles nominales et, également, à partir de celles associées aux bornes inférieures et supérieures de l'estimation. Comme l'incertitude en luminance varie selon les conditions géométriques et atmosphériques, on ne peut pas simplement admettre que + 1 / - 2 ordres de grandeur constitue une gamme valide pour toutes les géométries possibles. De plus, comme les luminances dépendent directement de ces températures vibrationnelles, l'amélioration de l'évaluation des incertitudes sur les températures vibrationnelles (voir section « 4.5 ») conduira logiquement à une amélioration de l'évaluation des incertitudes sur les luminances.

Enfin, il faut rappeler que la durée de persistance de la perturbation des températures vibrationnelles va influencer la durée de détectabilité de la signature. On ne peut pas véritablement définir de détectabilité sans considérer les spécifications techniques d'un instrument en particulier. Pour l'exemple, on propose d'admettre un seuil de détectabilité à  $10^{-9}$  W/cm<sup>2</sup>/sr/cm<sup>-1</sup>. En bande A (900 – 1100 nm), cela correspond à une perturbation de la température vibrationnelle de CO<sub>2</sub>(001) d'environ 50 K. Dans les conditions géométriques de cette évaluation préliminaire (observateur à 30 km, angle zénithal de 78 °), les signatures qui constituent la borne inférieure sont toujours en dessous à ce seuil. Pour le cas nominal, la signature en bande A reste supérieure à ce seuil pendant ~ 25 s. Pour le cas qui constitue la borne supérieure, la signature est supérieure pendant ~ 35 s.

## 5.5. Spécifications instrumentales pour l'expérience HALEISIS

On a montré que, sous l'influence d'un *sprite*, le CO<sub>2</sub> vibrationnel aura un impact principalement dans deux gammes spectrales : 4 – 5 et 9 – 11 μm (~ 2200 – 2400 et 900 – 1100 cm<sup>-1</sup>). L'instrument choisi devra pouvoir couvrir ces deux gammes, ou, à défaut, l'une d'entre elles seulement. Dans le cas où il faudrait choisir, on pourra privilégier la gamme LWIR (9 – 11 μm), dans laquelle les émissions devraient être plus facilement détectables pour un observateur situé dans la stratosphère. De plus, celle-ci permettrait de couvrir des raies de l'ozone.

Pour la mission HALEISIS, on envisage l'utilisation d'un spectro-imageur. Suite à une discussion préliminaire avec les instrumentalistes de l'ONERA, on propose ici certaines spécifications techniques. Les résultats ont montré que la SIR devrait persister, selon l'angle zénithal de la ligne de visée, de plusieurs dizaines jusqu'à une centaine de secondes. On estime donc qu'une fréquence d'acquisition de 1 cube d'images par seconde serait suffisante pour caractériser l'évolution temporelle de la SIR du *sprite*. Par ailleurs, un instrument de type *snapshot*<sup>37</sup> serait à privilégier pour éviter l'introduction de décalages temporels au cours des acquisitions. On considère que, au cours la mission, le ballon pourra voler à une distance comprise entre une cinquantaine de kilomètres et quelques centaines de kilomètres de l'orage à l'origine des TLEs. Considérant la dimension typique des *sprites*, de l'ordre de quelques dizaines de km de hauteur et de largeur, et les limites technologiques au niveau des optiques, on propose d'utiliser un champ de vue total de 40 ° (+/-20 ° par rapport à l'axe optique, sur un axe horizontal ou vertical). Avec une telle optique, la largeur du champ de vue au niveau du phénomène serait, selon que l'observateur soit situé à 50, 100, 150, ou 200 km de distance, de ~ 40, 70, 110, ou 145 km.

---

<sup>37</sup> Acquisition simultanée de l'ensemble du cube d'images.

En considérant une distance typique entre observateur et phénomène d'une centaine de km, on peut définir les dimensions du capteur de l'instrument. La dimension minimale requise serait de  $8 \times 8$  pixels<sup>38</sup>. De cette façon, il devrait être possible de distinguer latéralement les mesures de l'atmosphère de fond et de l'atmosphère perturbée par le phénomène. Cela permettrait également d'obtenir une information sur la distribution verticale de la perturbation. De plus, un petit capteur autorise généralement une meilleure sensibilité instrumentale et cadence d'acquisition. Cependant, il ne serait pas possible de distinguer de quelconques structures dans le phénomène, même à grande échelle. Pour cela, une dimension d'au moins  $20 \times 20$  pixels serait plus adaptée. Celle-ci permettrait de mieux distinguer l'atmosphère perturbée de l'atmosphère de fond et, éventuellement, les structures à grande échelle des *sprites* : halo, région des *streamers*, région intermédiaire. Les *streamers* ont des dimensions de l'ordre de quelques dizaines à centaines de mètres. Pour atteindre une résolution spatiale de 70 mètres, à 100 km de distance, avec un champ total de  $40^\circ$ , la dimension du capteur devrait être de  $1024 \times 1024$  pixels. Un grand capteur permettrait de réaliser du *binning* spatial (sommation de plusieurs pixels) afin d'augmenter la sensibilité au besoin. Selon le nombre de pixels sommés, on pourrait conserver une résolution spatiale suffisante pour distinguer les principales structures au sein du phénomène.

La mission HALESIS n'a pas vocation à observer des *sprites* seulement. Les *blue jets* pourraient représenter une cible également intéressante. Ce phénomène, dont la forme est celle d'un cône de  $15^\circ$  d'angle total au sommet, a des dimensions typiques de 20 à 25 km de hauteur pour un maximum de quelques km de largeur. Pour l'observer, une matrice de capteurs rectangulaire, de dimension horizontale réduite, pourrait être envisagée. La polyvalence de l'instrument en serait toutefois affectée.

Pour conclure sur ces aspects, on peut dire que, actuellement, l'instrument idéal n'existe pas dans le commerce. Il faudra soit réaliser des compromis au niveau de la taille du capteur et de la sensibilité, soit, éventuellement, réaliser un couplage de deux instruments. Il serait par exemple possible d'utiliser un imageur panchromatique ainsi qu'un imageur multipixel, ce qui permettrait d'obtenir des images à haute résolution spatiale d'une part, et une information spectrale fine à basse résolution spatiale d'autre part.

## 5.6. Synergies HALESIS – ATISE et simulation de la signature infrarouge des aurores

Quittons momentanément le contexte des phénomènes lumineux transitoires. Il a été montré, par Dothe et al. (2009), qu'en conditions aurorales, les luminances atmosphériques dans le moyen infrarouge, entre 4 et 6 microns, peuvent être affectées par l'excitation vibrationnelle de NO et NO<sup>+</sup>. À partir de là, on peut s'interroger sur une potentielle diversification des objectifs de HALESIS.

---

<sup>38</sup> Le terme exact est plutôt « photosite », mais le mot pixel est généralement utilisé dans les documentations techniques.

## 5.6.1. Contexte de l'expérience ATISE

Le Centre Spatial Universitaire de Grenoble (CSUG) développe actuellement le nanosatellite ATISE (*Auroral Thermospheric and Ionospheric Spectrometer Experiment*). Cette mission est dédiée à la météorologie de l'espace et a pour principal objectif de mesurer des spectres auroraux ou l'*airglow* (*day-* et *nightglow* selon que ce soit le jour ou la nuit), dans la haute atmosphère terrestre. Les émissions de  $N_2$ ,  $N_2^+$  et O seront mesurées en priorité. La gamme spectrale s'étendra, idéalement, de 380 à 930 nm. Ces mesures permettront de mieux contraindre la distribution spatiale et énergétique des particules précipitant dans l'atmosphère. Cette mission a pour ambition d'apporter des mesures sur de longues durées pour caractériser l'évolution de l'activité aurorale en fonction du cycle solaire (11 ans en moyenne). L'instrumentation sera embarquée sur un satellite de type *cubesat*. La durée nominale est fixée à 2 ans, extensible à 5 ans. La couverture spatiale devra être aussi large que possible afin d'observer aurores, *airglow*, ainsi que des régions soumises à des anomalies géomagnétiques (Vialatte 2017). L'orbite sera donc fortement inclinée et présentera une dérive en heure locale pour obtenir des mesures toutes les heures. L'orbite optimale présente une inclinaison de 70 °, une altitude de 650 km, et une dérive en heure locale de 12h pour 100 jours. Afin de déterminer des profils verticaux des émissions, l'instrument devra exploiter plusieurs lignes de visée. La résolution verticale nécessaire pour identifier la contribution des différentes couches atmosphériques est de 40 km. 6 lignes de visée avec chacune un angle de vue de 1 ° × 1.5 ° seront donc utilisées (Le Coarer et al. 2017). Les altitudes étudiées ne seront pas inférieures à 100 km. L'instrument envisagé pour ATISE est basé sur le principe du  $\mu$ SPOC (*micro-Spectrometer On a Chip*). Une lentille de 81 × 69 mm est placée en entrée, avec une focale de 650 mm. Le plan focal est atteint par les photons après 3 réflexions sur des miroirs. Dans ce plan est placé une ligne de 6 lentilles de 19 × 12 mm. Pour les schémas optiques, on peut se référer à Le Coarer et al. (2017).

Le premier prototype d'ATISE a réalisé ses premières mesures en 2017, à Skibotn, en Norvège. Les observations ont été menées depuis le sol avec un seul capteur au lieu des six prévus pour la version spatialisée. Entre le 28 février et le 5 mars, 5000 à 8000 spectres ont été mesurés chaque nuit et les principales émissions aurorales ont pu être identifiées. Les résultats de cette campagne sont présentés dans le manuscrit de thèse de Vialatte (2017).

Les missions ATISE et HALESIS peuvent présenter une certaine complémentarité. D'une part, des observations depuis l'espace dans l'infrarouge moyen seraient utiles pour compléter les observations d'HALESIS. Des données visibles de TLEs apporteraient des informations complémentaires utiles pour la caractérisation du dépôt énergétique. D'autre part, les mesures d'HALESIS pourraient également venir compléter ATISE pour étendre les connaissances des signatures spectrales des aurores dans l'infrarouge. De telles mesures permettraient d'apporter des informations concernant la dissipation de l'énergie des particules précipitantes, mal connue à ce jour. Par ailleurs, la possibilité d'embarquer sur une même nacelle (sous ballon) les deux instruments pour des vols dédiés soit aux aurores, soit aux TLEs, suivant la période de l'année et le site de lancement, est actuellement discutée.

HALESIS et ATISE sont toutes deux des missions visant à caractériser les couplages entre phénomènes énergétiques et réponse atmosphérique. Si les deux projets scientifiques sont totalement indépendants, car étudiant des phénomènes naturels différents à bien des égards (échelles spatiales et temporelles, gammes d'altitudes, géolocalisations, énergies), il faut noter qu'un certain nombre de briques élémentaires sont communes aux deux projets (Figure 90).

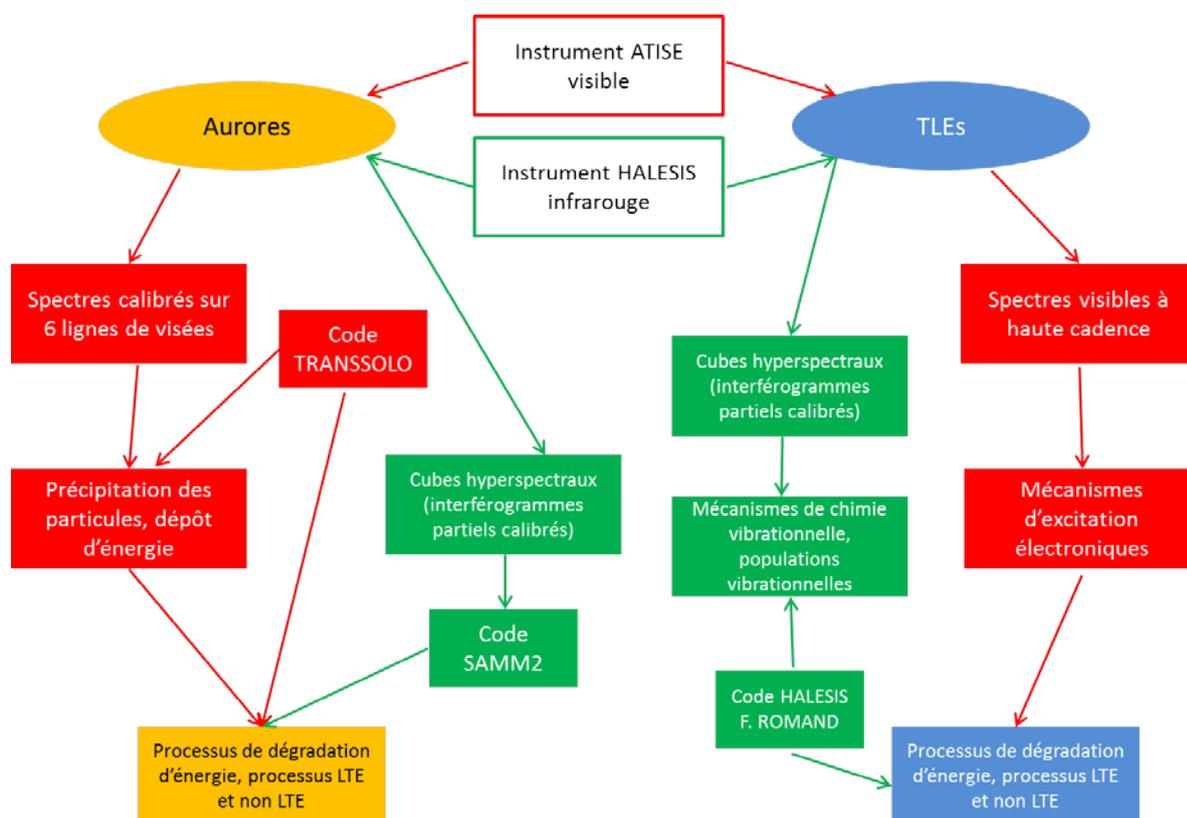


Figure 90 – Schéma de principe des synergies entre HALESIS et ATISE. Transsolo est un code de transport d'électrons.

Ces briques sont principalement axées autour de l'étude des processus physico-chimiques hors équilibre thermodynamique local. Dans le contexte de l'étude des synergies entre expérience « aurore » et expérience « TLE », un travail de simulation de la signature infrarouge des aurores a été réalisé à l'ONERA de mai à juillet 2017<sup>39</sup>. La prochaine section expose les principaux travaux effectués et les résultats obtenus.

## 5.6.2. Simulation de la signature infrarouge des aurores

### 5.6.2.1. Phénoménologie des aurores polaires

Les aurores polaires ont principalement lieu entre 90 et 250 km et sont issues des interactions entre particules solaires et espèces atmosphériques. Parmi ces particules, les électrons sont celles qui conduisent à la plupart des aurores observées, même si, parfois, des émissions exceptionnelles de protons solaires conduisent à des aurores qui émettent de fortes radiations dans l'UV. Ici, on s'intéresse exclusivement au cas des aurores à électrons. On peut classer les aurores en différentes catégories selon la date et l'heure auxquelles elles sont observées, selon leur évolution

<sup>39</sup> Stage de niveau master de Grégoire Pihan : « Simulation de la signature infrarouge des aurores », sous l'encadrement de F. Romand, L. Croizé et S. Payan.

temporelle, leur forme, leur structure, ou encore leur brillance. On distingue leurs formes en trois principales catégories, les arcs, les patches, et les formes irrégulières (Figure 91).



Figure 91 – Principales catégories d’aurores. En a), photo d’une forme d’arc prise en Laponie pour TWAN (<http://twanight.org/>). En b), forme de patch. En c), bandes irrégulières.

Les formes d’arcs ont une durée typique d’une dizaine de minutes à quelques heures et s’étendent d’est en ouest. Elles se forment vers 110 km et ont une épaisseur de quelques km à quelques dizaines de km. Des arcs nord-sud sont parfois observés, mais plus rarement et uniquement lors d’activité aurorale particulièrement forte. Les patches sont des formes diffuses qui peuvent être multiples, et dispersées sur de grandes distances. La taille de chaque patch varie de la dizaine à la centaine de km (Omholt 1971). Ceux-ci apparaissent entre 100 et 160 km d’altitude. Les bandes irrégulières ressemblent aux arcs, mais n’ont pas une structure aussi régulière. Elles sont de taille plus réduite. Celles-ci sont les moins fréquentes. Par ailleurs, il est commun que différents types d’aurores aient lieu simultanément. On peut également mentionner l’existence d’un phénomène que l’on appelle ovale auroral. Cette forme est présente en permanence. Elle entoure les pôles géomagnétiques mais est toutefois généralement trop peu intense pour être observable à l’œil nu. Pour la suite, nous ne considérerons que les deux cas les plus intenses : les arcs, et les patches.

D’un point de vue énergétique, les aurores sont généralement classifiées selon l’*International Brightness Coefficient* (IBC). Cette grandeur s’exprime en Rayleigh et correspond à l’intégration de la brillance de surface associée à la raie verte de l’oxygène (557 nm) sur  $4\pi$  d’angle solide. On distingue quatre catégories IBC :

- IBC I : [1 ; 10] kR,
- IBC II : ]10 ; 100] kR,
- IBC III : ]100 ; 1000] kR,
- IBC IV : > 1000 kR.

L'occurrence des aurores s'exprime à l'aide de l'indice appelé Kp. Celui-ci caractérise l'amplitude de l'activité géomagnétique (liée à l'activité solaire). Cet indice varie de 0 à 9 et est défini à partir de mesures de champ magnétique à travers diverses stations magnétométriques généralement situées en zone subaurorale (Elliott et al. 2013). On peut définir un indice Kp minimal, en fonction de la latitude, qui permet l'observation des aurores. Ainsi, autour de 70 ° de latitude, comme à Tromsø, en Norvège, il est possible d'observer des aurores même quand l'indice Kp est de 0. C'est la latitude à laquelle il est le plus courant de pouvoir observer des aurores. Plus on descend en latitude, plus le Kp doit être élevé pour pouvoir observer des aurores. Ainsi, à 60 ° de latitude, à Oslo par exemple, il faut un Kp minimal de 2. En cas d'activité exceptionnellement forte, des aurores ont déjà pu être observées depuis la France par exemple.

### 5.6.2.2. Modèle pour la simulation de la signature infrarouge des aurores

Le code SAMM2 (*SHARC And MODTRAN Merged*, 2<sup>e</sup> version) est sélectionné afin de simuler la signature infrarouge des aurores. Ce code, développé par l'*Air Force Research Laboratory (AFRL)*, aux États-Unis, permet de définir une région aurorale au sein d'une atmosphère de fond. L'atmosphère est modélisée entre la surface et 300 km d'altitude, et il est possible de placer autant de lignes de visée que souhaité, ce qui permet de construire des images. Il est possible de calculer les luminances spectrales entre 1 et 40 microns (250 à 10000 cm<sup>-1</sup>), avec une résolution de 0.05 à 20 cm<sup>-1</sup>. Les principales espèces qui rayonnent dans l'infrarouge sont considérées : CO<sub>2</sub>, NO, NO<sup>+</sup>, O<sub>3</sub>, CO, OH, CH<sub>4</sub>, HNO<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub> et NH<sub>3</sub>, mais la perturbation aurorale n'est modélisée que sur NO, NO<sup>+</sup>, et CO<sub>2</sub>. Le code calcule à la fois les interactions chimiques, collisionnelles, et radiatives entre espèces atmosphériques et électrons. La cinétique est couplée à un module de transfert radiatif qui permet de caractériser l'absorption et l'émission de photons à chaque pas de temps du calcul. Au-delà de 50 km d'altitude, la chimie et le transfert radiatif sont abordés en NETL.

Une région aurorale est définie par les coordonnées de 8 points utilisés pour définir une boîte au sein de l'atmosphère de fond. Le type d'aurore à simuler est ensuite choisi en définissant l'énergie totale, l'énergie moyenne, et la distribution d'énergie des électrons incidents. Dans cette étude, deux cas d'aurores seront simulés, un de type « arc » et un de type « patch ». Pour chacun de ces deux cas, un flux de 20 erg/s/cm<sup>2</sup> est défini (1 erg = 10<sup>-7</sup> joules). On attribue aux patches une distribution d'énergie des électrons maxwellienne, et aux arcs une distribution gaussienne (Jones 1974). L'énergie moyenne est, dans les deux cas, de 4 KeV<sup>40</sup>. Les deux types d'aurores couvrent les altitudes entre 100 et 160 km. La forme « patch » a, horizontalement, une dimension d'environ 100 km × 100 km, contre 1000 km × 50 km pour la forme « arc ». Les calculs sont réalisés à minuit heure locale au niveau de l'observateur.

### 5.6.2.3. Luminances infrarouges des aurores pour un observateur situé dans la stratosphère

La ligne de visée, oblique, part d'un observateur situé à 40 km d'altitude (même configuration que pour l'observation des *sprites* avec HALEISIS), et traverse le centre de l'aurore, à

---

<sup>40</sup> Pour rappel, dans les *sprites*, l'énergie moyenne des électrons est de quelques eV.

une distance horizontale de 150 km. Pour cette géométrie, l'angle zénithal est de 60 °. Le spectre de fond, sans aurore, est présenté en Figure 92.

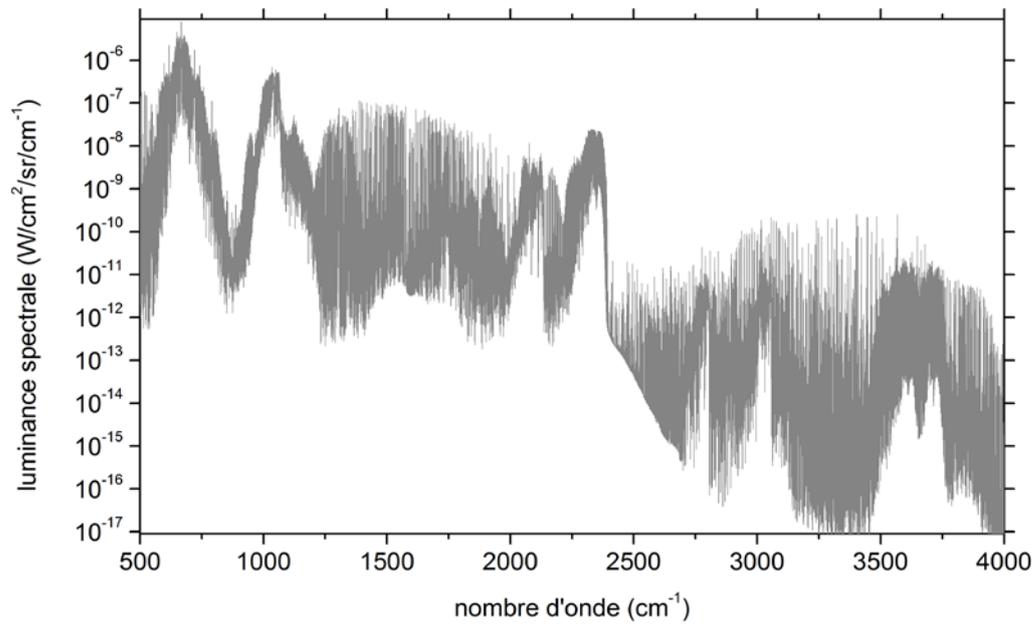


Figure 92 – Luminances atmosphériques de fond, sans aurore, calculées avec SAMM2 en conditions nocturnes, pour un observateur situé à 40 km d'altitude, avec un angle zénithal de 60 °. Spectre tracé avec une résolution spectrale de 0.4 cm<sup>-1</sup>.

Les signatures aurorales, associées au CO<sub>2</sub>, NO, et NO<sup>+</sup>, sont présentées dans la Figure 93.

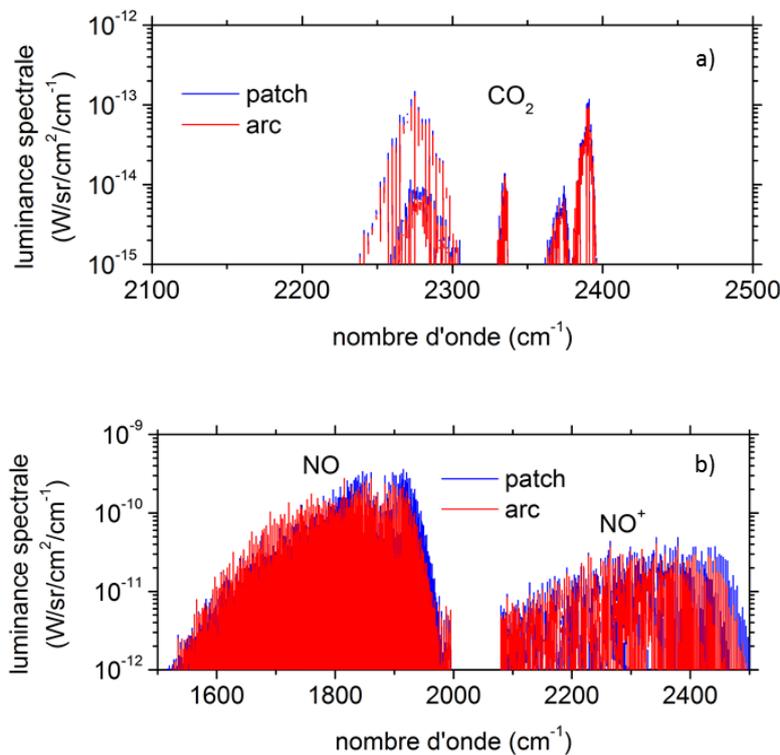


Figure 93 – Signatures aurorales de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NO}$ , et  $\text{NO}^+$ . En a), le  $\text{CO}_2$ . En b),  $\text{NO}$  et  $\text{NO}^+$ . Spectres tracés avec une résolution spectrale de  $0.4 \text{ cm}^{-1}$ .

Que ce soit pour l'aurore de type arc ou patch, la signature du  $\text{CO}_2$  entre  $2200$  et  $2400 \text{ cm}^{-1}$  dépasse à peine les  $10^{-13} \text{ W/sr/cm}^2/\text{cm}^{-1}$  (soit environ 6 ordres de grandeur de moins que la signature maximale des *sprites*). Pour comparer avec les *sprites*, et même si ce n'est pas représenté sur la figure, on peut préciser que, vers  $600 - 700 \text{ cm}^{-1}$ , la signature aurorale est de  $\sim 10^{-13} \text{ W/sr/cm}^2/\text{cm}^{-1}$ . Entre  $900 - 1100 \text{ cm}^{-1}$ , elle est encore inférieure d'un ordre de grandeur.

La signature de la bande fondamentale de  $\text{NO}$  ( $1600 - 2000 \text{ cm}^{-1}$ ), atteint  $2 \times 10^{-10}$  pour le type arc, et  $3 \times 10^{-10}$  pour le type patch. Une bande chaude de  $\text{NO}$  apparaît également autour de  $3500 \text{ cm}^{-1}$  (non représenté sur la figure). Cette bande est issue de l'excitation des niveaux vibrationnels les plus élevés de  $\text{NO}$  (SAMM2 modélise la cinétique vibrationnelle des niveaux 1 à 12). La signature maximale dans cette bande est de l'ordre de  $10^{-11} \text{ W/sr/cm}^2/\text{cm}^{-1}$ .

La signature maximale de  $\text{NO}^+$  ( $2100 - 2500 \text{ cm}^{-1}$ ) est du même ordre de grandeur. Elle atteint  $3 \times 10^{-11}$  et  $4 \times 10^{-11} \text{ W/sr/cm}^2/\text{cm}^{-1}$  pour le type arc et le type patch respectivement.

En pratique, il est difficile de savoir à quelle distance exactement l'observateur se situera par rapport à l'aurore. Un test de la sensibilité des signatures en fonction de la distance a montré qu'il y a peu d'influence (sur une gamme comprise entre  $100$  et  $300 \text{ km}$ ). En effet, plus l'observateur est placé loin de l'événement, plus la ligne de visée traverse les couches basses de l'aurore, régions aux émissions les plus intenses. L'augmentation de la distance et donc de l'absorption le long de la ligne de visée, est globalement contrebalancée par une brillance d'émission de la source supérieure.

#### 5.6.2.4. Conclusion de l'étude des luminances infrarouges des aurores

Ce travail a permis de définir des caractéristiques géométriques et énergétiques typiques d'aurores relativement fréquentes. Les signatures de chacune des molécules affectées par le flux d'électrons ( $\text{NO}$ ,  $\text{NO}^+$ ,  $\text{CO}_2$ ) ont été étudiées.

L'effet de la distance de l'observateur a été testé et a permis de conclure que, sur des distances de quelques centaines de kilomètres, il y a peu d'influence sur l'amplitude des luminances spectrales.

Les résultats obtenus montrent que la signature du  $\text{CO}_2$  auroral sera particulièrement difficile à distinguer des luminances de fond non perturbées. Les signatures de  $\text{NO}$  et  $\text{NO}^+$  sont plus importantes, mais restent très inférieures à celles du  $\text{CO}_2$  dans le cas des *sprites* (environ 3 ordres de grandeur de moins). Toutefois, les aurores étant des phénomènes à la dynamique temporelle bien plus longue que les *sprites*, il sera possible de réaliser des acquisitions avec des temps d'intégration beaucoup plus longs.

### 5.7. Bilan du cinquième chapitre

Au travers de ce chapitre, nous avons d'abord étudié les signatures infrarouges de *sprites* pour des observateurs situés dans la stratosphère, pour une distance horizontale de 50 km entre phénomène et observateur. Cette géométrie correspond à celle de la future mission HALESIS. Les instruments de cette mission seront très probablement embarqués dans la nacelle d'un ballon stratosphérique ouvert (BSO), plateforme privilégiée pour les expériences de sondage de l'atmosphère depuis la stratosphère. Le développement récent de la technologie HAPS (*High Altitude Pseudo-Satellite*), dont on a mentionné l'exemple de Stratobus<sup>TM</sup>, pose la question de l'embarquement de l'instrumentation d'HALESIS sur ce type de plateforme. Nous avons réalisé les simulations de transfert radiatif pour ces deux cas de figure. En définissant l'altitude du BSO à 40 km, et celle d'un porteur de type HAPS à 20 km, nous avons estimé la signature infrarouge consécutive à un *sprite* jusqu'à plusieurs dizaines de secondes après le flash visible. Les signatures calculées nous ont permis de définir deux bandes spectrales dans lesquelles les signatures infrarouges sont suffisamment importantes pour envisager une détection. La première entre 900 et 1100  $\text{cm}^{-1}$ , dans le LWIR, la seconde entre 2200 et 2400  $\text{cm}^{-1}$ , dans le MWIR. Ces deux bandes étant influencées par la désexcitation radiative de  $\text{CO}_2(001)$ . En considérant une ligne de visée qui traverse le *sprite* à 50 km d'altitude, les signatures pour l'observateur de type BSO, maximales 1 s après le flash visible, sont respectivement de  $\sim 10^{-7} \text{ W/sr/cm}^2/\text{cm}^{-1}$  et  $\sim 10^{-8} \text{ W/sr/cm}^2/\text{cm}^{-1}$  dans le LWIR et le MWIR. Pour l'observateur de type HAPS elles sont inférieures d'un facteur 2 à 1 ordre de grandeur. Par ailleurs, nous avons proposé une évaluation préliminaire de l'incertitude sur les SIRs obtenues pour ce type d'observateurs de + 1 / - 2 ordres de grandeur par rapport à l'estimation nominale.

La distance entre *sprite* et observateur ou encore la dimension du *sprite* ne devraient pas influencer les SIRs de façon très importante pour cette géométrie d'observation. Par contre, l'altitude à laquelle la ligne de visée traverse le *sprite* est critique : les SIRs devraient être nettement plus fortes aux basses altitudes. Par exemple, entre 60 et 40 km, les SIRs maximales devraient perdre une amplitude d'environ deux ordres de grandeur. Inversement, les SIRs devraient persister plus longtemps à haute altitude car les processus de *quenching* y sont moins efficaces.

Étant donné l'importance des émissions infrarouges des *sprites*, et plus particulièrement dans le LWIR, gamme moins affectée par l'absorption atmosphérique, il pourrait même être possible de détecter ce rayonnement pour un observateur situé dans la troposphère. Par exemple, à bord d'un avion, à 10000 m d'altitude, voire depuis un observatoire au sol, à haute altitude. Cette hypothèse est toutefois très dépendante des conditions atmosphériques de la troposphère. C'est pourquoi, pour la confirmer ou l'infirmier, il sera nécessaire de réaliser des simulations en prenant un soin particulier dans la description des conditions physico-chimiques de la troposphère. Aspect qui n'a pas été traité dans cette étude. Par ailleurs, pour un observateur situé dans l'espace, le problème de l'absorption est bien moindre. Ainsi, les signatures dans le MWIR sont encore plus forte que celles dans le LWIR. Elles pourraient atteindre les  $10^{-6}$  W/sr/cm<sup>2</sup>/cm<sup>-1</sup> et  $9 \times 10^{-7}$  W/sr/cm<sup>2</sup>/cm<sup>-1</sup> respectivement. De plus, même les émissions liées aux autres niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>(010, 100), entre 600 – 800 cm<sup>-1</sup> pourraient être importantes. C'est pourquoi on suppose que de telles SIRs pourraient être identifiées à partir de données spatiales infrarouges acquises dans les dernières décennies.

Par ailleurs, l'instrument de la future mission HALESIS devra pouvoir acquérir des données entre 4 – 5 µm et/ou 9 – 11 µm. S'il est nécessaire de faire un choix entre ces deux bandes spectrales, il faut savoir que les émissions entre 9 – 11 µm sont moins soumises à l'absorption et devraient être plus facilement détectables. Ensuite, on estime que l'instrument devra acquérir l'ensemble du cube d'image en simultané, avec une fréquence d'acquisition d'au moins 1 Hz (hertz). Le choix d'un concept d'imageur hyperspectral (haute résolution spatiale, faible sensibilité) ou multipixels (faible résolution spatiale, haute sensibilité) dépendra principalement d'un compromis entre sensibilité et résolution spatiale. Pour des observations réalisées depuis une distance comprise entre une cinquantaine de kilomètres et quelques centaines de kilomètres, on propose l'utilisation d'une optique permettant un champ de vue total de 40 °. L'exploitation de synergies entre les expériences HALESIS et ATISE, dédiée aux aurores, constituera probablement une perspective prometteuse. Les données visibles de l'une pourront venir enrichir les données infrarouges de l'autre, et inversement. Il sera alors possible de relier des phénomènes énergétiques (précipitation de particules solaires dans l'atmosphère pour les aurores, cascade électronique pour les *sprites*) à leurs conséquences radiatives à la fois dans le visible et dans l'infrarouge. Ce qui permettra d'expliquer des processus de transfert d'énergie encore partiellement connus. Dans ce cadre, les effets des aurores sur les luminances atmosphériques dans l'infrarouge ont été étudiés. Ces travaux ont permis d'évaluer la SIR des aurores à quelques  $10^{-10}$  W/sr/cm<sup>2</sup>/cm<sup>-1</sup> tout au plus. Cette SIR est très faible devant celle des *sprite*, mais, en utilisant des temps d'intégration beaucoup plus longs, sera peut-être observable.



# 6. Conclusion générale et perspectives

## 6.1. Conclusion générale

Ce travail de thèse a consisté à étudier la cinétique vibrationnelle consécutive à un *sprite* et à évaluer ses conséquences sur les luminances infrarouges atmosphériques jusqu'à plusieurs dizaines de secondes après la partie visible du phénomène. Pour cela, nous avons développé un modèle cinétique capable de décrire les interactions entre électrons et espèces atmosphériques et les échanges d'énergie électronique et vibrationnelle à travers différents processus collisionnels. Nous avons ainsi obtenu l'évolution temporelle des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub> à la suite du passage d'un *streamer*. Ensuite, nous avons couplé ces sorties à un code de transfert radiatif pour évaluer leurs effets sur les luminances atmosphériques dans l'infrarouge moyen et lointain.

Cet outil nous a permis d'apporter des réponses aux deux principales questions soulevées en introduction. La première était : en quoi les *sprites* affectent-ils la chimie vibrationnelle en haute stratosphère et dans la mésosphère ?

Pour y répondre, nous avons d'abord examiné les évolutions temporelles des concentrations en électrons et niveaux électroniques de N<sub>2</sub> et N<sub>2</sub><sup>+</sup>, espèces qui nous ont permis de valider la méthode utilisée. Ensuite, on s'est intéressés aux évolutions temporelles des niveaux vibrationnels de N<sub>2</sub> et de CO<sub>2</sub>. Parmi les 3 niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>, (001) est le plus affecté. Ses concentrations maximales atteignent 3 ordres de grandeur de plus que les concentrations initiales (qui sont proches de l'ETL). En termes de températures vibrationnelles, on obtient des variations de 255, 246, 215, et 168 K à respectivement 40, 50, 60, et 70 km d'altitude. De plus, entre 40 et 70 km, il faut entre 35 et 90 s pour que les concentrations / températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001) retombent à leur niveau initial. Ces estimations sont basées sur le choix de paramètres d'entrée (champs électriques, constantes de vitesse, température et composition chimique initiales...) dont les incertitudes et les effets sur les sorties du modèle sont difficiles à établir. Nous avons cherché à évaluer, de façon préliminaire, l'importance de ces paramètres et les incertitudes associées à travers une étude de sensibilité. Une première étape a permis de démontrer l'impact négligeable d'une incertitude de +/- 10 % sur les constantes de vitesse des collisions entre CO<sub>2</sub> et molécules de fond (N<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> principalement). Ensuite, on a déterminé que le paramètre le plus influent est le champ électrique réduit appliqué pendant la phase de relaxation, duquel dépend l'efficacité des transferts d'énergie vers les niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub>. Ensuite, on trouve la concentration dans les têtes de *streamers* de laboratoire à l'altitude zéro. Ce paramètre est utilisé pour la mise à l'échelle des concentrations électroniques maximales à toutes altitudes. Enfin, on a mis en évidence une importance significative de la variabilité de la latitude à laquelle est lancé le calcul, entre 0 et 45 °. Devant l'impossibilité de déterminer de façon satisfaisante les incertitudes de certains paramètres d'entrée, nous n'avons pas pu définir d'incertitude robuste sur les sorties. Toutefois, au vu des résultats obtenus, nous proposons une incertitude sur les températures vibrationnelles nominales de CO<sub>2</sub>(001) de + 60 / - 40 %.

En résumé, et pour définir notre contribution dans ce domaine, nous avons apporté la description la plus complète des effets d'un *streamer* de *sprite* sur les premiers niveaux de chaque mode de vibration de CO<sub>2</sub> actif dans l'infrarouge. Par ailleurs, nous avons fourni la première étude de sensibilité d'un modèle cinétique de *streamer*.

La seconde question était : dans quelle mesure cette perturbation énergétique peut-elle influencer les luminances infrarouges de l'atmosphère ?

Pour y apporter une réponse, nous avons appliqué la perturbation des températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub> par un *streamer* à un volume équivalent représentant le volume d'atmosphère totale perturbée lors d'un *sprite*. Nous avons calculé les signatures infrarouges de *sprites* en fonction de la position de l'observateur, du temps après le flash visible, et des dimensions du phénomène. La perturbation sur les niveaux d'énergie vibrationnelle de CO<sub>2</sub>, principalement associée au niveau (001), se distingue dans deux principales bandes spectrales : l'une dans l'infrarouge lointain (LWIR), autour de 1000 cm<sup>-1</sup>, l'autre dans l'infrarouge moyen (MWIR), autour de 2300 cm<sup>-1</sup>. Pour une ligne de visée qui traverse le *sprite* à 50 km d'altitude et un observateur de type ballon stratosphérique ouvert, les signatures maximales, 1 s après le flash visible, sont respectivement de  $\sim 10^{-7}$  W/sr/cm<sup>2</sup>/cm<sup>-1</sup> et  $\sim 10^{-8}$  W/sr/cm<sup>2</sup>/cm<sup>-1</sup> dans le LWIR et le MWIR. Pour un observateur de type *high altitude pseudo-satellite*, elles sont inférieures d'un facteur 2 à 1 ordre de grandeur. La gamme dans le LWIR devrait être la plus facilement détectable depuis la stratosphère, car moins soumise à l'absorption atmosphérique. Par ailleurs, on a montré que la distance entre observateur et *sprite*, ainsi que le diamètre du *sprite*, auront une influence réduite sur les signatures infrarouges. Au contraire, l'altitude à laquelle la ligne de visée traverse le phénomène aura un rôle majeur puisque, entre 40 et 60 km, l'amplitude maximale de la signature décroît de 2 ordres de grandeur. Pour des observations spatiales, la signature infrarouge sera maximale autour de 2300 cm<sup>-1</sup>, l'absorption de l'atmosphère entre l'altitude des *sprites* et l'espace étant bien plus faible. Enfin, on a évalué l'effet sur les luminances de l'incertitude de + 60 / - 40 % sur les températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>. Pour un observateur situé dans la stratosphère, celle-ci conduit à une incertitude de + 1 / - 2 ordres de grandeur sur les signatures infrarouges.

Auparavant, de nombreux auteurs avaient évalué les signatures visibles des *sprites*, quelques-uns les signatures dans le proche infrarouge, et un seul au-delà, dans l'infrarouge à 4.26 μm (voir « 1.5.2 »). En résumé, notre contribution dans ce domaine est d'avoir apporté les premières simulations de signatures de *sprites* dans le LWIR, ainsi que de nouvelles signatures dans le MWIR basées sur un modèle cinétique dans lequel les électrons ont des énergies cohérentes avec les observations ISUAL. Ce qui n'était pas le cas auparavant puisque ces énergies étaient sous-estimées d'environ un ordre de grandeur.

Les résultats obtenus nous ont permis de proposer une estimation des spécifications instrumentales pour la future mission HALESIS. L'instrument scientifique de HALESIS devra pouvoir acquérir des données entre 4 – 5 μm et/ou 9 – 11 μm. L'instrument devra acquérir les images avec une fréquence d'acquisition d'au moins 1 Hz. Une acquisition simultanée (*snapshot*) permettrait d'éviter l'introduction d'un décalage temporel dans les acquisitions. Au regard des dimensions du phénomène étudié, un champ de vue totale de 40 ° devrait être satisfaisant.

Par ailleurs, nous avons également contribué à l'étude de synergies entre HALESIS et l'expérience d'étude des aurores et de l'*airglow* ATISE. Cette dernière permettra d'acquérir des mesures spectrales principalement dans le visible. Embarqué sous un ballon stratosphérique, l'instrument permettrait de compléter les mesures de l'instrument principal de HALESIS. Ces données permettraient de caractériser les principaux processus de désexcitation des niveaux électroniques perturbés par les TLEs (phénomènes à l'origine des émissions visibles). D'autre part, l'acquisition de données infrarouges d'aurores depuis un ballon stratosphérique permettrait de compléter les données spatiales d'ATISE dans le visible. C'est pourquoi, pour terminer, nous avons évalué les signatures aurorales dans l'infrarouge, pour un observateur de type ballon stratosphérique. Même si les signatures sont moins fortes que celles des *sprites*, de 3 ordres de grandeur environ, la durée de ce phénomène, bien plus longue, permettra d'acquérir des mesures avec des temps d'intégration supérieurs.

Enfin, il faut souligner le caractère amont du travail réalisé au cours de cette thèse, et le manque actuel de données expérimentales. Données qui permettraient de valider les principaux résultats obtenus et de tester les hypothèses physico-chimiques qui caractérisent un *sprite* dans les simulations réalisées. Il existe différents axes d'amélioration qui constituent les principales perspectives de ce travail. Ceux-ci concernent le modèle cinétique, le modèle électrique de *streamer*, et les hypothèses pour le calcul du transfert radiatif.

## 6.2. Perspectives

### 6.2.1. Aspects chimiques

#### 6.2.1.1. Chimie atmosphérique

Le modèle cinétique développé permet de simuler les évolutions temporelles de 64 espèces. Une majorité de ces espèces n'a donc pas été traitée au cours de ces travaux de thèse. On peut citer les  $\text{NO}_x$ , l'ozone,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ... ainsi qu'une série d'ions. De plus, le jeu de réactions associé à la vapeur d'eau a été désactivé afin de réduire le temps de calcul. À court terme, on pourra donc exploiter les résultats de la simulation cinétique pour les espèces restantes, en augmentant la durée de la simulation pour rendre compte de processus qui se déroulent à des échelles de temps supérieures, et en réfléchissant aux modifications à apporter pour pouvoir réaliser des simulations sur plusieurs heures à plusieurs jours (transport, diffusion, photochimie...). Par ailleurs, il faudra s'assurer que le modèle cinétique est capable de représenter des cycles chimiques naturels, tels que le cycle des  $\text{NO}_x$ .

#### 6.2.1.2. Chimie plasma et vibrationnelle

L'intérêt de l'étude de la cinétique vibrationnelle a été démontré par les simulations réalisées au cours de cette thèse. On a en effet vu que la perturbation de la répartition des niveaux d'énergie vibrationnels de la molécule de  $\text{CO}_2$  pouvait conduire à des émissions infrarouges importantes, même si les concentrations totales de la molécule ne sont pas affectées. Dans le modèle cinétique utilisé, nous avons considéré les premiers niveaux vibrationnels de chaque mode actif dans l'infrarouge. Mais d'autres niveaux pourraient également contribuer aux émissions infrarouges dans les bandes déjà étudiées, ou être à l'origine de signatures spectrales dans d'autres bandes. Pour poursuivre des recherches dans cette voie, il est possible d'inclure l'ensemble de la cinétique vibrationnelle de  $\text{CO}_2$  décrite dans le manuscrit de thèse de Parra-Rojas (2015). Il faudra toutefois s'assurer que cette cinétique est équilibrée, et compenser les pertes radiatives par émission spontanée. Cette procédure est décrite en « 2.2.2.1 ».

Pour ce qui est de la cinétique vibrationnelle de  $\text{N}_2$ , nous n'avons pas inclus les processus radiatifs correspondants. Une étape prioritaire sera donc de compléter le modèle avec ces processus. On peut les trouver, par exemple, dans la publication de Gordillo-Vazquez (2010). De plus, on pourrait prendre en compte des niveaux vibrationnels de  $\text{N}_2$  de plus hautes énergies. Il est possible que les transitions des niveaux hautement excités puissent conduire à la formation de bandes chaudes dans l'infrarouge proche, voire moyen. Il est également probable que ces niveaux interagissent avec le  $\text{CO}_2$  vibrationnel. Pour engager les investigations dans cette direction, on pourra par exemple se pencher

vers les travaux de Laporta et al. (2012 2014). Les auteurs étudient les impacts entre électrons et  $N_2$  vibrationnel pour plusieurs dizaines de niveaux. Ces publications montrent d'ailleurs que les sections efficaces de ces collisions présentent des maximums autour de quelques eV, soit des énergies typiquement rencontrées dans les *sprites*.

Dans une logique similaire, on pourrait étudier l'excitation vibrationnelle d' $O_2$  par les électrons produits en cascade par les *streamers*. Même s'il ne peut probablement pas conduire à des émissions importantes dans l'infrarouge, le diazote pourrait, en tant que second constituant atmosphérique, constituer un vecteur de transmission d'énergie vibrationnelle important vers le  $CO_2$  ou d'autres espèces. Il pourrait également exister différentes interactions entre niveaux vibrationnels de  $N_2$  et  $O_2$ . Cette piste de réflexion peut être engagée à partir de la publication de Mack et al. (1996).

Une autre piste d'investigation majeure serait d'étudier la cinétique vibrationnelle d'autres espèces qui pourraient rayonner dans l'infrarouge. En se basant sur les modèles cinétiques utilisés par le code SAMM2 pour la simulation des émissions aurorales, on pourra prendre en compte les différents processus associés aux 12 premiers niveaux vibrationnels de NO, et aux 13 premiers niveaux de  $NO^+$ . Il faudra simplement faire attention au choix des réactions. Les énergies des électrons primaires précipitant au sein des aurores sont de l'ordre de quelques centaines d'eV à quelques KeV. Il est possible que certaines réactions, importantes à ces énergies, soient marginales avec des électrons de quelques eV. Par ailleurs, il existe d'autres molécules dont la cinétique vibrationnelle et les interactions avec les électrons pourraient présenter un intérêt ( $O_3$ , CO,  $NO_2$ ...) et avoir un rôle significatif dans les émissions infrarouges consécutives aux *sprites*. De plus, la concentration totale de certaines de ces espèces pourrait également être affectée. Même si ces espèces ne conduisent pas à d'importantes émissions, leur étude permettra une compréhension étendue des échanges d'énergie au sein des *sprites*, et au sein des plasmas atmosphériques de façon générale. Il est possible de trouver, dans les travaux de Millikan et White (1963), ou encore Schulz (1964), les principaux processus vibrationnels liés à ces espèces. L'étape la moins évidente sera certainement de décrire les interactions entre niveaux vibrationnels des différentes espèces, à l'image de ce qu'on a fait pour  $N_2$  et  $CO_2$ .

Toutes ces améliorations conduiront à la construction d'un modèle cinétique extrêmement complexe, de plusieurs milliers de réactions. Certains problèmes risquent alors de se poser. Les temps de calcul pourraient se montrer rédhibitoires et les solveurs d'équations différentielles pourraient ne pas converger vers une solution. Pour résoudre ce problème, il sera possible de scinder le modèle cinétique en plusieurs modules, chacun associé à une espèce et à ses principales interactions. C'est d'ailleurs ce qui est fait au sein du code SAMM2.

## 6.2.2. Amélioration du modèle électrique de streamer

Dans ce travail, on a utilisé une modélisation purement empirique du champ électrique, basée sur des considérations simplifiées à propos de la propagation d'un *streamer* positif descendant. La principale piste d'investigation à ce propos consisterait à réaliser un couplage entre un modèle de simulation de décharge et le modèle cinétique présenté dans ce manuscrit. En réalisant une modélisation électrodynamique de la propagation d'un *streamer*, il serait possible de quantifier le véritable champ électrique à une altitude et à un instant donné, sur une grille à 2 voire 3 dimensions spatiales. Jusqu'à présent, les travaux de couplage entre électrodynamique et cinétique ne prennent en compte que des modèles cinétiques simplifiés pour évaluer les principales émissions visibles associées aux *streamers* de *sprites* (voir section « 3.2.2 »).

Une piste que l'on peut envisager serait de réaliser un couplage avec le code KRONOS (Rassou et al. 2016). KRONOS est un modèle plasma-fluide développé au sein de l'équipe Foudre, Plasma et Applications (FPA) à l'ONERA. Il correspond au couplage de CEDRE (Calcul d'Écoulements Diphasiques Réactifs pour l'Énergétique (Refloch et al. 2011)) et CODE\_SATURNE (Archambeau et al. 2004), logiciel libre de simulation en mécanique des fluides développé par EDF (Électricité de France). La modélisation de la cinétique plasma est réalisée par un solveur d'équation de Boltzmann et un solveur chimique. KRONOS est utilisé pour simuler les effets de la propagation d'un écoulement supersonique. Couplé à la cinétique vibrationnelle utilisée dans cette thèse, KRONOS permettrait de suivre la propagation de *streamers* tout en évaluant la perturbation des concentrations des espèces vibrationnelles d'intérêt dans l'infrarouge.

### 6.2.3. Signatures infrarouges d'autres espèces et amélioration du modèle de *sprite*

Jusqu'à présent, nous avons évalué la signature infrarouge associée à la perturbation des niveaux vibrationnels de CO<sub>2</sub> seulement. En conditions d'équilibre thermodynamique local, c'est-à-dire sans perturber la distribution des niveaux d'énergie internes, une molécule peut présenter une signature dans l'infrarouge. Si sa concentration dans l'atmosphère augmente suite à un *sprite*, alors sa signature infrarouge augmente également. Cela pourrait être le cas, par exemple, avec les NO<sub>x</sub> ou l'ozone. Si de prochaines simulations cinétiques montrent que la concentration de certaines de ces espèces est perturbée de façon importante par un *sprite*, on pourra utiliser ces perturbations pour calculer les signatures infrarouges correspondantes. Dans ce cas, les calculs seront réalisés selon l'hypothèse que les niveaux d'énergie de ces espèces suivent une statistique de Maxwell-Boltzmann, et la procédure sera similaire à celle décrite en « 2.3 ».

Sans même avoir besoin de réaliser les simulations cinétiques, on pourrait se baser sur différents travaux ayant évalué la production de NO<sub>x</sub> par les *sprites* (voir « 1.5.3 »). Toutefois, les différences entre les quantités évaluées par les différents auteurs peuvent atteindre plus de 6 ordres de grandeur. Ainsi, une évaluation de la signature infrarouge associée à ces différentes estimations serait peu robuste.

Dans la continuité de l'extension du modèle de cinétique vibrationnelle à d'autres espèces, on pourra calculer les signatures NETL correspondantes. Cette perspective sera intéressante à condition que les simulations cinétiques conduisent à des perturbations significatives sur les niveaux vibrationnels d'autres espèces que CO<sub>2</sub>. L'ozone en particulier, ou encore NO et CO, sont de bons candidats.

Par ailleurs, le modèle géométrique de *sprite*, un simple cylindre, utilisé pour les calculs de transfert radiatif, peut faire l'objet de quelques critiques. L'utilisation d'un volume équivalent occulte totalement la structure fine des *sprites*, à l'échelle des *streamers*. De plus, une forme de cylindre n'est pas nécessairement la plus adaptée. Il serait possible qu'une forme de cône représente de façon plus juste la distribution de la perturbation énergétique et chimique. Pour étudier cet aspect, il sera possible de réaliser des simulations à partir de différentes hypothèses sur la géométrie des *sprites*, et d'en étudier la sensibilité.

## 6.2.4. Perspectives pour HALESIS et aspect Défense

Ces travaux vont servir de base à la conception puis à la réalisation d'un dispositif expérimental permettant d'imager l'atmosphère localement perturbée par un *sprite* (mission HALESIS). C'est d'ailleurs la mise en œuvre de ce dispositif à partir d'un ballon stratosphérique qui permettra de valider le travail présenté ici. Une étude financée par le CNES pour la conception instrumentale préliminaire sera prochainement démarrée. Par ailleurs, l'ensemble du travail de simulation réalisé consistait en une approche directe, c'est-à-dire l'évaluation des conséquences énergétiques, chimiques, et radiatives issues d'une perturbation de nature électrique. À l'avenir, lorsque la mission HALESIS aura permis d'acquérir des images hyperspectrales infrarouges de l'atmosphère perturbée par des *sprites*, nous aurons besoin de moyens d'inversion afin de remonter aux variables énergétiques et chimiques d'intérêt scientifique. La conception ou l'adaptation d'outils d'inversion existants devra alors être réalisée.

Pour ce qui relève de la Défense, nous avons montré que les *sprites* peuvent représenter des sources importantes de rayonnement infrarouge moyen et lointain, pendant une durée de plusieurs dizaines de secondes après le flash visible. Une étude comparative des signatures de phénomènes naturels avec des signatures associées à des tirs de missiles n'entraîne pas dans le cadre de ce travail. Les résultats obtenus pourront servir de base aux équipes qui effectueront ces travaux.

## 6.2.5. Simulation d'autres phénomènes lumineux transitoires

Dans ce travail, nous nous sommes presque exclusivement concentrés sur les *sprites*. On pourrait étendre le modèle développé à d'autres cas de TLEs. Pour pouvoir simuler des *blue jets*, par exemple, il faudrait adapter le modèle cinétique à des altitudes plus basses, où la chimie associée à la vapeur d'eau pourrait avoir un rôle non négligeable sur les émissions et sur l'absorption. Il faudrait également utiliser un modèle électrique différent, un *blue jet* consistant essentiellement en une décharge de type *leader* accompagnée d'un ensemble de *streamers* (Pasko et George 2002 ; Petrov et Petrova 1999). Pour la simulation des halos, il sera possible de se baser sur les travaux de Parra-Rojas (2015), qui propose un modèle cinétique et électrique dédié à ce phénomène.

Les études en lien avec les phénomènes lumineux transitoires sont récentes. Il est facile d'imaginer d'importants développements à venir. L'un d'eux pourra être l'étude de planètes à l'activité électrique importante comme Saturne, Jupiter ou encore Vénus. Au sein de l'atmosphère de ces planètes se produisent peut-être des phénomènes lumineux encore inconnus.

## 7. Annexes

### 7.1. Campagnes d'observation des sprites

Campagne	Dates	Remarques	Référence
Enregistrement accidentel, depuis le sol (Hautes Plaines, USA)	6 juillet 1989	Premier enregistrement d'un TLE ( <i>sprite</i> ) par des scientifiques de l'Université du Minnesota qui testaient une caméra à basse lumière en extérieur.	Franz et al. (1990)
Missions spatiales STS-32 et STS-31	Janvier et avril 1990	Dix jours d'observations en janvier depuis la navette Columbia, 5 jours en avril, depuis la navette Discovery, avec une caméra de télévision.	Vaughan et al. (1992)
Campagne sol (Nebraska, USA)	6 juillet – 27 août 1993	Observation de larges (plus de 10 km) et complexes structures au-dessus d'un système convectif. La durée des phénomènes est comprise entre 33 et 283 ms.	Lyons (1994)
Campagne aéroportée Sprites94 (Arkansas, USA)	29 juin – 13 juillet 1994	Premières images en couleurs de <i>sprites</i> .	Sentman et al. (1995)
Campagne sol (Nebraska, Colorado, USA)	22 juin 1995	Utilisation d'un spectrographe généralement utilisé pour l'étude des aurores. Mesure de spectres optiques entre 540 et 840 nm. Les émissions viennent du premier système positif de N <sub>2</sub> (N <sub>2</sub> (1PG)).	Hampton et al. (1996)
Campagne sol (Colorado, USA)	Juillet 1995	Les délais entre éclairs parents et <i>sprites</i> sont mesurés à 1.5 - 4 ms. Les <i>sprites</i> semblent avoir un cœur brillant de moins de 2 km de large.	Rairden and Mende (1995)
Campagne sol (Colorado, USA)	1996	Observations dans la gamme 350-475 et 415 - 435 nm (bleu). Les auteurs concluent qu'une ionisation significative doit avoir lieu pendant un sprite (émissions de N <sub>2</sub> <sup>+</sup> ).	Suszcynsky et al. (1998)

Campagne sol depuis le <i>Langmuir Laboratory</i> (Nouveau Mexique, USA)	6 octobre 1997	Imagerie haute vitesse (3000 images / seconde) multispectrale de <i>sprites</i> entre 40 et 90 km d'altitude. Brillance estimée à 0.3 - 1.7 MR avec le filtre à 665 nm et 1.44 - 1.7 MR avec le filtre à 860 nm. La fréquence des <i>sprites</i> est estimée à quelques événements par minute.	Barrington-Leigh et al. (2001)
Campagne aéroportée EXL98 ( <i>Energetics of Upper Atmospheric Excitation by Lightning</i> , Wyoming, Colorado, USA)	Juillet 1998	Dans la gamme spectrale 320-460 nm, les émissions des <i>sprites</i> proviennent principalement de N <sub>2</sub> (2PG).	Heavner et al. (2010)
Campagne sol depuis le <i>Langmuir Laboratory</i> (Nouveau Mexique, USA)	Juillet et août 1998	Imagerie avec un télescope et capteur CCD. Enregistrement de structures fines en forme de colonnes constituant les <i>sprites</i> .	Gerken et al. (2000)
Campagne sol depuis le <i>Wyoming InfraRed Observatory</i> (WIRO, Wyoming, USA).	18 août 1999	Utilisation d'une caméra à 1000 FPS. Observation de la propagation des têtes de <i>streamers</i> , dont le diamètre est d'environ 100 mètres ou moins. Les têtes de <i>streamers</i> se séparent parfois en plusieurs <i>streamers</i> , plus généralement au centre des gros <i>sprites</i> .	Stenbaek-Nielsen et McHarg (2008)
EuroSprite2000, depuis l'Observatoire du Pic du Midi (France)	Juillet et août 2000	Première campagne européenne d'observation des <i>sprites</i> . Enregistrement de 40 <i>sprites</i> : <i>dancing sprites</i> , <i>carrot sprites</i> multiples, et <i>C-sprites</i> . Campagnes poursuivies par la suite dans le cadre du projet CAL ( <i>Coupling of Atmospheric Layers</i> 2003 – 2007), puis TEA-IS ( <i>Thunderstorm Effects on the Atmosphere-Ionosphere System</i> 2011 – 2016).	Neubert et al. (2001)

Campagnes LSO ( <i>Lightning and Sprite Observations</i> ), à bord de l'ISS ( <i>International Space Station</i> )	Octobre 2001, novembre 2002, octobre 2003, avril 2004	Campagnes conduites lors de 4 missions ESA ( <i>European Space Agency</i> ) : Andromède, Odissea, Cervantes et Delta. 19 jours d'observation, 180 phénomènes lumineux enregistrés dont quelques <i>sprites</i> . Des observations au nadir permettent de différencier <i>sprites</i> et éclairs troposphériques en utilisant différents filtres.	Blanc et al. (2007b)
Campagne sol (Hokuriku, Japon)	14 décembre 2001 et 20 janvier 2002	Observation de 12 <i>sprites</i> au-dessus de la mer du Japon. Découverte de deux critères pour leur apparition : décharge nuage-sol positive et seuil vertical de moment de charge de 200-300 C.km.	Hayakawa et al. (2004)
MEIDEX ( <i>Mediterranean Israeli Dust experiment</i> ), à bord de la navette spatiale Columbia (STS-107)	Janvier 2003	Acquisition d'images multispectrales de <i>sprites</i> entre 40 et 90 km. Brillance estimée à 0.3 - 1.7 MR à 665 nm, et 1.44 - 1.7 MR à 860 nm. Estimation de la fréquence d'occurrence des <i>sprites</i> à quelques uns par minute.	Yair et al. (2003)
Campagne sol ILAN ( <i>Imaging of Lightning And Nocturnal Flashes</i> , Israël)	Observations conduites depuis 2004	Estimation des luminances des TLEs à partir d'observations dans le visible.	Yaniv et al. (2014)
ISUAL ( <i>Imager of Sprites and Upper Atmospheric Lightings</i> ), à bord du satellite taiwanais Formosat -2	Lancement en 2004	Estimation des champs électriques réduits (243 - 443 Td) et de l'énergie des électrons (6.2 - 9.2 eV) à partir de données spectrophotométriques.  Estimation des champs électriques réduits de 98 - 398 Td +/- 50 Td dans la région des <i>streamers</i> .	Kuo et al. (2005)  Adachi et al. (2008)
Campagne sol depuis le <i>Southern Space Observatory</i> (SSO, Brésil)	22 - 23 février 2006	Première campagne à se focaliser sur la détection de TLEs en Amérique du Sud : Brésil, Argentine et Uruguay. 400 TLEs détectés au-dessus de l'Argentine au cours d'un seul orage.	Thomas et al. (2007)

Campagne sol à Sopron (Hongrie)	2007 - 2009	Enregistrement de 489 <i>sprites</i> . Distinction de différentes formes caractéristiques. 90 % des <i>sprites</i> enregistrés ont eu lieu en groupes.	Bór et al. (2016)
SPRITE-SAT, micro-satellite de l'Université de Tohoku (Japon).	Lancement en 2009	Deux caméras CMOS et une caméra CCD pour l'observation des <i>sprites</i> .	Takahashi et al. (2010)
Satellite Universitetsky-Tatiana-2 de l'Université d'état de Moscou (Russie).	Lancement en 2009	Détection de phénomènes lumineux d'une durée de 1 – 128 ms.	Garipov et al. (2013)
JEM-GLIMS ( <i>Global Lightning and sprlte MeasurementS on JEM-EF</i> ), depuis l'ISS	20 novembre 2012 – 30 juin 2013	Enregistrement de 1597 éclairs et TLEs.	Sato et al. (2013)
Campagne sol de la <i>South African National Space Agency</i> (SANSA)	Été austral 2015 et 2016	Premières observations de <i>sprites</i> au-dessus du Sud de l'Afrique avec une caméra de télévision.	Nnadih et al. (2016)
<i>GRAnada Sprite Spectrograph and Polarimeter</i> (GRASSP), segment sol de la mission ASIM (Andalousie, Espagne)	2017	0.235 nm de résolution spectrale, entre 700 et 80 nm. Utilisation pour la détection systématique des TLEs au-dessus de la Méditerranée.	Passas et al. (2016)
ASIM ( <i>Atmospheric-Space Interactions Monitor</i> )	Lancée le 2 avril 2018	Composée d'un jeu de 4 caméras à bande étroite dans le visible et 4 photomètres en visée au limbe, ainsi qu'un capteur de rayons X, 2 caméras, et 2 photomètres en visée au nadir.	Neubert et al. (2006)

## 7.2. Table des réactions

### 7.2.1. Interactions électrons – espèces atmosphériques

	Réaction	Constante de vitesse	Référence
1	$\text{Ar} + e \rightarrow \text{Ar}^{++} + e + e$	EEDF <sup>41</sup>	<a href="http://jilawww.colorado.edu/avp/collision_data/">http://jilawww.colorado.edu/avp/collision_data/</a>
2	$\text{Ar} + e \rightarrow \text{Ar}(3P2) + e$	EEDF	<a href="http://jilawww.colorado.edu/avp/collision_data/">http://jilawww.colorado.edu/avp/collision_data/</a>
3	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v1) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
4	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v2) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
5	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v3) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
6	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v4) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
7	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v5) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
8	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v6) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
9	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v7) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
10	$\text{N}_2 + e \leftrightarrow \text{N}_2(v8) + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
11	$\text{N}_2(v1) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v2) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
12	$\text{N}_2(v2) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v3) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
13	$\text{N}_2(v3) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v4) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
14	$\text{N}_2(v4) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v5) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
15	$\text{N}_2(v5) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v6) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
16	$\text{N}_2(v6) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v7) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
17	$\text{N}_2(v7) + e \leftrightarrow \text{N}_2(v8) + e$	EEDF	Laporta et al. (2014), <a href="http://Phys4entry">Phys4entry</a> database
18	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
19	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2(\text{a}1\text{Pi}) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
20	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
21	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2(\text{B}3\text{Pi}) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
22	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2(\text{C}3\text{Pi}) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
23	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2^{++} + e + e$	$10^{(-8.3-365/Td^{42})}$	Kossyi et al. (1992)
24	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N}_2(\text{B}2\text{S})^{++} + e + e$	EEDF	Phelps database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
25	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N} + \text{N} + e$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
26	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N} + \text{N}(2\text{D}) + e$	EEDF	Zipf et al. (1980)
27	$\text{N}_2 + e \rightarrow \text{N} + \text{N}(2\text{P}) + e$	EEDF	Zipf et al. (1980)
28	$\text{O}_2 + e \rightarrow \text{O}_2^{++} + e + e$	$10^{(-8.8-281/Td)}$	Kossyi et al. (1992)
29	$\text{O}_2 + e \rightarrow \text{O}_2(\text{a}1\text{D}) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>

<sup>41</sup> Les processus pour lesquels il est indiqué « EEDF » sont ceux dont les constantes de vitesse sont déterminées à partir de distributions d'énergie des électrons. La référence fournie est celle de la section efficace utilisée.

<sup>42</sup> Le champ électrique réduit, en Townsend.

30	$O_2 + e \rightarrow O_2(b1S) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
31	$O_2 + e \rightarrow O + O + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
32	$O_2 + e \rightarrow O^- + O$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
33	$O_3 + e \rightarrow O^- + O_2$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
34	$O_3 + e \rightarrow O_2^- + O$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
35	$O + e \rightarrow O^{++} + e + e$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
36	$O + e \rightarrow O(1D) + e$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
37	$O + e \rightarrow O(1S) + e$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
38	$N_2O + e \rightarrow N_2 + O^-$	EEDF	Hayashi database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
39	$N_2O + e \rightarrow N_2O^{++} + e + e$	EEDF	Hayashi database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
40	$NO + e \rightarrow N + O^-$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
41	$NO + e \rightarrow NO^{++} + e + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
42	$NO + e \rightarrow NO(A_2S) + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
43	$H_2O + e \rightarrow H + OH + e$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
44	$H_2O + e \rightarrow O(1D) + H_2 + e$	EEDF	Morgan database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
45	$H_2O + e \rightarrow H_2O^{++} + e + e$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
46	$H_2O + e \rightarrow OH^- + H$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
47	$H_2O + e \rightarrow H^- + OH$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
48	$H_2O + e \rightarrow H_2 + O^-$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
49	$CO_2 + e \leftrightarrow CO_2(010) + e$	EEDF	Lowke et al. (1973)
50	$CO_2 + e \leftrightarrow CO_2(100) + e$	EEDF	Lowke et al. (1973)
51	$CO_2 + e \leftrightarrow CO_2(001) + e$	EEDF	Lowke et al. (1973)
52	$CO_2 + e \rightarrow CO + O^-$	EEDF	Itikawa database, <a href="http://www.lxcat.net">www.lxcat.net</a>
53	$e + NO_2 \rightarrow NO_2^{++} + e + e$	$2.6E-9 * (Te^{0.5}) * \exp(-10.0 / Te^{43})$	Castillo et al. (2005)
54	$e + NO \rightarrow O^{++} + N + e + e$	$2.9E-9 * (Te^{0.5}) * \exp(-21.0 / Te)$	Castillo et al. (2005)
55	$e + NO_2 \rightarrow NO^{++} + O + e + e$	$8.1E-9 * (Te^{0.5}) * \exp(-12.9 / Te)$	Castillo et al. (2005)
56	$e + O_2 \rightarrow O^{++} + O + e + e$	$4.2E-9 * (Te^{0.5}) * \exp(-23.0 / Te)$	Castillo et al. (2005)
57	$e + O_3 \rightarrow O_2 + O + e$	1.0E-8	Gudmundsson et al. (2001)
58	$e + NO \rightarrow N + O + e$	$7.4E-9 * \exp(-6.5 / Te)$	Castillo et al. (2005)
59	$e + O_2 \rightarrow O + O(1D) + e$	$4.0E-9 * \exp(-8.4 / Te)$	Castillo et al. (2005)
60	$e + NO_2 \rightarrow NO + O + e$	$5.6E-9 * \exp(-3.11 / Te)$	Castillo et al. (2005)
61	$e + N_2O \rightarrow N_2 + O + e$	$1.4E-9 * \exp(-1.67 / Te)$	Castillo et al. (2005)
62	$e + N_2O \rightarrow N_2 + O(1D) + e$	$1.2E-9 * \exp(-3.64 / Te)$	Castillo et al. (2005)
63	$e + N_2O \rightarrow NO + N + e$	$1.0E-9 * \exp(-4.93 / Te)$	Castillo et al. (2005)
64	$e + O_2 + O_2 \rightarrow O_2^- + O_2$	1.4E-29	Kossyi et al. (1992)
65	$e + O_2 + N_2 \rightarrow O_2^- + N_2$	1.1E-31	Kossyi et al. (1992)
66	$e + O + O_2 \rightarrow O^- + O_2$	1.0E-31	Capitelli et al. (2000)
67	$e + O + N_2 \rightarrow O^- + N_2$	1.0E-31	Capitelli et al. (2000)

<sup>43</sup> La « température » électronique, en eV.

68	$e + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O}^- + \text{NO}$	3.0E-11	Kossyi et al. (1992)
69	$e + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_2^-$	1.0E-11	Kossyi et al. (1992)
70	$e + \text{O}_3 + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3^- + \text{O}_2$	1.0E-31	Capitelli et al. (2000)
71	$e + \text{NO} + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO}^- + \text{N}_2$	1.0E-30	Kossyi et al. (1992)
72	$e + \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^- + \text{H}_2\text{O}$	1.4E-29	Capitelli et al. (2000)
73	$e + \text{N}_2^+ \rightarrow \text{N} + \text{N}$	4.50E-8 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
74	$e + \text{N}_2^+ \rightarrow \text{N} + \text{N}(2\text{D})$	3.21E-8 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
75	$e + \text{N}_2^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}_2$	2.49E-29 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
76	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{O}$	2.97E-9 * (Te <sup>-0.7</sup> )	Peveall et al. (2001)
77	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{O}(1\text{D})$	8.67E-9 * (Te <sup>-0.7</sup> )	Peveall et al. (2001)
78	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O}(1\text{D}) + \text{O}(1\text{D})$	6.87E-9 * (Te <sup>-0.7</sup> )	Peveall et al. (2001)
79	$e + \text{NO}^+ \rightarrow \text{N} + \text{O}$	1.66E-9 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
80	$e + \text{NO}^+ \rightarrow \text{N}(2\text{D}) + \text{O}$	7.76E-9 * (Te <sup>-1.0</sup> )	Kossyi et al. (1992)
81	$e + \text{NO}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$	2.49E-29 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
82	$e + \text{NO}^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{N}_2$	2.49E-29 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
83	$e + \text{O}_2^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2$	2.49E-29 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
84	$e + \text{N}_4^+ \rightarrow \text{N}_2 + \text{N} + \text{N}$	3.13E-7 * (Te <sup>-0.41</sup> )	Whitaker et al. (1981)
85	$e + \text{N}_4^+ \rightarrow \text{N}_2 + \text{N}_2$	3.21E-7 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
86	$e + \text{O}_4^+ \rightarrow \text{O}_2 + \text{O} + \text{O}$	2.30E-6	Kruger et Olander (1976)
87	$e + \text{O}_4^+ \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2$	2.25E-7 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
88	$e + \text{O}^+ + e \rightarrow \text{O} + e$	7.18E-25 * (Te <sup>-4.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
89	$e + \text{O}^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{O} + \text{N}_2$	2.49E-29 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
90	$e + \text{O}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2$	2.49E-29 * (Te <sup>-1.5</sup> )	Kossyi et al. (1992)
91	$e + \text{N}_2\text{O}^+ \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}$	3.22E-8 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Castillo et al. (2005)
92	$e + \text{NO}_2^+ \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	3.22E-8 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Castillo et al. (2005)
93	$e + \text{N}_2\text{O}_2^+ \rightarrow \text{NO} + \text{NO}$	3.61E-6 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Starikovskaia et al. (2001)
94	$e + \text{N}_2\text{O}_2^+ \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}_2$	3.61E-6 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Starikovskaia et al. (2001)
95	$e + \text{N}_3^+ \rightarrow \text{N}_2 + \text{N}$	5.56E-7 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Starikovskaia et al. (2001)
96	$e + \text{N}_3^+ \rightarrow \text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{N}$	6.91E-8 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Starikovskaia et al. (2001)
97	$e + \text{N}_3^+ \rightarrow \text{N}_2(\text{B}3\text{pi}) + \text{N}$	6.91E-8 * (Te <sup>-0.5</sup> )	Starikovskaia et al. (2001)

## 7.2.2. Processus vibrationnels

98	$\text{N}_2(\text{v}1) + \text{N}_2(\text{v}1) \leftrightarrow \text{N}_2(\text{v}2) + \text{N}_2$	3.00E-14	Cacciatore et al. (2005)
99	$\text{N}_2(\text{v}1) + \text{N}_2(\text{v}2) \leftrightarrow \text{N}_2(\text{v}3) + \text{N}_2$	4.00E-14	Cacciatore et al. (2005)
100	$\text{N}_2(\text{v}1) + \text{N}_2(\text{v}3) \leftrightarrow \text{N}_2(\text{v}4) + \text{N}_2$	5.00E-14	Cacciatore et al. (2005)
101	$\text{N}_2(\text{v}1) + \text{N}_2(\text{v}4) \leftrightarrow \text{N}_2(\text{v}5) + \text{N}_2$	5.60E-14	Cacciatore et al. (2005)

102	$N_2(v_1) + N_2(v_5) \leftrightarrow N_2(v_6) + N_2$	6.00E-14	Cacciatore et al. (2005)
103	$N_2(v_1) + N_2(v_6) \leftrightarrow N_2(v_7) + N_2$	5.60E-14	Cacciatore et al. (2005)
104	$N_2(v_1) + N_2(v_7) \leftrightarrow N_2(v_8) + N_2$	5.00E-14	Cacciatore et al. (2005)
105	$N_2(v_1) + N_2 \leftrightarrow N_2 + N_2$	3.50E-21	Kurnosov et al. (2007)
106	$N_2(v_2) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_1) + N_2$	6.50E-21	Kurnosov et al. (2007)
107	$N_2(v_3) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_2) + N_2$	1.50E-20	Kurnosov et al. (2007)
108	$N_2(v_4) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_3) + N_2$	2.50E-20	Kurnosov et al. (2007)
109	$N_2(v_5) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_4) + N_2$	3.50E-20	Kurnosov et al. (2007)
110	$N_2(v_6) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_5) + N_2$	7.00E-20	Kurnosov et al. (2007)
111	$N_2(v_7) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_6) + N_2$	1.00E-19	Kurnosov et al. (2007)
112	$N_2(v_8) + N_2 \leftrightarrow N_2(v_7) + N_2$	1.00E-19	Kurnosov et al. (2007)
113	$N_2(v_1) + O \leftrightarrow N_2 + O$	$3.2E-15*(Tg^{44}/300)^{(2.5)}$	Capitelli et al. (2000)
114	$N_2(v_2) + O \leftrightarrow N_2(v_1) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
115	$N_2(v_3) + O \leftrightarrow N_2(v_2) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
116	$N_2(v_4) + O \leftrightarrow N_2(v_3) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
117	$N_2(v_5) + O \leftrightarrow N_2(v_4) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
118	$N_2(v_6) + O \leftrightarrow N_2(v_5) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
119	$N_2(v_7) + O \leftrightarrow N_2(v_6) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
120	$N_2(v_8) + O \leftrightarrow N_2(v_7) + O$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
121	$N_2(v_1) + N \leftrightarrow N_2 + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
122	$N_2(v_2) + N \leftrightarrow N_2(v_1) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
123	$N_2(v_3) + N \leftrightarrow N_2(v_2) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
124	$N_2(v_4) + N \leftrightarrow N_2(v_3) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
125	$N_2(v_5) + N \leftrightarrow N_2(v_4) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
126	$N_2(v_6) + N \leftrightarrow N_2(v_5) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
127	$N_2(v_7) + N \leftrightarrow N_2(v_6) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
128	$N_2(v_8) + N \leftrightarrow N_2(v_7) + N$	$2.3E-13*\exp(-1280/Tg)+2.7E-11*\exp(-10840/Tg)$	Capitelli et al. (2000)
129	$N_2(v_1) + CO_2 \leftrightarrow N_2 + CO_2$	$1.1E-12*Tg*\exp((-218/(Tg^{1/3}))) + (690/Tg)* (1-\exp(-3375.19/Tg))^{(-1)}$	Capitelli et al. (2000)
130	$CO_2(001) + CO_2 \leftrightarrow CO_2(100) + CO_2$	$0.18*7.3E-14*\exp((-850.3/Tg)+(86523/Tg^2))$	Lepoutre et al. (1977)
131	$CO_2(001) + N_2 \leftrightarrow CO_2(100) + N_2$	$0.1*(2.2E-15+1.14E-10*\exp(-76.75/(Tg^{1/3})))$	López-Valverde (1991)
132	$CO_2(001) + O \leftrightarrow CO_2(100) + O$	$0.1*2.0E-13*(Tg/300)^{0.5}$	Buchwald et Wolga (1975)
133	$CO_2(010) + CO_2 \leftrightarrow CO_2 + CO_2$	$4.2E-12*\exp((-2988/Tg)+(303930/(Tg^2)))$	López-Valverde (1991)
134	$CO_2(100) + CO_2 \leftrightarrow CO_2(010) + CO_2$	$2.5*4.2E-12*\exp((-2988/Tg)+(303930/(Tg^2)))$	López-Valverde (1991)
135	$CO_2(010) + N_2 \leftrightarrow CO_2 + N_2$	$1.0*2.1E-12*\exp((-2659/Tg)+(223052/(Tg^2)))$	López-Valverde (1991)
136	$CO_2(100) + N_2 \leftrightarrow CO_2(010) + N_2$	$2.5*2.1E-12*\exp((-2659/Tg)+(223052/(Tg^2)))$	López-Valverde (1991)
137	$CO_2(010) + CO \leftrightarrow CO_2 + CO$	$1.0*2.1E-12*\exp((-2659/Tg)+(223052/(Tg^2)))$	López-Valverde (1991)
138	$CO_2(100) + CO \leftrightarrow CO_2(010) + CO$	$2.5*2.1E-12*\exp((-2659/Tg)+(223052/(Tg^2)))$	López-Valverde (1991)
139	$CO_2(010) + O \leftrightarrow CO_2 + O$	1.0*3.0E-12	López-Valverde (1991)

<sup>44</sup> La température cinétique du gaz.

140	$\text{CO}_2(100) + \text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2(010) + \text{O}$	$2.0 \times 3.0 \text{E-}12$	López-Valverde (1991)
141	$\text{CO}_2(001) + \text{O}_2 \leftrightarrow \text{CO}_2(100) + \text{O}_2$	$1.0 \times 2.3 \text{E-}15 \times \exp((1.54 \text{E-}10/\text{Tg}) + (76.75/(\text{Tg}^2)))$	López-Puertas et al. (1986)
142	$\text{CO}_2(100) + \text{CO}_2 \leftrightarrow \text{CO}_2(010) + \text{CO}_2(010)$	$2.5 \text{E-}11$	Orr et Smith (1987)
143	$\text{CO}_2(001) + \text{CO}_2 \leftrightarrow \text{CO}_2(100) + \text{CO}_2(010)$	$1.0 \times (3.6 \text{E-}13 - 1660 \times \exp(-176948/(\text{Tg}^{1/3})))$	Lepoutre et al. (1977)
144	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v1) \leftrightarrow \text{N}_2 + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
145	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v2) \leftrightarrow \text{N}_2(v1) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
146	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v3) \leftrightarrow \text{N}_2(v2) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
147	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v4) \leftrightarrow \text{N}_2(v3) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
148	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v5) \leftrightarrow \text{N}_2(v4) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
149	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v6) \leftrightarrow \text{N}_2(v5) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
150	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v7) \leftrightarrow \text{N}_2(v6) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)
151	$\text{CO}_2 + \text{N}_2(v8) \leftrightarrow \text{N}_2(v7) + \text{CO}_2(001)$	$3.96 \text{E-}13$	Moore et al. (1967)

### 7.2.3. Chimie des espèces neutres

152	$\text{N} + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	$1.00 \text{E-}11 \times \exp(-3473 / \text{Tg})$	Kossyi et al. (1992)
153	$\text{N} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O} + \text{N}_2$	$9.10 \text{E-}13$	Capitelli et al. (2000)
154	$\text{N} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O} + \text{N}_2\text{O}$	$3.00 \text{E-}12$	Capitelli et al. (2000)
155	$\text{N} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{N}_2$	$7.00 \text{E-}13$	Capitelli et al. (2000)
156	$\text{N} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{NO}$	$2.30 \text{E-}12$	Capitelli et al. (2000)
157	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5 + \text{O}_2$	$5.90 \text{E-}29 \times (\text{Tg} / 300)^{-1.27}$	Starikovskaia et al. (2001)
158	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5 + \text{N}_2$	$5.90 \text{E-}29 \times (\text{Tg} / 300)^{-1.27}$	Starikovskaia et al. (2001)
159	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5 + \text{NO}$	$5.90 \text{E-}29 \times (\text{Tg} / 300)^{-1.27}$	Starikovskaia et al. (2001)
160	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{N}_2\text{O}_5 \rightarrow 2\text{N}_2\text{O}_5$	$5.90 \text{E-}29 \times (\text{Tg} / 300)^{-1.27}$	Starikovskaia et al. (2001)
161	$\text{N}_2\text{O}_5 + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{N}_2$	$2.10 \text{E-}11 \times (\text{Tg} / 300)^{-4.4} \times \exp(-11080 / \text{Tg})$	Capitelli et al. (2000)
162	$\text{N}_2\text{O}_5 + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{O}_2$	$2.10 \text{E-}11 \times (\text{Tg} / 300)^{-4.4} \times \exp(-11080 / \text{Tg})$	Capitelli et al. (2000)
163	$\text{N}_2\text{O}_5 + \text{AR} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{AR}$	$2.10 \text{E-}11 \times (\text{Tg} / 300)^{-4.4} \times \exp(-11080 / \text{Tg})$	Capitelli et al. (2000)
164	$\text{N}_2\text{O}_5 + \text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 3\text{O}_2$	$3.00 \text{E-}16 \times (\text{Tg} / 300)^{0.5}$	Kossyi et al. (1992)
165	$\text{NO}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{O}_2$	$1.20 \text{E-}13 \times (\text{Tg} / 300)^{0.0} \times \exp(-2450 / \text{Tg})$	Capitelli et al. (2000)
166	$\text{O} + \text{NO}_2 + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{N}_2$	$8.90 \text{E-}32 \times (\text{Tg} / 300)^{-2.0}$	Capitelli et al. (2000)
167	$\text{O} + \text{NO}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{O}_2$	$8.90 \text{E-}32 \times (\text{Tg} / 300)^{-2.0}$	Capitelli et al. (2000)
168	$\text{O} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	$1.10 \text{E-}11$	Kossyi et al. (1992)
169	$\text{NO} + \text{NO}_3 \rightarrow 2\text{NO}_2$	$1.11 \text{E-}11$	Capitelli et al. (2000)
170	$\text{O} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}$	$9.09 \text{E-}12 \times (\text{Tg} / 300)^{0.18}$	Kossyi et al. (1992)
171	$\text{N} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$	$2.00 \text{E-}16$	Kossyi et al. (1992)
172	$\text{O} + \text{NO} + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{N}_2$	$1.20 \text{E-}31 \times (\text{Tg} / 300)^{-1.682}$	Capitelli et al. (2000)
173	$\text{O} + \text{NO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	$9.30 \text{E-}32 \times (\text{Tg} / 300)^{-1.682}$	Capitelli et al. (2000)

174	$O + NO \rightarrow NO_2$	$3.02E-11 * (Tg / 300)^{-0.75}$	<a href="#">NIST database</a>
175	$O + NO \rightarrow O_2 + N$	$8.93E-13 * (Tg / 300)^{1.0} * \exp(-19494.5 / Tg)$	<a href="#">NIST database</a>
176	$N + NO \rightarrow N_2 + O$	$3.51E-11 * \exp(-49.84 / Tg)$	<a href="#">NIST database</a>
177	$O_3 + NO \rightarrow O_2 + NO_2$	$4.30E-12 * \exp(-1560 / Tg)$	Kossyi et al. (1992)
178	$N + N + N_2 \rightarrow N_2 + N_2$	$8.27E-34 * \exp(500 / Tg)$	Kossyi et al. (1992)
179	$N + N + N \rightarrow N_2 + N$	$3.31E-27 * (Tg / 300)^{-1.5}$	Starikovskaia et al. (2001)
180	$O + O + N_2 \rightarrow O_2 + N_2$	$6.49E-35 * \exp(1039 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
181	$O + O + N \rightarrow O_2 + N$	$3.20E-33 * (Tg / 300)^{-0.41}$	Capitelli et al. (2000)
182	$O + O_2 + O_2 \rightarrow O_3 + O_2$	$7.60E-34 * (Tg / 300)^{-1.9}$	Capitelli et al. (2000)
183	$O + O_2 + N_2 \rightarrow O_3 + N_2$	$5.80E-34 * (Tg / 300)^{-2.8}$	Capitelli et al. (2000)
184	$O + O_2 + O_3 \rightarrow 2O_3$	$1.50E-34 * \exp(750 / Tg)$	Starikovskaia et al. (2001)
185	$O + O_2 + O \rightarrow O_3 + O$	$2.15E-34 * \exp(345 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
186	$O + O_3 \rightarrow 2O_2$	$2.00E-11 * \exp(-2300 / Tg)$	Kossyi et al. (1992)
187	$N + O + N_2 \rightarrow NO + N_2$	$1.00E-32 * (Tg / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
188	$N + O + O_2 \rightarrow NO + O_2$	$1.00E-32 * (Tg / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
189	$NO_2 + N_2 \rightarrow NO + O + N_2$	$6.80E-06 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-36180 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
190	$NO_2 + O_2 \rightarrow NO + O + O_2$	$5.30E-06 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-36180 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
191	$NO_2 + NO \rightarrow 2NO + O$	$5.30E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-36180 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
192	$NO_2 + NO_2 \rightarrow NO + O + NO_2$	$4.00E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-36180 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
193	$NO_2 + AR \rightarrow NO + O + AR$	$4.00E-06 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-36180 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
194	$NO_3 + N_2 \rightarrow NO_2 + O + N_2$	$3.10E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
195	$NO_3 + O_2 \rightarrow NO_2 + O + O_2$	$3.10E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
196	$NO_3 + NO \rightarrow NO_2 + O + NO$	$3.10E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
197	$NO_3 + N \rightarrow NO_2 + O + N$	$3.10E-04 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
198	$NO_3 + O \rightarrow NO_2 + O + O$	$.10E-04 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
199	$NO_3 + AR \rightarrow NO_2 + O + AR$	$3.72E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
200	$NO_3 + N_2 \rightarrow NO + O_2 + N_2$	$6.20E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
201	$NO_3 + O_2 \rightarrow NO + O_2 + O_2$	$6.20E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
202	$NO_3 + NO \rightarrow NO + O_2 + NO$	$6.20E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
203	$NO_3 + N \rightarrow NO + O_2 + N$	$7.44E-04 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
204	$NO_3 + O \rightarrow NO + O_2 + O$	$7.44E-04 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
205	$NO_3 + AR \rightarrow NO + O_2 + AR$	$7.44E-05 * (Tg / 300)^{-2.0} * \exp(-25000 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
206	$CO_2 + O \rightarrow CO + O_2$	$2.81E-11 * \exp(-26474 / Tg)$	Capitelli et al. (2000)
207	$CO + O + N_2 \rightarrow CO_2 + N_2$	$1.70E-33 * \exp(-1510 / Tg)$	<a href="#">NIST database</a>
208	$CO + O_2 \rightarrow CO_2 + O$	$4.20E-12 * \exp(-24000 / Tg)$	<a href="#">NIST database</a>
209	$CO + NO_2 \rightarrow CO_2 + NO$	$1.48E-10 * \exp(-16967 / Tg)$	<a href="#">NIST database</a>

## 7.2.4. Chimie des états électroniques

210	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{N}_2 \rightarrow \text{AR} + 2\text{N}$	3.60E-11	Piper et al. (1973)
211	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{N}_2 \rightarrow \text{AR} + \text{N}_2(\text{C}3\text{P}_i)$	3.00E-11	Bourène et le Calvé (1973)
212	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{O}_2 \rightarrow \text{AR} + 2\text{O}$	2.10E-10	Piper et al. (1973)
213	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{CO}_2 \rightarrow \text{AR} + \text{CO} + \text{O}$	5.30E-10	Piper et al. (1973)
214	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{NO} \rightarrow \text{AR} + \text{N} + \text{O}$	2.20E-10	Piper et al. (1973)
215	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{AR} + \text{NO} + \text{N}$	4.40E-10	Piper et al. (1973)
216	$\text{AR}(3\text{P}_2) + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{AR} + \text{N}_2 + \text{O}$	4.40E-10	Piper et al. (1973)
217	$\text{N}(2\text{D}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	1.50E-12	Kossyi et al. (1992)
218	$\text{N}(2\text{D}) + \text{O} \rightarrow \text{N} + \text{O}(1\text{D})$	4.00E-13	Capitelli et al. (2000)
219	$\text{N}(2\text{D}) + \text{N}_2 \rightarrow \text{N} + \text{N}_2$	6.00E-15	Capitelli et al. (2000)
220	$\text{N}(2\text{D}) + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}$	1.80E-10	Capitelli et al. (2000)
221	$\text{N}(2\text{D}) + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{NO} + \text{N}_2$	3.50E-12	Capitelli et al. (2000)
222	$\text{N}(2\text{P}) + \text{N} \rightarrow \text{N}(2\text{D}) + \text{N}$	1.80E-12	Capitelli et al. (2000)
223	$\text{N}(2\text{P}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	2.60E-15	Capitelli et al. (2000)
224	$\text{N}(2\text{P}) + \text{N}_2 \rightarrow \text{N} + \text{N}_2$	2.00E-18	Capitelli et al. (2000)
225	$\text{N}(2\text{P}) + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}$	3.00E-11	Capitelli et al. (2000)
226	$\text{N}_2(\text{a}1\text{P}_i) + \text{N}_2(\text{a}1\text{P}_i) \rightarrow \text{N}_2 + \text{N}_2^+ + \text{e}$	2.00E-10	Starikovskaia et al. (2001)
227	$\text{N}_2(\text{a}1\text{P}_i) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + 2\text{O}$	2.80E-11	Kossyi et al. (1992)
228	$\text{N}_2(\text{a}1\text{P}_i) + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2 + \text{N}_2$	2.00E-13	Kossyi et al. (1992)
229	$\text{N}_2(\text{a}1\text{P}_i) + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{N} + \text{O}$	3.60E-10	Kossyi et al. (1992)
230	$\text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2(\text{B}3\text{P}_i) + \text{N}_2$	2.00E-13	Kossyi et al. (1992)
231	$\text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + 2\text{O}$	2.80E-11	Kossyi et al. (1992)
232	$\text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{N} + \text{O}$	3.60E-10	Kossyi et al. (1992)
233	$\text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + \text{N}_2(\text{A}3\text{S}) \rightarrow \text{N}_4^+ + \text{e}$	1.50E-11	Gordiets et al. (1995)
234	$\text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + \text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) \rightarrow \text{N}_4^+ + \text{e}$	1.00E-11	Gordiets et al. (1995)
235	$\text{N}_2(\text{C}3\text{P}_i) + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2(\text{a}p1\text{S}) + \text{N}_2$	1.00E-11	Kossyi et al. (1992)
236	$\text{N}_2(\text{C}3\text{P}_i) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + \text{O} + \text{O}(1\text{S})$	3.00E-10	Capitelli et al. (2000)
237	$\text{N}_2(\text{B}3\text{P}_i) + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{N}_2$	3.00E-11	Capitelli et al. (2000)
238	$\text{N}_2(\text{B}3\text{P}_i) + \text{N}_2 \rightarrow 2\text{N}_2$	2.00E-12	Capitelli et al. (2000)
239	$\text{N}_2(\text{B}3\text{P}_i) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + \text{O} + \text{O}$	3.00E-10	Capitelli et al. (2000)
240	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{N}_2 \rightarrow 2\text{N}_2$	3.00E-18	Kossyi et al. (1992)
241	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + 2\text{O}$	2.54E-12	Kossyi et al. (1992)
242	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O} + \text{O}$	7.80E-12	Kossyi et al. (1992)
243	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{O} \rightarrow \text{NO} + \text{N}(2\text{D})$	7.00E-12	Capitelli et al. (2000)
244	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{O} \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}(1\text{S})$	2.10E-11	Kossyi et al. (1992)
245	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{N} \rightarrow \text{N}_2 + \text{N}(2\text{P})$	5.00E-11	Capitelli et al. (2000)
246	$\text{N}_2(\text{A}3\text{S}) + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + \text{N} + \text{NO}$	1.00E-11	Kossyi et al. (1992)

247	$N_2(A3S) + N \rightarrow N_2 + N$	2.00E-11	Capitelli et al. (2000)
248	$N_2(A3S) + NO \rightarrow N_2 + NO$	7.00E-11	Kossyi et al. (1992)
249	$O(1D) + N_2 \rightarrow O + N_2$	$1.80E-11 * \exp(107 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
250	$O(1D) + O_2 \rightarrow O + O_2(b1S)$	$2.56E-11 * \exp(67 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
251	$O(1D) + O_2 \rightarrow O + O_2(a1D)$	1.00E-12	Capitelli et al. (2000)
252	$O(1D) + N_2O \rightarrow NO + NO$	7.20E-11	Kossyi et al. (1992)
253	$O(1D) + N_2O \rightarrow N_2O + O$	1.00E-12	Starikovskaia et al. (2001)
254	$O(1D) + N_2O \rightarrow N_2 + O_2$	4.90E-11	Castillo et al. (2005)
255	$O(1D) + NO_2 \rightarrow O_2 + NO$	3.00E-10	Castillo et al. (2005)
256	$O(1D) + NO \rightarrow O_2 + N$	1.70E-10	Kossyi et al. (1992)
257	$O(1D) + O_3 \rightarrow 2O + O_2$	1.20E-10	Kossyi et al. (1992)
258	$O(1D) + O_3 \rightarrow O + O_3$	2.41E-10	<a href="#">NIST database</a>
259	$O(1D) + O_3 \rightarrow 2O_2$	2.40E-10	Kossyi et al. (1992)
260	$O(1D) + CO_2 \rightarrow O + CO_2$	$7.40E-11 * \exp(120 / T_g)$	<a href="#">NIST database</a>
261	$O(1D) + CO \rightarrow CO_2$	7.30E-11	<a href="#">NIST database</a>
262	$O(1S) + NO \rightarrow O + NO$	2.90E-10	Capitelli et al. (2000)
263	$O(1S) + NO \rightarrow O(1D) + NO$	5.10E-10	Capitelli et al. (2000)
264	$O(1S) + O_2 \rightarrow O_2 + O$	$4.30E-12 * \exp(-850 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
265	$O(1S) + O_2(a1D) \rightarrow O_2 + O(1D)$	3.60E-11	Kossyi et al. (1992)
266	$O(1S) + O_2(a1D) \rightarrow 3O$	3.40E-11	Kossyi et al. (1992)
267	$O(1S) + O_2(a1D) \rightarrow O + O_2(b1S)$	1.30E-10	Kossyi et al. (1992)
268	$O(1S) + O \rightarrow O(1D) + O$	$5.00E-11 * \exp(-301 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
269	$O(1S) + O_3 \rightarrow O_2 + O + O(1D)$	2.90E-10	Kossyi et al. (1992)
270	$O(1S) + O_3 \rightarrow 2O_2$	2.90E-10	Kossyi et al. (1992)
271	$O(1S) + CO_2 \rightarrow O + CO_2$	3.09E-13	<a href="#">NIST database</a>
272	$O_2(a1D) + N \rightarrow O + NO$	$2.00E-14 * \exp(-600 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
273	$O_2(a1D) + O \rightarrow O + O_2$	7.00E-16	Kossyi et al. (1992)
274	$O_2(a1D) + O_2 \rightarrow O_2 + O_2$	$2.20E-18 * (T_g / 300)^{(0.8)}$	Kossyi et al. (1992)
275	$O_2(a1D) + N_2 \rightarrow O_2 + N_2$	1.40E-19	Atkinson et al. (1989)
276	$O_2(a1D) + NO \rightarrow O + NO_2$	4.88E-18	<a href="#">NIST database</a>
277	$O_2(a1D) + O_3 \rightarrow 2O_2 + O$	$5.20E-11 * \exp(-2841 / T_g)$	<a href="#">NIST database</a>
278	$O_2(a1D) + NO \rightarrow NO + O_2$	2.50E-11	Kossyi et al. (1992)
279	$O_2(b1S) + N_2 \rightarrow O_2(a1D) + N_2$	$4.90E-15 * \exp(-253 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
280	$O_2(b1S) + O_2 \rightarrow O_2(a1D) + O_2$	$3.73E-16 * (T_g / 300)^{(2.4)} * \exp(-241 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)
281	$O_2(b1S) + O \rightarrow O_2 + O$	8.00E-14	Kossyi et al. (1992)
282	$O_2(b1S) + O_3 \rightarrow 2O_2(a1D) + O$	1.80E-11	Kossyi et al. (1992)
283	$O_2(b1S) + NO \rightarrow O_2(a1D) + NO$	4.00E-14	Kossyi et al. (1992)
284	$N_2(A3S) + NO \rightarrow N_2 + NO(A2S)$	8.75E-11	Simek (2003)
285	$NO(A2S) + O_2 \rightarrow NO + O_2$	1.62E-10	Simek (2003)
286	$NO(A2S) + N_2 \rightarrow NO + N_2(A3S)$	5.00E-14	Thoman et al. (1992)

## 7.2.5. Recombinaison ion-ion

287	$N_2O_2^{++} + O_2^- \rightarrow NO + NO + O_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
288	$N_2O_2^{++} + O_2^- \rightarrow N_2 + O_2 + O_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
289	$N_2O_2^{++} + O^- \rightarrow NO + NO + O$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
290	$N_2O_2^{++} + O^- \rightarrow N_2 + O + O_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
291	$N_2O_2^{++} + O_3^- \rightarrow NO + NO + O_3$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
292	$N_2O_2^{++} + O_3^- \rightarrow N_2 + O_2 + O_3$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
293	$N_2O_2^{++} + NO^- \rightarrow NO + NO + NO$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
294	$N_2O_2^{++} + NO^- \rightarrow NO + N_2 + O_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
295	$N_2O_2^{++} + NO_2^- \rightarrow NO + NO + NO_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
296	$N_2O_2^{++} + NO_2^- \rightarrow NO_2 + N_2 + O_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
297	$N_2O_2^{++} + NO_3^- \rightarrow NO + NO + NO_3$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
298	$N_2O_2^{++} + NO_3^- \rightarrow NO_3 + N_2 + O_2$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
299	$N_3^{++} + O^- \rightarrow N + N_2 + O$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
300	$N_3^{++} + O_3^- \rightarrow N + N_2 + O_3$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
301	$N_3^{++} + NO^- \rightarrow N + N_2 + NO$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
302	$N_3^{++} + NO_3^- \rightarrow N + N_2 + NO_3$	1.00E-07	Starikovskaia et al. (2001)
303	$O^- + NO^{++} + O_2 \rightarrow NO_2 + O_2$	$2.00E-25 * (T_g / 300)^{-2.5}$	Capitelli et al. (2000)
304	$O^- + O_2^{++} \rightarrow O + O_2$	$2.00E-07 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
305	$O^- + O_2^{++} + O_2 \rightarrow O_3 + O_2$	$2.00E-25 * (T_g / 300)^{-2.5}$	Capitelli et al. (2000)
306	$O_2^- + O_2^{++} \rightarrow O_2 + O_2$	$2.00E-07 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
307	$O_2^- + NO^{++} \rightarrow O_2 + N + O$	1.00E-07	Capitelli et al. (2000)
308	$O_2^- + NO^{++} + O_2 \rightarrow 2O_2 + NO$	$2.00E-25 * (T_g / 300)^{-2.5}$	Capitelli et al. (2000)
309	$O_3^- + O^{++} \rightarrow O_3 + O$	$2.00E-07 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
310	$O_3^- + O_2^{++} \rightarrow O_3 + O_2$	$2.00E-07 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
311	$O_3^- + O_2^{++} \rightarrow 2O + O_3$	1.00E-07	Capitelli et al. (2000)
312	$O_3^- + NO^{++} \rightarrow O_3 + NO$	$2.00E-07 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
313	$NO_3^- + NO^{++} \rightarrow NO_3 + N + O$	1.00E-07	Capitelli et al. (2000)
314	$NO_3^- + O_2^{++} \rightarrow NO_3 + O + O$	1.00E-07	Capitelli et al. (2000)

## 7.2.6. Chimie des cations

315	$AR^{++} + N_2 \rightarrow AR + N_2^{++}$	1.10E-11	Lindinger et al. (1981)
-----	---	----------	-------------------------

316	$AR^{++} + O_2 \rightarrow AR + O_2^{++}$	4.60E-11	Midey et al. (2002)
317	$N_2^{++} + N_2 + N \rightarrow N_3^{++} + N_2$	$9.00E-30 * \exp(400 / T_g)$	Capitelli et al. (2000)
318	$N_2^{++} + O \rightarrow N_2 + O^{++}$	$1.00E-11 * (T_g / 300)^{-0.2}$	Kossyi et al. (1992)
319	$N_2^{++} + O \rightarrow NO^{++} + N$	$1.30E-10 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Kossyi et al. (1992)
320	$N_2^{++} + O_2 \rightarrow N_2 + O_2^{++}$	$6.00E-11 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Kossyi et al. (1992)
321	$N_2^{++} + O_3 \rightarrow O_2^{++} + O + N_2$	1.00E-10	Capitelli et al. (2000)
322	$N_2^{++} + N_2O \rightarrow N_2O^{++} + N_2$	5.00E-10	Capitelli et al. (2000)
323	$N_2^{++} + N_2O \rightarrow NO^{++} + N + N_2$	4.00E-10	Capitelli et al. (2000)
324	$N_2^{++} + NO \rightarrow NO^{++} + N_2$	3.30E-10	Kossyi et al. (1992)
325	$N_2^{++} + N_2 + N_2 \rightarrow N_4^{++} + N_2$	$5.20E-29 * (T_g / 300)^{-2.2}$	Capitelli et al. (2000)
326	$N_3^{++} + N_2(A_3S) \rightarrow N_3^{++} + N_2$	3.00E-10	Starikovskaia et al. (2001)
327	$N_3^{++} + O_2 \rightarrow O_2^{++} + N + N_2$	4.40E-11	Kossyi et al. (1992)
328	$N_3^{++} + O_2 \rightarrow NO_2^{++} + N_2$	6.60E-11	Kossyi et al. (1992)
329	$N_3^{++} + N \rightarrow N_2^{++} + N_2$	7.00E-11	Kossyi et al. (1992)
330	$N_3^{++} + NO \rightarrow NO^{++} + N + N_2$	2.30E-11	Kossyi et al. (1992)
331	$N_3^{++} + NO \rightarrow N_2 + N_2O^{++}$	7.00E-11	Starikovskaia et al. (2001)
332	$N_4^{++} + O_2 \rightarrow O_2^{++} + N_2 + N_2$	2.50E-10	Capitelli et al. (2000)
333	$N_4^{++} + O \rightarrow O^{++} + N_2 + N_2$	2.50E-10	Capitelli et al. (2000)
334	$O^{++} + N_2 \rightarrow NO^{++} + N$	3.00E-12	Kossyi et al. (1992)
335	$O^{++} + O_2 \rightarrow O_2^{++} + O$	$2.00E-11 * (T_g / 300)^{-0.5}$	Capitelli et al. (2000)
336	$O^{++} + O_3 \rightarrow O_2^{++} + O_2$	1.00E-10	Capitelli et al. (2000)
337	$O^{++} + NO \rightarrow NO^{++} + O$	2.40E-11	Capitelli et al. (2000)
338	$O^{++} + NO \rightarrow O_2^{++} + N$	3.00E-12	Capitelli et al. (2000)
339	$O^{++} + N_2O \rightarrow NO^{++} + NO$	2.30E-10	Capitelli et al. (2000)
340	$O^{++} + N_2O \rightarrow O_2^{++} + N_2$	2.00E-11	Capitelli et al. (2000)
341	$O^{++} + N_2O \rightarrow N_2O^{++} + O$	2.20E-11	Capitelli et al. (2000)
342	$O^{++} + NO_2 \rightarrow NO_2^{++} + O$	1.60E-09	Capitelli et al. (2000)
343	$O_2^{++} + N \rightarrow NO^{++} + O$	1.20E-10	Kossyi et al. (1992)
344	$O_2^{++} + N_2 \rightarrow NO^{++} + NO$	1.00E-17	Kossyi et al. (1992)
345	$O_2^{++} + NO_2 \rightarrow NO^{++} + O_3$	1.00E-11	Capitelli et al. (2000)
346	$O_2^{++} + NO_2 \rightarrow NO_2^{++} + O_2$	6.60E-10	Capitelli et al. (2000)
347	$O_2^{++} + NO \rightarrow O_2 + NO^{++}$	4.40E-10	Kossyi et al. (1992)
348	$O_2^{++} + O_2 + O_2 \rightarrow O_4^{++} + O_2$	$2.40E-30 * (T_g / 300)^{-3.2}$	Kossyi et al. (1992)
349	$O_2^{++} + N_2 + N_2 \rightarrow N_2O_2^{++} + N_2$	$9.00E-31 * (T_g / 300)^{-2.0}$	Kossyi et al. (1992)
350	$O_4^{++} + O_2(a_1D) \rightarrow O_2^{++} + O_2 + O_2$	1.00E-10	Kossyi et al. (1992)
351	$O_4^{++} + O_2(b_1S) \rightarrow O_2^{++} + O_2 + O_2$	1.00E-10	Kossyi et al. (1992)
352	$O_4^{++} + N_2 \rightarrow N_2O_2^{++} + O_2$	$4.60E-12 * (T_g / 300)^{2.5} * \exp(-2650 / T_g)$	Capitelli et al. (2000)
353	$O_4^{++} + NO \rightarrow NO^{++} + O_2 + O_2$	1.00E-10	Kossyi et al. (1992)
354	$O_4^{++} + O \rightarrow O_2^{++} + O_3$	3.00E-10	Kossyi et al. (1992)
355	$O_4^{++} + O_2 \rightarrow O_2^{++} + O_2 + O_2$	$3.30E-06 * (T_g / 300)^{-4.0} * \exp(-5030 / T_g)$	Kossyi et al. (1992)

356	$\text{NO}_2^+ + \text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{NO}_2$	2.90E-10	Capitelli et al. (2000)
357	$\text{N}_2\text{O}^+ + \text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N}_2\text{O}$	2.90E-10	Capitelli et al. (2000)
358	$\text{N}_2(\text{B}_2\text{S})^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + \text{N}_2$	7.5E-11	Piper et al. (1973)
359	$\text{N}_2(\text{B}_2\text{S})^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + \text{O}_2$	6.2E-10	Piper et al. (1973)

## 7.2.7. Chimie des anions

360	$\text{O}^- + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O} + \text{e}$	1.00E-12	Capitelli et al. (2000)
361	$\text{O}^- + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3 + \text{e}$	5.00E-15	Kossyi et al. (1992)
362	$\text{O}^- + \text{O} \rightarrow \text{O}_2 + \text{e}$	5.00E-10	Kossyi et al. (1992)
363	$\text{O}^- + \text{N} \rightarrow \text{NO} + \text{e}$	2.60E-10	Kossyi et al. (1992)
364	$\text{O}^- + \text{N}_2(\text{A}_3\text{S}) \rightarrow \text{O} + \text{N}_2 + \text{e}$	2.20E-09	Kossyi et al. (1992)
365	$\text{O}^- + \text{O}_2(\text{a}_1\text{D}) \rightarrow \text{O}_3 + \text{e}$	3.00E-10	Kossyi et al. (1992)
366	$\text{O}^- + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2 + \text{e}$	5.30E-10	Kossyi et al. (1992)
367	$\text{O}^- + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{e}$	2.60E-10	Kossyi et al. (1992)
368	$\text{O}^- + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{NO}^- + \text{NO}$	2.10E-10	Kossyi et al. (1992)
369	$\text{O}^- + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_2^- + \text{O}$	1.20E-09	Kossyi et al. (1992)
370	$\text{O}^- + \text{O}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3^- + \text{O}_2$	$1.10\text{E-}30 * (\text{Tg} / 300)^{-1}$	Kossyi et al. (1992)
371	$\text{O}^- + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_3^- + \text{O}$	5.30E-10	Kossyi et al. (1992)
372	$\text{O}^- + \text{O}_2(\text{a}_1\text{D}) \rightarrow \text{O}_2^- + \text{O}$	1.00E-10	Capitelli et al. (2000)
373	$\text{O}^- + \text{N}_2(\text{B}_3\text{Pi}) \rightarrow \text{O} + \text{N}_2 + \text{e}$	1.90E-09	Capitelli et al. (2000)
374	$\text{O}^- + \text{CO} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{e}$	$6.00\text{E-}10 * (\text{Tg} / 300)^{-0.32}$	Bortner et al. (1972)
375	$\text{O}^- + \text{CO}_2 + \text{AR} \rightarrow \text{CO}_3^- + \text{AR}$	$3.10\text{E-}28 * (\text{Tg} / 300)^{0.5}$	Brasseur et Solomon (1986)
376	$\text{O}^- + 2\text{CO}_2 \rightarrow \text{CO}_3^- + \text{CO}_2$	$3.10\text{E-}28 * (\text{Tg} / 300)^{0.5}$	Brasseur et Solomon (1986)
377	$\text{O}_2^- + \text{O} \rightarrow \text{O}^- + \text{O}_2$	3.30E-10	Kossyi et al. (1992)
378	$\text{O}_2^- + \text{O} \rightarrow \text{O}_3 + \text{e}$	1.50E-10	Kossyi et al. (1992)
379	$\text{O}_2^- + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2 + \text{e}$	$2.70\text{E-}18 * (\text{Tg} / 300)^{0.5} * \exp(-5590 / \text{Tg})$	Kossyi et al. (1992)
380	$\text{O}_2^- + \text{O}_2(\text{a}_1\text{D}) \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2 + \text{e}$	2.00E-10	Kossyi et al. (1992)
381	$\text{O}_2^- + \text{O}_2(\text{b}_1\text{S}) \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2 + \text{e}$	3.60E-10	Kossyi et al. (1992)
382	$\text{O}_2^- + \text{N}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{N}_2 + \text{e}$	$1.90\text{E-}12 * (\text{Tg} / 300)^{0.5} * \exp(-4490 / \text{Tg})$	Capitelli et al. (2000)
383	$\text{O}_2^- + \text{N} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{e}$	5.00E-10	Kossyi et al. (1992)
384	$\text{O}_2^- + \text{NO}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_2^-$	8.00E-10	Kossyi et al. (1992)
385	$\text{O}_2^- + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_3^-$	4.00E-10	Kossyi et al. (1992)
386	$\text{O}_2^- + \text{N}_2(\text{A}_3\text{S}) \rightarrow \text{O}_2 + \text{N}_2 + \text{e}$	2.10E-09	Capitelli et al. (2000)
387	$\text{O}_2^- + \text{N}_2(\text{B}_3\text{Pi}) \rightarrow \text{O}_2 + \text{N}_2 + \text{e}$	2.50E-09	Capitelli et al. (2000)
388	$\text{O}_3^- + \text{O} \rightarrow \text{O}_2^- + \text{O}_2$	2.50E-10	Kazil et al. (2003)
389	$\text{O}_3^- + \text{O} \rightarrow \text{O}_2 + \text{e}$	1.40E-10	Kossyi et al. (1992)
390	$\text{O}_3^- + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_3^- + \text{O}$	1.10E-11	Kossyi et al. (1992)

391	$O_3^- + NO_2 \rightarrow O_3 + NO_2^-$	7.00E-10	Kossyi et al. (1992)
392	$O_3^- + NO_2 \rightarrow NO_3^- + O_2$	2.00E-11	Kossyi et al. (1992)
393	$O_3^- + NO \rightarrow NO_2^- + O_2$	2.60E-11	Capitelli et al. (2000)
394	$O_3^- + O_3 \rightarrow 3O_2 + e$	1.00E-10	Kazil et al. (2003)
395	$O_3^- + CO_2 \rightarrow CO_3^- + O_2$	$5.50E-10 * (T_g / 300)^{(0.5)}$	Brasseur et Solomon (1986)
396	$NO^- + O_2 \rightarrow O_2^- + NO$	5.00E-10	Kossyi et al. (1992)
397	$NO^- + NO_2 \rightarrow NO_2^- + NO$	7.40E-16	Kossyi et al. (1992)
398	$NO^- + N_2O \rightarrow NO_2^- + N_2$	2.80E-14	Kossyi et al. (1992)
399	$NO^- + CO_2 \rightarrow NO + CO_2 + e$	8.30E-12	Albritton (1978)
400	$NO^- + CO \rightarrow NO + CO + e$	5.00E-13	Albritton (1978)
401	$NO^- + N_2O \rightarrow NO + N_2O + e$	5.10E-12	Albritton (1978)
402	$NO^- + NO \rightarrow 2NO + e$	5.00E-12	Albritton (1978)
403	$NO_2^- + O_3 \rightarrow O_2 + NO_3^-$	1.80E-11	Kossyi et al. (1992)
404	$NO_2^- + NO_2 \rightarrow NO_3^- + NO$	4.00E-12	Capitelli et al. (2000)
405	$NO_2^- + NO_3 \rightarrow NO_2 + NO_3^-$	5.00E-10	Capitelli et al. (2000)
406	$NO_3^- + NO \rightarrow NO_2^- + NO_2$	3.00E-15	Capitelli et al. (2000)
407	$CO_3^- + O \rightarrow O_2^- + CO_2$	$1.10E-10 * (T_g / 300)^{(0.5)}$	Brasseur et Solomon (1986)
408	$CO_3^- + NO \rightarrow NO_2^- + CO_2$	$1.10E-11 * (T_g / 300)^{(0.5)}$	Brasseur et Solomon (1986)
409	$CO_3^- + NO_2 \rightarrow NO_3^- + CO_2$	$2.00E-10 * (T_g / 300)^{(0.5)}$	Brasseur et Solomon (1986)
410	$CO_4^- + O \rightarrow CO_3^- + O_2$	$1.30E-10 * (T_g / 300)^{(0.5)}$	Brasseur et Solomon (1986)
411	$CO_4^- + O_3 \rightarrow O_3^- + CO_2 + O_2$	$1.40E-10 * (T_g / 300)^{(0.5)}$	Brasseur et Solomon (1986)
412	$CO_4^- + NO \rightarrow NO_3^- + CO_2$	4.80E-11	Bortner et al. (1972)

## 7.2.8. Processus radiatifs

Coefficients d'Einstein A			
413	$N_2(B_3Pi) \leftrightarrow N_2(A_3S) (+hv)$	1.34E5	Capitelli et al. (2000)
414	$N_2(C_3Pi) \leftrightarrow N_2(B_3Pi) (+hv)$	2.45E7	Capitelli et al. (2000)
415	$N_2(B_2S)^+ \leftrightarrow N_2^+ (+hv)$	1.58E7	Radzig et Smirnov (1985)
416	$NO(A_2S) \leftrightarrow NO (+hv)$	5E6	Radzig et Smirnov (1985)
417	$CO_2(001) \leftrightarrow CO_2(100) (+hv)$	0.2	Radzig et Smirnov (1985)
418	$CO_2(001) \leftrightarrow CO_2 (+hv)$	450	Radzig et Smirnov (1985)
419	$CO_2(100) \leftrightarrow CO_2(010) (+hv)$	2.08	Radzig et Smirnov (1985)
420	$CO_2(010) \leftrightarrow CO_2 (+hv)$	1.56	Radzig et Smirnov (1985)
421	$O(1D) \leftrightarrow O (+hv)$	5.1E-3	Radzig et Smirnov (1985)
422	$O(1S) \leftrightarrow O(1D) (+hv)$	1.34	Radzig et Smirnov (1985)
423	$N_2(a_1Pi) \leftrightarrow N_2(v_2) (+hv)$	8.55E3	Capitelli et al. (2000)

### 7.3. Sections efficaces utilisées pour le calcul des constantes de vitesse des interactions électrons – espèces atmosphériques

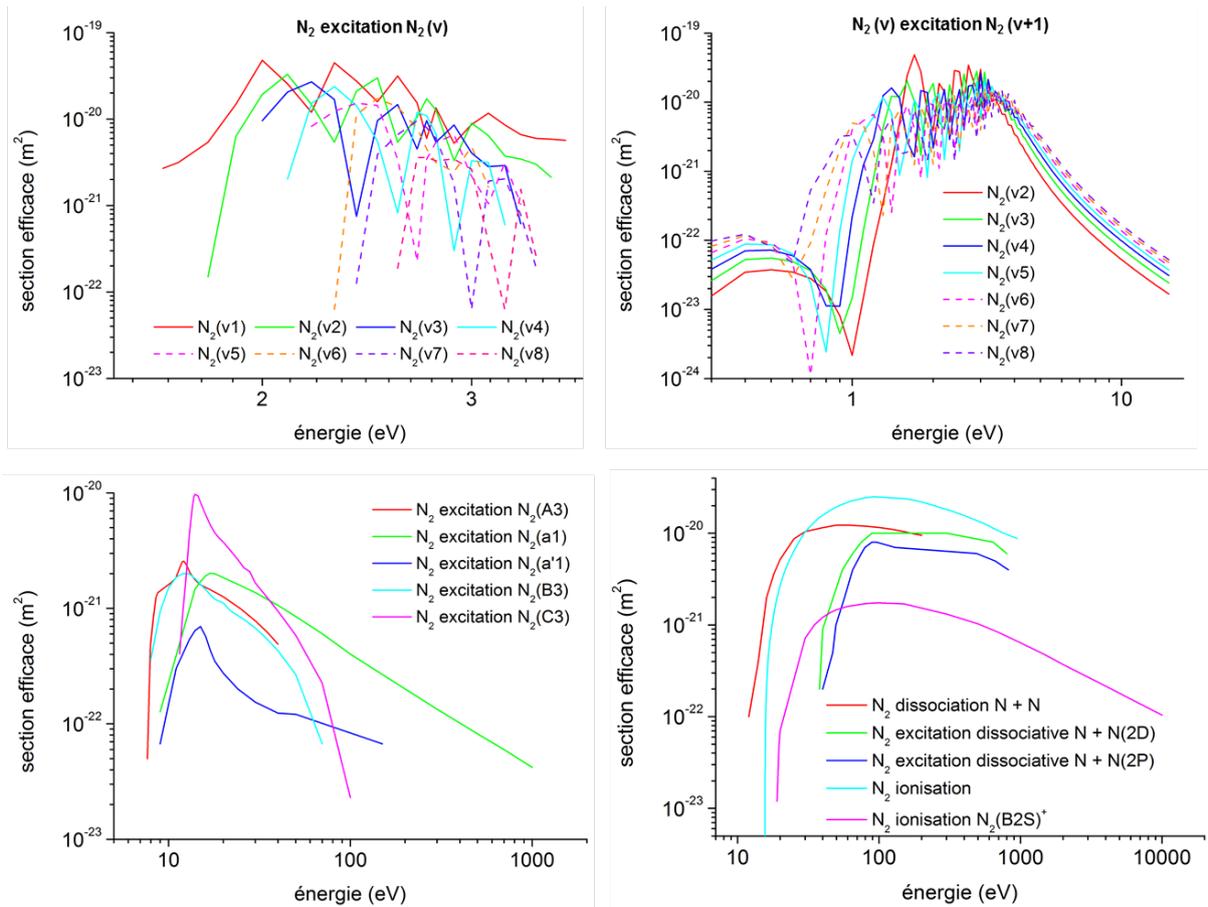


Figure 94 – Sections efficaces des différents processus associés au diazote. En a), les processus de type  $\text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2(v_i)$ , avec  $i = 1 \dots 8$ . En b), les processus de type  $\text{N}_2(v_i) \rightarrow \text{N}_2(v_{i+1})$ , avec  $i = 1 \dots 7$ . En c), les processus d'excitation électronique. En d), les processus de dissociation, d'excitation dissociative et d'ionisation.

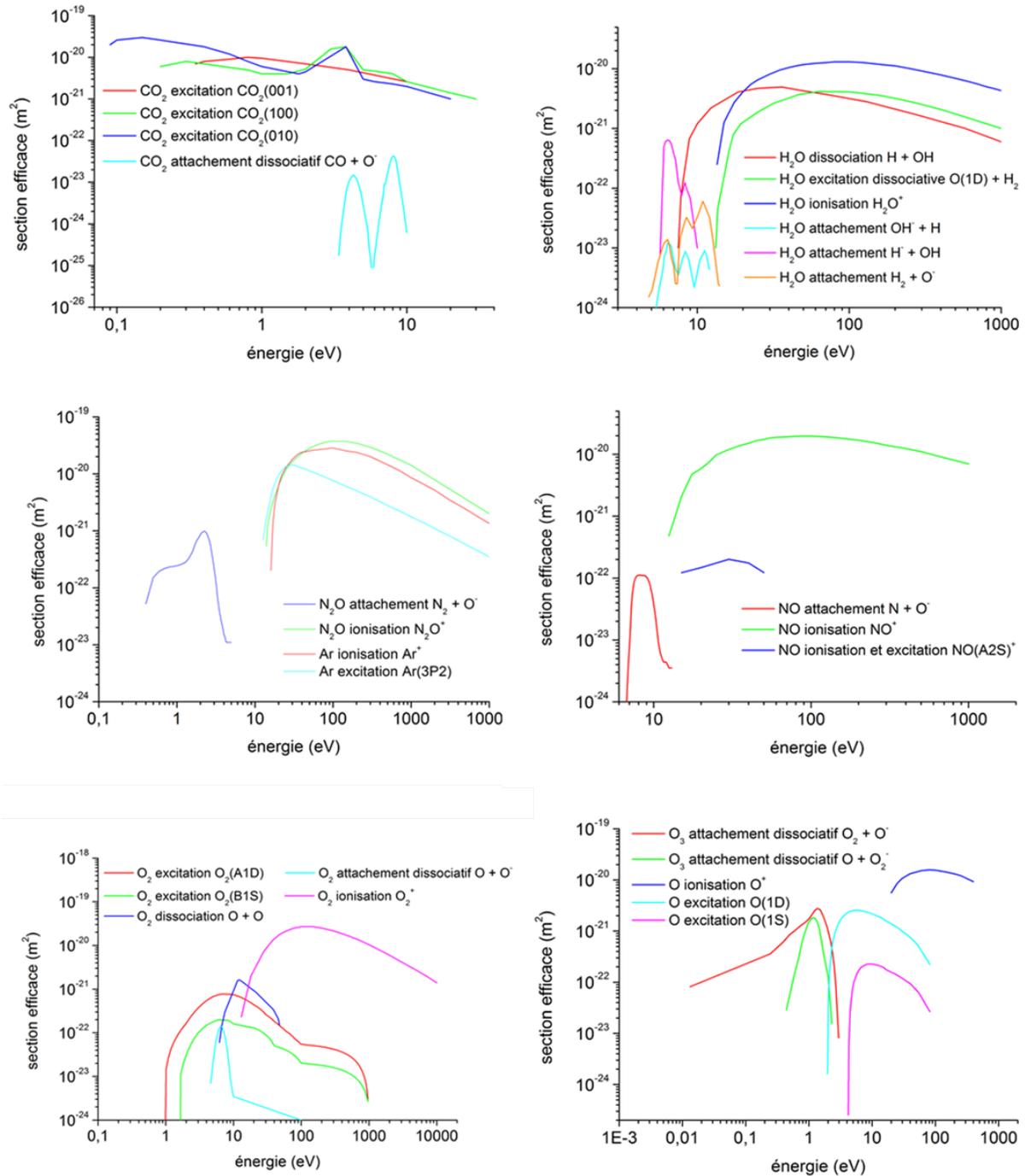


Figure 95 – Sections efficaces de tous les autres processus. En a), excitation et attachement dissociatif du CO<sub>2</sub>. En b), dissociation, excitation dissociative, ionisation et attachement de H<sub>2</sub>O. En c), attachement et ionisation de N<sub>2</sub>O, ionisation et excitation électronique de Ar. En d), attachement et ionisation/excitation de NO. En e), excitation électronique, dissociation, attachement dissociatif et ionisation de O<sub>2</sub>. En f), attachement dissociatif de O<sub>3</sub>, ionisation et excitation électronique de O.

## 8. Publications et communications

### Publications en 1er auteur

- **F. Romand**, A. Vialatte, L. Croizé, S. Payan, Mathieu Barthélémy, "CO<sub>2</sub> thermal infrared signature following a sprite event in the mesosphere ", *Journal of Geophysical Research: Space Physics* 2018, <https://doi.org/10.1029/2018JA025894>.
- **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, et N. Huret, "Simulation of the infrared signature of transient luminous events in the middle atmosphere for a limb line of sight", in *Light, Energy and the Environment*, OSA Technical Digest (online), *Optical Society of America* 2016, paper JW4A.30.

### Publication en co-auteur

- M. Barthélémy, V. Kalegaev, A. Vialatte, E. Le Coarer, E. Kerster, A. Basaev, G. Bourdarot, M. Prugniaux, T. Sequies, E. Rolland, E. Aubert, V. Grennarat, H. Ayasso, A. Busom Vidal, F. Apper, M. Stepanov, L. Croizé, **F. Romand**, S. Payan, et M. Panasyuk, "AMICal Sat and ATISE: two space missions for auroral monitoring", *Journal of Space Weather and Space Climate*, accepté.

### Communications en 1er auteur

- **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, et N. Huret, "Sensitivity study on the CO<sub>2</sub> thermal infrared signature following a sprite event in the mesosphere", *European Geoscience Union 2018 (EGU)*, Vienne, Autriche.
- **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, "Simulation of the vibrational chemistry and the infrared signature induced by a sprite streamer in the mesosphere", *American Geophysical Union (AGU) 2017*, La Nouvelle Orléans, USA.
- **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, et N. Huret, "Simulation of the chemistry induced by a sprite streamer in the mesosphere", *European Geoscience Union 2017 (EGU)*, Vienne, Autriche.
- **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, et N. Huret, "Simulation of the infrared signature of transient luminous events in the middle atmosphere for a limb line of sight", in *Light, Energy and the Environment*, *Optical Society of America (OSA) 2016*, Leipzig, Allemagne.
- **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, et N. Huret, "Simulation of the infrared signature of transient luminous events in the middle atmosphere for a limb line of sight", *European Geoscience Union (EGU) 2016*, Vienne, Autriche.

### Communication effectuée, second auteur

- G. Pihan, **F. Romand**, L. Croizé, S. Payan, M. Barthélémy, "Infrared signature of aurora from a stratospheric balloon", *European Geoscience Union (EGU) 2018*, Vienne, Autriche.



# 9. Liste des tableaux et figures

## 9.1. Liste des tableaux

Tableau 1 – Principaux niveaux électroniques à l’origine de rayonnement visible, UV, et proche infrarouge, lors de phénomènes lumineux transitoires. ....	53
Tableau 2 – Niveaux vibrationnels de diazote inclus dans la représentation de l’atmosphère de fond.....	53
Tableau 3 – Niveaux vibrationnels de dioxyde de carbone inclus dans la représentation de l’atmosphère de fond. ....	54
Tableau 4 – Principales transitions électroniques à l’origine de rayonnement visible, UV, et proche infrarouge, lors de phénomènes lumineux transitoires.....	55
Tableau 5 – Principales transitions vibrationnelles du dioxyde de carbone à l’origine de rayonnement infrarouge. ....	55
Tableau 6 – Les différents types de réactions dans un modèle cinétique de plasma atmosphérique. Les symboles (*) et (**) désignent des états excités.....	59
Tableau 7 – Liste des 64 espèces considérées dans le modèle cinétique. ....	60
Tableau 8 – Transitions radiatives des espèces incluses dans le modèle cinétique.....	76
Tableau 9 – Codes de transfert radiatif envisagés pour la simulation de la signature infrarouge de sprites. ....	80
Tableau 10 – Espèces chimiques incluses dans LBLRTM. ....	81
Tableau 11 – Principales réactions productrices d’électrons pendant la phase de pulse et constantes de vitesse associées. ....	90
Tableau 12 – Principales réactions productrices d’électrons pendant la phase de relaxation et constantes associées. « $T_g$ » correspond à la température cinétique du gaz à une altitude donnée. ....	90
Tableau 13 – Principales réactions consommatrices d’électrons pendant la phase de relaxation et constantes de vitesse associées. La constante de vitesse du processus 64 est faible, mais la forte concentration d’O <sub>2</sub> , second constituant atmosphérique le plus abondant, permet à ce processus de jouer un rôle important. « $T_e$ » correspond à la « température » électronique (en eV). ....	91
Tableau 14 – Processus d’émissions visibles, principaux et secondaires, dans les sprites. Les espèces N <sub>2</sub> <sup>+</sup> (X <sup>2</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> ), NO(X <sup>2</sup> Π), et N <sub>2</sub> (X <sup>1</sup> Σ <sub>g</sub> <sup>+</sup> ), correspondent aux états fondamentaux de N <sub>2</sub> <sup>+</sup> , NO, et N <sub>2</sub> . Le coefficient d’Einstein A correspond à l’émission spontanée (voir « 2.2.2.1 »).....	95
Tableau 15 – Processus à l’origine de la décroissance des concentrations de N <sub>2</sub> <sup>+</sup> pendant la phase de relaxation. « $T_g$ » correspond à la température cinétique du gaz à une altitude donnée. ....	96
Tableau 16 – Processus d’excitation des niveaux électroniques de N <sub>2</sub> et N <sub>2</sub> <sup>+</sup> à l’origine de rayonnement visible dans les sprites et constantes de vitesse associées. ....	98
Tableau 17 – Processus collisionnels à l’origine de la décroissance des niveaux électroniques. Ceux-ci sont de moindre importance par rapport à ceux d’émission spontanée. ....	98
Tableau 18 – Processus à l’origine de la production de l’espèce NO(A <sup>2</sup> Σ <sup>+</sup> ) et constantes de vitesse associées. .	100
Tableau 19 – Processus à l’origine de la décroissance des concentrations de NO(A <sup>2</sup> Σ <sup>+</sup> ) et constantes de vitesse associées. ....	100
Tableau 20 – Processus à l’origine de la décroissance des concentrations de N <sub>2</sub> (a <sup>1</sup> Π <sub>g</sub> ) et constantes de vitesse associées. ....	100
Tableau 21 – Processus collisionnels entre électrons et N <sub>2</sub> , et constantes de vitesses associés, pendant les phases de pulse et de relaxation. ....	107
Tableau 22 – Processus V-V et V-T, et constantes de vitesses associées, affectant les populations vibrationnelles de N <sub>2</sub> . Les réactions 144 à 151 constituent le principal mécanisme de population de CO <sub>2</sub> (001). « $T_g$ » est la température cinétique du gaz. ....	108
Tableau 23 – Principales hypothèses associées aux travaux ayant traité le cas des niveaux vibrationnels de N <sub>2</sub> sous l’influence d’un streamer de sprite.....	110
Tableau 24 – Processus de collision entre électrons et niveaux vibrationnels de CO <sub>2</sub> .....	112
Tableau 25 – Processus de quenching, radiatifs, et V-V à l’origine des populations des niveaux vibrationnels de CO <sub>2</sub> . « $k_b$ » est la constante de Boltzmann. ....	113
Tableau 26 – Exemple de plan d’expérience factoriel complet pour 3 facteurs et deux niveaux (1 et -1). Pour ce	

<i>plan, 8 calculs sont nécessaires.</i> .....	120
<i>Tableau 27 – Calcul des interactions pour un plan d’expérience à 2<sup>d-q</sup> calculs. L’interaction 12, par exemple, correspond au produit ligne à ligne des colonnes 1 et 2.</i> .....	121
<i>Tableau 28 – Exemple de plan d’expérience fractionnaire pour 4 facteurs à 2 niveaux. Le plan d’expérience complet nécessiterait 2<sup>4</sup> = 16 calculs.</i> .....	121
<i>Tableau 29 – Valeurs nominales des facteurs pour le calcul de référence. La première colonne correspond au champ électrique réduit pendant la phase de relaxation. La deuxième, à la concentration dans les têtes de streamers de laboratoire à altitude zéro. La troisième correspond à la latitude de laquelle sont issus les profils de composition et de température atmosphérique. Les quatrième et cinquième colonnes correspondent aux constantes de vitesse des deux groupes de réactions de la chimie vibrationnelle associée au CO<sub>2</sub> : la chimie V-T, et la chimie V-V. Leurs valeurs nominales sont celles présentées dans l’annexe « 7.2 ».</i> .....	126
<i>Tableau 30 – Plan de screening de résolution III à cinq facteurs et trois niveaux. Les facteurs considérés sont le champ électrique réduit pendant la phase de relaxation (2<sup>e</sup> colonne), la concentration en électrons dans les têtes de streamer de laboratoire (3<sup>e</sup> colonne), la latitude de simulation, ce qui consiste à faire varier les profils de composition et de température atmosphérique (4<sup>e</sup> colonne), les constantes de vitesse de la chimie vibrationnelle.</i> .....	129
<i>Tableau 31 – Plan factoriel complet à 2 niveaux et 4 facteurs.</i> .....	136
<i>Tableau 32 – Perturbations de températures vibrationnelles de CO<sub>2</sub>(001) et signatures radiatives associées, de 1 à 40 s après le pulse.</i> .....	155

## 9.2. Liste des figures

Figure 1 – Structuration verticale de l’atmosphère (@University of Waikato). .....	19
Figure 2 – Les différentes couches de l’ionosphère, de nuit, à gauche, et de jour, à droite (@Wikimedia Commons). .....	21
Figure 3 – Aurore boréale photographiée à Tromsø, Norvège (@Charlotte Segonne). .....	22
Figure 4 – Photographie de l’airglow depuis l’International Space Station (@NASA). .....	23
Figure 5 – Photographie d’un cumulonimbus, avec sa forme typique d’enclume (Flickr – @Nicholas A. Tonelli). .....	24
Figure 6 – Éclair ascendant photographié à Miallet, en Dordogne (@Jean-Guillaume Feignon). .....	25
Figure 7 – Première image d’un sprite, enregistrée le 5 juillet 1989 près de Minneapolis (Franz et al. 1990). .....	28
Figure 8 – Illustration des différents types de phénomènes lumineux transitoires et de leurs altitudes (@TRAPPA Group). .....	28
Figure 9 – Première image d’un sprite en couleur (@University of Alaska, Fairbanks). .....	29
Figure 10 – De gauche à droite, un sprite halo, un gigantic jet et deux sprites. Ces quatre phénomènes n’ont pas eu lieu en même temps, cette image est construite à partir de la superposition de quatre photographies prises dans un intervalle d’une heure à Cabo Rojo, Porto Rico (@Frankie Lucena). .....	30
Figure 11 – ELVE enregistré à Prague (@Martin Popek) .....	31
Figure 12 – Blue jet photographié en Australie (@Thijs Bors). .....	32
Figure 13 – Dynamique temporelle d’un gigantic jet enregistré le 15 septembre 2001 (Pasko et al. 2002). .....	33
Figure 14 – Un gigantic jet photographié en Chine, près de la montagne Shikengkong (@Phebe Pan). .....	34
Figure 15 – Image d’un sprite, accompagné d’un troll, prise depuis l’ISS au-dessus du Mexique (@Tucson News Now). .....	35
Figure 16 – Entrée de météore dans l’atmosphère, photographiée dans la communauté de Cantabrie, Espagne, le 20 janvier 2016 (@Juan Carlos Munoz / BIOSPHOTO / AFP). .....	36
Figure 17 – Gonflage d’un ballon stratosphérique ouvert à Kiruna (@CNES/N. Journo). .....	45
Figure 18 – Illustration d’un Stratobus™ (@Thales Alenia Space). .....	46
Figure 19 – Représentation schématique du modèle utilisé pour la simulation de la signature infrarouge d’un sprite. En bleu, les aspects qui relèvent de la physico-chimie des plasmas, en jaune, des aspects liés à la chimie et à la cinétique chimique, en rouge, du transfert radiatif. Le modèle fait intervenir 3 codes, un code de chimie des plasmas, un code de cinétique chimique, et un code de transfert radiatif. .....	49
Figure 20 – Profils de concentration des espèces incluses dans la représentation de l’atmosphère de fond. En a), on retrouve les principaux composants, en b), les composés azotés, en c), les composés oxygénés, et en d), les composés hydrogénés. .....	51
Figure 21 – Profil de température associé à la représentation chimique de l’atmosphère de fond. .....	51
Figure 22 – Profil de concentration initiale en électrons de Hu et al. (2007), utilisé avec la représentation de l’atmosphère de fond. .....	52
Figure 23 – Profils de températures cinétique et vibrationnelles pour les trois principaux isotopes de CO <sub>2</sub> (001), de jour et de nuit. On remarque que, en conditions nocturnes, la déviation à l’ETL est mineure jusqu’à 70 km d’altitude (Castelain 2000). .....	58
Figure 24 – Sections efficaces effectives utilisées dans le modèle. .....	64
Figure 25 – Exemples de distributions d’énergie des électrons pour des champs électriques réduits de 30 Td, à gauche, et de 400 Td, à droite. À 30 Td, la densité plasma (rapport entre concentration en électron et concentration en espèces neutres) est inférieure à 10 <sup>5</sup> ppb (part per billion), à 400 Td, elle est approximativement de 10 ppb. .....	65
Figure 26 – Énergie moyenne des électrons entre 5 et 500 Td. .....	65
Figure 27 – Fréquences totales d’ionisation et d’attachement entre 5 et 500 Td. .....	67
Figure 28 – Concentrations en électrons atteinte suite au passage de la tête d’un streamer en fonction de l’altitude. .....	69
Figure 29 – Durée de passage de la tête de streamer (pulse) à une altitude donnée, en fonction de l’altitude, pour un champ électrique réduit de 400 Td. .....	70
Figure 30 – Champ électrique réduit (E/N) en fonction du temps, pour les phases de pulse et de relaxation. ....	71
Figure 31 – Schéma numérique de ZDPlaskin ( <a href="http://www.zdplaskin.laplace.univ-tlse.fr">www.zdplaskin.laplace.univ-tlse.fr</a> ). Le module BOLSIG+ n’est pas utilisé pendant la résolution de la cinétique. Les paramètres plasma sont calculés au préalable et entrés dans le fichier « KINET.INP » .....	74

Figure 32 – Profils de raie gaussien, lorentzien, et de Voigt (Larcher 2016). .....	77
Figure 33 – Région de l’atmosphère perturbée par un sprite modélisée par un cylindre.....	81
Figure 34 – Définition des paramètres de la géométrie d’observation et de l’épaisseur équivalente « dh » pour l’introduction de la perturbation chimique d’un streamer sous LBLRTM. En a), le cas que l’on souhaite simuler, avec un sprite d’une largeur « l » qui couvrirait les altitudes entre 40 et 70 km. Sous LBLRTM, on ne peut pas fixer de limites sur la dimension horizontale pour définir une « boîte ». On calcule donc l’épaisseur « dh », qui permet au segment de ligne de visée qui traverse la région perturbée d’avoir la même longueur dans la situation a) et b).....	82
Figure 35 – Profils des concentrations de fond et celles perturbées par un sprite. Cas considéré par défaut par le code, en a), cas idéal en b). Les couches immédiatement en dessous et au-dessus de la région qui représentent le sprite sont également perturbées par interpolation entre $h_{low}$ et $h_{low-1}$ , et $h_{up}$ et $h_{up+1}$ . Ceci introduit une erreur qui équivaut à surestimer la dimension de la région que l’on souhaite perturber.....	82
Figure 36 - Exemple de HWHM, FWHM et pas d’échantillonnage sur une gaussienne. ....	83
Figure 37 – Paramètres du modèle. Les éléments qui relèvent de la physico-chimie des plasmas sont encadrés en bleu, ceux de la cinétique en jaune, et ceux du transfert radiatif en rouge. Les sorties des calculs des paramètres plasma correspondent à une partie des entrées de la modélisation cinétique. Les sorties de la cinétique correspondent à une partie des entrées de la modélisation du transfert radiatif. ....	85
Figure 38 – Évolutions temporelles des concentrations des trois premiers niveaux vibrationnels de $N_2$ , et du premier niveau de chaque mode de vibration de $CO_2$ , pendant la phase d’équilibrage, pour un champ électrique nul. Les différents types de traits, pleins, tirets, pointillés et tirets – pointillés correspondent respectivement à 40, 50, 60 et 70 km d’altitude. À des fins de lisibilité, les niveaux 4 à 8 du $N_2$ ne sont pas tracés. ....	88
Figure 39 – Évolutions temporelles des concentrations en électrons suite au passage d’un streamer entre 40 et 70 km d’altitude. Les flèches grises indiquent la durée de la phase de pulse à chaque altitude. Afin de ne pas alourdir la figure, les résultats sont présentés à 40, 50, 60, et 70 km d’altitude. ....	89
Figure 40 – Comparaison entre les évolutions temporelles des concentrations en électrons calculées ici, à gauche, et par Gordillo-Vázquez (2008), à droite. Pour rappel, l’auteur a utilisé une durée de pulse constante avec l’altitude, de 5 $\mu s$ , contre 8.7 $\mu s$ dans cette étude, à 63 km. ....	92
Figure 41 – Comparaison entre évolutions temporelles de la concentration en électrons calculée ici, à gauche, et celle calculée par Sentman et al. (2008), à droite (courbe en gras), à 70 km. Pour rappel, les auteurs ont utilisé une fonction gaussienne pour définir leur pulse. ....	93
Figure 42 – Comparaison des évolutions temporelles des concentrations en électrons calculées ici, à gauche, et celles de Winkler et Notholt (2014), à droite. ....	93
Figure 43 – Profils d’électrons calculés par Raizer et al. (1998), 0.1, 0.2, et 0.3 s après passage d’un streamer, entre 50 et 80 km d’altitude.....	94
Figure 44 – Évolutions temporelles des concentrations de $N_2^+$ . ....	96
Figure 45 – Évolutions temporelles des espèces responsables des principales émissions visibles dans les sprites. En a), l’espèce $N_2(B^3\Pi_g)$ . En b), l’espèce $N_2(C^3\Pi_u)$ . En c), l’espèce $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ . ....	97
Figure 46 – Évolutions temporelles des concentrations des espèces responsables des émissions d’importance secondaire dans les sprites. En a), l’espèce $NO(A^2\Sigma^+)$ . En b), l’espèce $N_2(a^1\Pi_g)$ . ....	99
Figure 47 – Comparaison entre l’évolution temporelle des VERs des premiers et seconds systèmes positifs de $N_2$ ( $1PN_2$ et $2PN_2$ ), à 70 km d’altitude, calculés ici, à gauche, et ceux de Sentman et al. (2008), à droite.....	101
Figure 48 – Évolutions temporelles des EBs de $1PN_2$ , $2PN_2$ , et $1NN_2^+$ . Calculs réalisés à 50 km en a), à 60 km en b), et à 70 km, en c). En traits tirés-pointillés ont été ajoutées les EBs maximales de $1PN_2$ et $2PN_2$ calculées par (Parra-Rojas et al. 2015) aux mêmes altitudes. En traits pointillés bleus, les EBs maximales de (Gordillo-Vázquez 2008), calculées à 63 km (représentée en b), et à 68 km (représentée en c). En c), la plage colorée en orange correspond à la gamme d’émissions totales estimées par Stenbaek-Nielsen et al. (2007), entre 70 - 75 km d’altitude. La limite haute de cette gamme n’est pas représentée sur la figure, celle-ci est de $5 \times 10^{11}$ R (Rayleigh). ....	102
Figure 49 – Procédé schématique de population du $CO_2$ vibrationnel et émissions radiatives consécutives. Une espèce notée (ground) correspond à l’état fondamental.....	104
Figure 50 – Évolutions temporelles des concentrations des quatre premiers niveaux vibrationnels de $N_2$ . Leurs énergies seuil sont données dans la section « 2.1.2 ». En a), le premier niveau vibrationnel, en b), le deuxième, en c), le troisième, en d), le quatrième.....	105
Figure 51 – Évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels 5 à 8 de $N_2$ . Leurs énergies seuil sont données dans la section « 2.1.2 ». En a), le cinquième niveau vibrationnel, en b), le sixième, en c), le septième, en d), le huitième. ....	106
Figure 52 – Comparaison des évolutions temporelles des concentrations des niveaux vibrationnels de $N_2$ . En a),	

les résultats de (Gordillo-Vázquez 2008), les niveaux 1, 2, et 8, sont représentés pour des simulations réalisées à 63, 68, et 78 km d'altitude. En b), ceux de (Gordillo-Vázquez 2010), les niveaux 1 à 8 sont représentés. Les calculs sont réalisés pour une altitude de 78 km. En c), ceux calculés ici. Les niveaux 1, 2, et 8, sont représentés pour un calcul à 70 km. Dans chaque cas, la durée du pulse est représentée par une flèche.....	109
Figure 53 – Évolutions temporelles des concentrations des premiers niveaux de chaque mode de vibration de CO <sub>2</sub> actif dans l'infrarouge. Pour mieux rendre compte de la perturbation, les échelles des ordonnées ne sont pas identiques d'un graphique à l'autre. En a), CO <sub>2</sub> (010), en b), CO <sub>2</sub> (100), en c), CO <sub>2</sub> (001). .....	114
Figure 54 – Brillances d'émission à 4.26 μm, à gauche, et 9.4 μm, à droite, à 40, 50, 60, et 70 km. Ces deux bandes sont associées à CO <sub>2</sub> (001). .....	115
Figure 55 – Évolutions temporelles des températures vibrationnelles des trois niveaux de CO <sub>2</sub> inclus dans le modèle, entre 1 et 100 s. En a), CO <sub>2</sub> (010), en b), CO <sub>2</sub> (100), en c), CO <sub>2</sub> (001). La valeur ΔT <sub>vib</sub> pour CO <sub>2</sub> (001) à 70 km est illustrée en c), avec une flèche verticale bleu clair, et la température cinétique à 70 km avec des tirets.	116
Figure 56 – Exemple schématique d'une densité de probabilité de Student.....	125
Figure 57 – Concentrations en électrons en fin de pulse, en a), et durées des phases de pulse, en b), en fonction de l'altitude, calculées à partir des concentrations en électrons de streamers à une pression de 1 atm (n <sub>0</sub> ).....	127
Figure 58 – Profils de température, en a), et de concentration en CO <sub>2</sub> , en b), à 0, 25, et 45 ° de latitude, et 0 ° de longitude. Les différences de température entre les différents profils, à une altitude donnée, atteignent un maximum de 5 K. Les différences sur les concentrations en CO <sub>2</sub> atteignent un facteur 2 au maximum, aux plus hautes altitudes.....	128
Figure 59 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (001) pour les 27 cas du premier plan d'expérience, à 40 km d'altitude. En a), tous les calculs réalisés avec un champ électrique réduit pendant la phase de pulse de 5 Td. En b), ce champ est de 30 Td. En c), il est de 60 Td. ....	130
Figure 60 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (010), en a), et CO <sub>2</sub> (100), en b), à 40 km d'altitude, pour E/N <sub>relax</sub> = 30 Td. ....	131
Figure 61 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (010), en a), et CO <sub>2</sub> (100), en b), à 40 km d'altitude, pour E/N <sub>relax</sub> = 60 Td. ....	132
Figure 62 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (001) pour les 27 cas du premier plan d'expérience, à 70 km d'altitude. En a), tous les calculs réalisés avec un champ électrique réduit pendant la phase de pulse de 5 Td. En b), ce champ est de 30 Td. En c), il est de 60 Td. ....	133
Figure 63 – Indices principaux et totaux pour le facteur « constantes de vitesse V-V » et la sortie « températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (001) ».....	134
Figure 64 – Schéma des interactions 2 à 2 de V-V avec les autres facteurs. Avec 5 facteurs, V-V a 4 interactions, et il y a 10 interactions au total. ....	135
Figure 65 – Indices principaux pour le facteur « E/N <sub>relax</sub> » et la sortie « températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (001) ».....	135
Figure 66 – Comparaisons des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (010), CO <sub>2</sub> (100), et CO <sub>2</sub> (001), issues du second plan d'expérience, à 40 et 70 km d'altitude. En a) et b) les sorties de CO <sub>2</sub> (010), à 40 et 70 km respectivement. Même chose en c) et d) pour CO <sub>2</sub> (100), et en e) et f) pour CO <sub>2</sub> (001). Pour rappel, le cas nominal dont les résultats sont décrits en « 3.3.2 » correspond au calcul n° 1. ....	138
Figure 67 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (010), CO <sub>2</sub> (100), et CO <sub>2</sub> (001), issues du second plan d'expérience, à 40 km. Zoom sur les calculs 1 à 8, réalisés avec un E/N <sub>relax</sub> de 30 Td.....	139
Figure 68 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (010), issues du second plan d'expérience, à 70 km. Zoom sur les calculs 9 à 16, réalisés avec un E/N <sub>relax</sub> de 60 Td. ....	140
Figure 69 – Comparaison des évolutions temporelles des températures vibrationnelles de CO <sub>2</sub> (001), issues du second plan d'expérience, à 70 km. Zoom sur les calculs 9 à 16, réalisés avec un E/N <sub>relax</sub> de 60 Td. ....	141
Figure 70 – Indices principaux, en a), d'interactions 2 à 2, en b), et totaux, en c), pour les quatre facteurs, pour l'espèce CO <sub>2</sub> (001), et 40 km d'altitude. Les indices après 50 s ne sont pas représentés. Les températures vibrationnelles étant retombées à leur valeur d'équilibre, ils présentent des variations qui ne sont pas significatives.....	142
Figure 71 – Coefficients de régression du modèle linéaire appris sur les simulations du plan d'expérience factoriel complet. Les coefficients sont donnés à 1 et 21 s, à 40, 55, 70 km, pour les trois espèces CO <sub>2</sub> (010), CO <sub>2</sub> (100), et CO <sub>2</sub> (001). De gauche à droite sont représentés les coefficients associés aux 4 facteurs et aux 6 interactions 2 à 2.....	143
Figure 72 – Résultats des tests de Student réalisés à partir du modèle linéaire appris sur les simulations du plan d'expérience factoriel complet. Les « t » sont donnés à 1 et 21 s, à 40, 55, 70 km, pour les trois espèces CO <sub>2</sub> (010), CO <sub>2</sub> (100), et CO <sub>2</sub> (001). De gauche à droite sont représentées les valeurs de « t » associées aux 4	

facteurs et aux 6 interactions 2 à 2. Les valeurs de « t » significatives sont marquées d'une « * ».....	145
Figure 73 – Évolutions temporelles des concentrations de $N_2(v_1)$ obtenues pour un calcul alternatif réalisé pour l'analyse de sensibilité. Le champ électrique réduit de la phase de relaxation est de 60 Td, les autres paramètres sont à leur valeur nominale. ....	147
Figure 74 – Températures vibrationnelles de $CO_2(001)$ entre 40 et 70 km d'altitude. En vert, les températures vibrationnelles pour le cas nominal, décrit en détail dans le chapitre 3. En bleu, celles du calcul numéro 1 (Tableau 30). En rouge, celles du calcul numéro 18 (Tableau 30). En trait plein, les résultats à 1 s, en tirets, à 10 s, en pointillés, à 30 s. La représentation des résultats à ces différents temps permet de constater la décroissance des températures vibrationnelles plus rapide à basse altitude. L'incertitude sur les valeurs nominales à 1 s est matérialisée par un trait horizontal vert à 55 km. ....	148
Figure 75 – Spectre de l'atmosphère non perturbée. Les énergies des 4 transitions incluses dans le modèle cinétique sont représentées par un trait vertical vert. L'observateur est situé à 40 km d'altitude et la ligne de visée, oblique, a un angle zénithal de $78^\circ$ et un azimut de $0^\circ$ . La résolution spectrale (FWHM) est de $0.4\text{ cm}^{-1}$ . ....	151
Figure 76 – Spectres de l'atmosphère de fond non perturbée pour 3 résolutions spectrales, entre 1005 et 1070 $\text{cm}^{-1}$ , pour un observateur situé à 40 km d'altitude et une ligne de visée de $78^\circ$ d'angle zénithal. ....	152
Figure 77 – Luminances spectrales maximales en fonction de la résolution spectrale, dans les deux gammes affectées par les émissions de $CO_2(001)$ . La courbe noire représente le maximum de luminance à $1035\text{ cm}^{-1}$ , la courbe verte, à $2315\text{ cm}^{-1}$ . ....	152
Figure 78 – Spectres de l'atmosphère non perturbée, en gris, et perturbée, 1 s après le pulse, en rouge. Les résultats entre 1200 et $2150\text{ cm}^{-1}$ ont été retirés. Dans les conditions de ce travail, il n'y a pas de signature dans cette gamme. ....	153
Figure 79 – SIRs calculées 1, 5, 10, 20, 30, et 40 s après le pulse. À 50 s, les températures vibrationnelles sont à nouveau à l'équilibre, la signature est donc nulle. ....	154
Figure 80 – Spectres absolus de l'atmosphère de fond et de l'atmosphère perturbée, 1 s après le pulse, en a), et SIR du sprite à différents temps après le pulse, en b), pour un observateur de type HAPS. ....	156
Figure 81 – SIRs maximales dans les bandes A et B, calculées pour des observateurs de type BSO et HAPS, à différents temps après le pulse. En rouge, les valeurs maximales depuis un BSO. Le symbole plein correspond à la bande A, le symbole vide à la bande B. En bleu, les valeurs maximales depuis un HAPS. Même signification pour les symboles pleins et vides. ....	157
Figure 82 – SIRs maximales dans les bandes A et B, pour un BSO et un HAPS, en fonction du diamètre équivalent du sprite. ....	158
Figure 83 – Effet de l'angle zénithal sur les SIRs maximales pour un observateur situé à 30 km d'altitude et 50 km de distance horizontale d'un sprite. ....	159
Figure 84 – Effet de la distance entre observateur et sprite sur les luminances maximales (1 s après la fin du pulse) dans les bandes A et B. ....	160
Figure 85 – Spectres de fond et spectres perturbés 1 s après le pulse, pour un observateur situé à 3000 m, en a), à 5000 m, en b), et à 10000 m, en c). ....	161
Figure 86 – SIRs de sprites pour des observateurs situés à 3000, 5000, et 10000 m d'altitude. ....	161
Figure 87 – Spectres absolus de l'atmosphère de fond et de l'atmosphère perturbée, 1 s après le pulse, en a), et SIR du sprite, 1 s après, le pulse, en b), pour un observateur situé dans l'espace, à 800 km d'altitude. ....	163
Figure 88 – Luminances de fond à $0^\circ$ et à $45^\circ$ de latitude, en a), et différence entre les luminances à $0^\circ$ et à $45^\circ$ , en b). Calculs réalisés pour un observateur situé à 30 km d'altitude, un angle zénithal de la ligne de visée de $78^\circ$ , et un azimut de $0^\circ$ . ....	164
Figure 89 – Températures vibrationnelles, en a), utilisées pour le calcul de la SIR nominale, minimale, et maximale d'un sprite, en b). Les spectres sont calculés à 1 s. La SIR maximale est obtenue à $0^\circ$ de latitude. Pour l'obtenir, on a donc soustrait les luminances de fond obtenues à cette même latitude. La SIR minimale est obtenue à $45^\circ$ de latitude, elle est calculée de la même façon. Pour la géométrie d'observation définie, la ligne de visée traverse le sprite entre 40 et 42 km d'altitude. La partie grisée, en a), indique cette région. ....	165
Figure 90 – Schéma de principe des synergies entre HALESIS et ATISE. Transsolo est un code de transport d'électrons. ....	169
Figure 91 – Principales catégories d'aurores. En a), photo d'une forme d'arc prise en Laponie pour TWAN ( <a href="http://twanight.org/">http://twanight.org/</a> ). En b), forme de patch. En c), bandes irrégulières. ....	170
Figure 92 – Luminances atmosphériques de fond, sans aurore, calculées avec SAMM2 en conditions nocturnes, pour un observateur situé à 40 km d'altitude, avec un angle zénithal de $60^\circ$ . Spectre tracé avec une résolution spectrale de $0.4\text{ cm}^{-1}$ . ....	172
Figure 93 – Signatures aurorales de $CO_2$ , NO, et $NO^+$ . En a), le $CO_2$ . En b), NO et $NO^+$ . Spectres tracés avec une résolution spectrale de $0.4\text{ cm}^{-1}$ . ....	173

Figure 94 – Sections efficaces des différents processus associés au diazote. En a), les processus de type  $N_2 \rightarrow N_2(v_i)$ , avec  $i = 1...8$ . En b), les processus de type  $N_2(v_i) \rightarrow N_2(v_{i+1})$ , avec  $i = 1...7$ . En c), les processus d'excitation électronique. En d), les processus de dissociation, d'excitation dissociative et d'ionisation..... 199

Figure 95 – Sections efficaces de tous les autres processus. En a), excitation et attachement dissociatif du  $CO_2$ . En b), dissociation, excitation dissociative, ionisation et attachement de  $H_2O$ . En c), attachement et ionisation de  $N_2O$ , ionisation et excitation électronique de Ar. En d), attachement et ionisation/excitation de NO. En e), excitation électronique, dissociation, attachement dissociatif et ionisation de  $O_2$ . En f), attachement dissociatif de  $O_3$ , ionisation et excitation électronique de O..... 200



# 10. Bibliographie

- Adachi, T., Hiraki, Y., Yamamoto, K., Takahashi, Y., Fukunishi, H., Hsu, R.-R., Su, H.-T., Chen, A.B., Mende, S.B., Frey, H.U., et al. (2008). Electric fields and electron energies in sprites and temporal evolutions of lightning charge moment. *J. Phys. Appl. Phys.* *41*, 234010.
- Albritton, D.L. (1978). Ion-neutral reaction-rate constants measured in flow reactors through 1977. *At. Data Nucl. Data Tables* *22*, 1–89.
- Allen, N.L., and Ghaffar, A. (1995). The conditions required for the propagation of a cathode-directed positive streamer in air. *J. Phys. Appl. Phys.* *28*, 331.
- Archambeau, F., Méchitoua, N., and Sakiz, M. (2004). Code Saturne: A Finite Volume Code for the computation of turbulent incompressible flows - Industrial Applications. *Int. J. Finite Vol.* *1*, <http://www.latp.univ-fr/IJFV/spip.php?article3>.
- Armstrong, R.A., Shorter, J.A., Taylor, M.J., Suszcynsky, D.M., Lyons, W.A., and Jeong, L.S. (1998). Photometric measurements in the SPRITES '95 & '96 campaigns of nitrogen second positive (399.8 nm) and first negative (427.8 nm) emissions. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *60*, 787–799.
- Arnone, E., Smith, A.K., Enell, C.-F., Kero, A., and Dinelli, B.M. (2014). WACCM climate chemistry sensitivity to sprite perturbations. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *119*, 6958–6970.
- Asano Tomokazu, Hayakawa Masashi, Cho Mengu, and Suzuki Tomoyuki (2008). Computer simulations on the initiation and morphological difference of Japan winter and summer sprites. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *113*.
- Atkinson, R., Baulch, D.L., Cox, R.A., Hampson, R.F., Kerr (Chairman), J.A., and Troe, J. (1989). Evaluated Kinetic and Photochemical Data for Atmospheric Chemistry: Supplement III. IUPAC Subcommittee on Gas Kinetic Data Evaluation for Atmospheric Chemistry. *J. Phys. Chem. Ref. Data* *18*, 881–1097.
- Azaïs, J.M., and Bardet, J.M. (2006). *Le modèle linéaire par l'exemple* (Dunod).
- Barrington-Leigh, C.P., Inan, U.S., and Stanley, M. (2001). Identification of sprites and elves with intensified video and broadband array photometry. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *106*, 1741–1750.
- Baureau, F., Staraj, R., Ferrero, F., Lizzi, L., Ribero, J.M., and Chessel, J.P. (2015). Stratospheric platform for telecommunication missions. In 2015 IEEE International Symposium on Antennas and Propagation USNC/URSI National Radio Science Meeting, pp. 914–915.
- Bellisario, C. (2015). Nightglow modeling at high altitude: theoretical and observational study. Theses. Université Paris-Saclay.
- Bellman, R. (1961). *Adaptive Control Processes: A Guided Tour* (Princeton University Press).
- Bering, I., E.A., Bhusal, L., Benbrook, J.R., Garrett, J.A., Jackson, A.P., Wescott, E.M., Moudry, D.R., Sentman, D.D., Stenbaek-Nielsen, H.C., and Lyons, W.A. (2004). The results from the 1999 sprites balloon campaign. *Adv. Space Res.* *34*, 1782–1791.

- Bhusal, L., Bering III, E.A., Benbrook, J.R., Garrett, J.A., Paredes, A.M., Wescott, E.M., Moudry, D.R., Sentman, D.D., Stenbaek-Nielsen, H.C., and Lyons, W.A. (2004). Statistics and properties of transient luminous events found in the 1999 Sprites Balloon Campaign. *Adv. Space Res.* *34*, 1811–1814.
- Blanc, E., Lefeuvre, F., Roussel-Dupré, R., and Sauvaud, J. (2007a). TARANIS: A microsatellite project dedicated to the study of impulsive transfers of energy between the Earth atmosphere, the ionosphere, and the magnetosphere. *Adv. Space Res.* *40*, 1268–1275.
- Blanc, E., Farges, T., Brebion, D., Belyaev, A.N., Alpatov, V.V., Labarthe, A., and Melnikov, V. (2007b). Main results of LSO (Lightning and sprite observations) on board of the international space station. *Microgravity Sci. Technol.* *19*, 80–84.
- Boeck, W., Vaughan, O., Blakeslee, R., Vonnegut, B., and Brook, M. (1992). Lightning induced brightening in the airglow layer. *Geophys. Res. Lett.* *19*, 99–102.
- Boeck, W.L., Vaughan, O.H., Blakeslee, R.J., Vonnegut, B., and Brook, M. (1998a). The role of the space shuttle videotapes in the discovery of sprites, jets and elves. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *60*, 669–677.
- Boeck, W.L., Vaughan, O.H., Blakeslee, R.J., Vonnegut, B., and Brook, M. (1998b). The role of the space shuttle videotapes in the discovery of sprites, jets and elves. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *60*, 669–677.
- Bór, J. (2013). Optically perceptible characteristics of sprites observed in Central Europe in 2007–2009. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *92*, 151–177.
- Bór, J., Zelkó, Z., Hegedüs, T., Jäger, Z., Mlynarczyk, J., Popek, M., and Betz, H.-D. (2016). Dancing red sprites and the lightning activity in their parent thunderstorm. pp. EPSC2016-7571.
- Bortner, M.H., Baurer, T., Champion, K.S., and Schweinfurth, R.A. (1972). Defense Nuclear Agency Reaction Rate Handbook. Second Edition. Revision Number 1 (GENERAL ELECTRIC CO PHILADELPHIA PA SPACE DIV, GENERAL ELECTRIC CO PHILADELPHIA PA SPACE DIV).
- Bourène, M., and Calvé, J.L. (1973). De-excitation cross sections of metastable argon by various atoms and molecules. *J. Chem. Phys.* *58*, 1452–1458.
- Brasseur, G., and Solomon, S. (1986). Chemical Concepts in the Atmosphere. In *Aeronomy of the Middle Atmosphere*, (Springer, Dordrecht), pp. 9–31.
- Buchwald, M.I., and Wolga, G.J. (1975). Vibrational relaxation of CO<sub>2</sub>(001) by atoms. *J. Chem. Phys.* *62*, 2828–2832.
- Bucsela, E., Morrill, J., Heavner, M., Siefiring, C., Berg, S., Hampton, D., Moudry, D., Wescott, E., and Sentman, D. (2003). N<sub>2</sub>(B<sub>3</sub>Π<sub>g</sub>) and N<sub>2</sub><sup>+</sup>(A<sub>2</sub>Π<sub>u</sub>) vibrational distributions observed in sprites. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *65*, 583–590.
- Cacciatore, M., Kurnosov, A., and Napartovich, A. (2005). Vibrational energy transfer in N<sub>2</sub>–N<sub>2</sub> collisions: A new semiclassical study. *J. Chem. Phys.* *123*, 174315.
- Capitelli, M., Ferreira, C.M., Gordiets, B.F., and Osipov, A.I. (2000). *Plasma Kinetics in Atmospheric Gases* (Berlin Heidelberg: Springer-Verlag).

- Castelain, G. (2000). Analyse des fluctuations du rayonnement atmosphérique autour de 4,3 microns pour des visées satellitaires proches du nadir.
- Castillo, M., Méndez, I., Islyaikin, A.M., Herrero, V.J., and Tanarro, I. (2005). Low-Pressure DC Air Plasmas. Investigation of Neutral and Ion Chemistry. *J. Phys. Chem. A* *109*, 6255–6263.
- Celestin, S., and Pasko, V.P. (2010). Effects of spatial non-uniformity of streamer discharges on spectroscopic diagnostics of peak electric fields in transient luminous events. *Geophys. Res. Lett.* *37*, L07804.
- Charman, W.N. (1979). Ball lightning. *Phys. Rep.* *54*, 261–306.
- Chastaing, G. (2013). Indices de Sobol généralisés par variables dépendantes.
- Chen, A.B., Kuo, C.-L., Lee, Y.-J., Su, H.-T., Hsu, R.-R., Chern, J.-L., Frey, H.U., Mende, S.B., Takahashi, Y., Fukunishi, H., et al. (2008). Global distributions and occurrence rates of transient luminous events. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *113*, A08306.
- Clough, S., Shephard, M., Mlawer, E., Delamere, J., Iacono, M., Cady-Pereira, K., Boukabara, S., and Brown, P. (2005). Atmospheric radiative transfer modeling: A summary of the AER codes. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* *91*, 233–244.
- Clough, S.A., Kneizys, F.X., Rothman, L.S., and Gallery, W.O. (1981). Atmospheric Spectral Transmittance And Radiance: FASCOD1 B. In *Atmospheric Transmission*, (International Society for Optics and Photonics), pp. 152–168.
- Croize, L., Payan, S., Bureau, J., Duruisseau, F., Thieblemont, R., and Huret, N. (2015). Effect of Blue Jets on Atmospheric Composition: Feasibility of Measurement From a Stratospheric Balloon. *IEEE J. Sel. Top. Appl. Earth Obs. Remote Sens.* *8*, 3183–3192.
- Dekemper, E., Fussen, D., Opstal, B.V., Vanhamel, J., Pieroux, D., Vanhellemont, F., Mateshvili, N., Franssens, G., Voloshinov, V., Janssen, C., et al. (2014). ALTIUS: a spaceborne AOTF-based UV-VIS-NIR hyperspectral imager for atmospheric remote sensing. In *Sensors, Systems, and Next-Generation Satellites XVIII*, (International Society for Optics and Photonics), p. 92410L.
- Dhali, S.K., and Williams, P.F. (1987). Two-dimensional studies of streamers in gases. *J. Appl. Phys.* *62*, 4696–4707.
- Dothe, H., Duff, J.W., J. H. Gruninger, P. K. Acharya, and Berk, A. (2004). SAMM2, SHARC-4 and MODTRAN4 Merged (User's Manual).
- Dothe, H., Duff, J.W., Gruninger, J.H., Panfili, R., Kennett, R., and Brown, J.H. (2009). Auroral radiance modeling with SAMM2. pp. 747509-747509–7.
- Dwyer, J.R., and Uman, M.A. (2014). The physics of lightning. *Phys. Rep.* *534*, 147–241.
- Elliott, H.A., Jahn, J.M., and McComas, D.J. (2013). The Kp index and solar wind speed relationship: Insights for improving space weather forecasts. *Space Weather* *11*, 339–349.
- Enell, C.-F., Arnone, E., Adachi, T., Chanrion, O., Verronen, P., Seppälä, A., Neubert, T., Ulich, T., Turunen, E., and Takahashi, Y. (2008). Parameterisation of the chemical effect of sprites in the middle atmosphere. In *Annales Geophysicae*, pp. 13–27.

- Everett, J.D. (1903). Rocket Lightning. *Nature* 69, 30.
- Farges, T., Blanc, E., Hébert, P., Le Mer-Dachard, F., Ravel, K., and Gaillac, S. (2017). MicroCameras and Photometers (MCP) on board TARANIS satellite. p. 6024.
- Franz, R., Nemzek, R., and Winckler, J. (1990). Television image of a large upward electrical discharge above a thunderstorm system. *Science* 249, 48–51.
- Fridman, A. (2008). *Plasma Chemistry* (Cambridge University Press).
- Fukunishi, H., Takahashi, Y., Kubota, M., Sakanoi, K., Inan, U.S., and Lyons, W.A. (1996). Elves: Lightning-induced transient luminous events in the lower ionosphere. *Geophys. Res. Lett.* 23, 2157–2160.
- Funke, B., López-Puertas, M., García-Comas, M., Kaufmann, M., Höpfner, M., and Stiller, G. (2012). GRANADA: a generic radiative transfer and non-LTE population algorithm. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* 113, 1771–1817.
- Garipov, G.K., Khrenov, B.A., Klimov, P.A., Klimenko, V.V., Mareev, E.A., Martines, O., Mendoza, E., Morozenko, V.S., Panasyuk, M.I., Park, I.H., et al. (2013). Global transients in ultraviolet and red-infrared ranges from data of Universitetsky-Tatiana-2 satellite. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 118, 370–379.
- Gautier, J., Pintat, X., and Reiner, D. (2011). La défense antimissile balistique : bouclier militaire ou défi stratégique ?
- Gerken, E.A., Inan, U.S., and Barrington-Leigh, C.P. (2000). Telescopic imaging of sprites. *Geophys. Res. Lett.* 27, 2637–2640.
- Goodman, S.J., Blakeslee, R.J., Koshak, W.J., Mach, D., Bailey, J., Buechler, D., Carey, L., Schultz, C., Bateman, M., McCaul, E., et al. (2013). The GOES-R Geostationary Lightning Mapper (GLM). *Atmospheric Res.* 125–126, 34–49.
- Gordiets, B.F., Ferreira, C.M., Guerra, V.L., Loureiro, J.M.A.H., Nahorny, J., Pagnon, D., Touzeau, M., and Vialle, M. (1995). Kinetic model of a low-pressure N<sub>2</sub>-O<sub>2</sub> flowing glow discharge. *IEEE Trans. Plasma Sci.* 23, 750–768.
- Gordillo-Vázquez, F.J. (2008). Air plasma kinetics under the influence of sprites. *J. Phys. Appl. Phys.* 41, 234016.
- Gordillo-Vazquez, F.J. (2010). Vibrational kinetics of air plasmas induced by sprites. *J. Geophys. Res. Space Phys.* 115, A00E25.
- Gordillo-Vázquez, F., Luque, A., and Simek, M. (2012). Near infrared and ultraviolet spectra of TLEs. *J. Geophys. Res. Space Phys.* 1978–2012 117.
- Gudmundsson, J.T., Kouznetsov, I.G., Patel, K.K., and Lieberman, M.A. (2001). Electronegativity of low-pressure high-density oxygen discharges. *J. Phys. Appl. Phys.* 34, 1100.
- Hagelaar, G.J.M., and Pitchford, L.C. (2005). Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models. *Plasma Sources Sci. Technol.* 14, 722.

- Hampton, D.L., Heavner, M.J., Wescott, E.M., and Sentman, D.D. (1996). Optical spectral characteristics of sprites. *Geophys. Res. Lett.* *23*, 89–92.
- Hayakawa, M., Nakamura, T., Hobara, Y., and Williams, E. (2004). Observation of sprites over the Sea of Japan and conditions for lightning-induced sprites in winter. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *109*, A01312.
- Heavner, M.J., Morrill, J.S., Siefiring, C., Sentman, D.D., Moudry, D.R., Wescott, E.M., and Bucsel, E.J. (2010). Near-ultraviolet and blue spectral observations of sprites in the 320–460 nm region: N<sub>2</sub> (2PG) emissions. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*, A00E44.
- Hiraki, Y., Kasai, Y., and Fukunishi, H. (2008). Chemistry of sprite discharges through ion-neutral reactions. *Atmospheric Chem. Phys.* *8*, 3919–3928.
- Hiraki Yasutaka, and Fukunishi Hiroshi (2006). Theoretical criterion of charge moment change by lightning for initiation of sprites. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *111*.
- Hu, W., Cummer, S.A., and Lyons, W.A. (2007). Testing sprite initiation theory using lightning measurements and modeled electromagnetic fields. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *112*, D13115.
- Hu Wenyi, Cummer Steven A., Lyons Walter A., and Nelson Thomas E. (2002). Lightning charge moment changes for the initiation of sprites. *Geophys. Res. Lett.* *29*, 120–121.
- Ignaccolo, M., Farges, T., Mika, A., Allin, T.H., Chanrion, O., Blanc, E., Neubert, T., Fraser-Smith, A.C., and Füllekrug, M. (2006). The Planetary rate of sprite events. *Geophys. Res. Lett.* *33*, L11808.
- Inan, U.S., Bell, T.F., and Rodriguez, J.V. (1991). Heating and ionization of the lower ionosphere by lightning. *Geophys. Res. Lett.* *18*, 705–708.
- Jacquinet-Husson, N., Armante, R., Scott, N.A., Chédin, A., Crépeau, L., Boutamine, C., Bouhdaoui, A., Crevoisier, C., Capelle, V., Boone, C., et al. (2016). The 2015 edition of the GEISA spectroscopic database. *J. Mol. Spectrosc.* *327*, 31–72.
- Jones, A.V. (1974). *Aurora* (Springer Netherlands).
- Kazil, J., Kopp, E., Chabrilat, S., and Bishop, J. (2003). The University of Bern Atmospheric Ion Model: Time-dependent modeling of the ions in the mesosphere and lower thermosphere. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *108*.
- Kosar Burcu C., Liu Ningyu, and Rassoul Hamid K. (2012). Luminosity and propagation characteristics of sprite streamers initiated from small ionospheric disturbances at subbreakdown conditions. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *117*.
- Kosar Burcu C., Liu Ningyu, and Rassoul Hamid K. (2013). Formation of sprite streamers at subbreakdown conditions from ionospheric inhomogeneities resembling observed sprite halo structures. *Geophys. Res. Lett.* *40*, 6282–6287.
- Kossyi, I.A., Kostinsky, A.Y., Matveyev, A.A., and Silakov, V.P. (1992). Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures. *Plasma Sources Sci. Technol.* *1* 207.
- Kruger, V.R., and Olander, D.R. (1976). Oxygen radiolysis by modulated molecular beam mass spectrometry. *J. Phys. Chem.* *80*, 1676–1684.

- Kummerow, C., Barnes, W., Kozu, T., Shiue, J., and Simpson, J. (1998). The Tropical Rainfall Measuring Mission (TRMM) Sensor Package. *J. Atmospheric Ocean. Technol.* *15*, 809–817.
- Kuo C. L., Su H. T., and Hsu R. R (2015). The blue luminous events observed by ISUAL payload on board FORMOSAT-2 satellite. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *120*, 9795–9804.
- Kuo Cheng-Ling, Hsu R. R., Chen A. B., Su H. T., Lee L. C., Mende S. B., Frey H. U., Fukunishi H., and Takahashi Y. (2005). Electric fields and electron energies inferred from the ISUAL recorded sprites. *Geophys. Res. Lett.* *32*.
- Kurnosov, A., Napartovich, A., Shnyrev, S., and Cacciatore, M. (2007). Vibrational Energy Exchanges in Nitrogen: Application of New Rate Constants for Kinetic Modeling. *J. Phys. Chem. A* *111*, 7057–7065.
- Laporta, V., Celiberto, R., and Wadehra, J.M. (2012). Theoretical vibrational-excitation cross sections and rate coefficients for electron-impact resonant collisions involving rovibrationally excited N<sub>2</sub> and NO molecules. *Plasma Sources Sci. Technol.* *21*, 055018.
- Laporta, V., Little, D.A., Celiberto, R., and Tennyson, J. (2014). Electron-impact resonant vibrational excitation and dissociation processes involving vibrationally excited N<sub>2</sub> molecules. *Plasma Sources Sci. Technol.* *23*, 065002.
- Larcher, G. (2016). Profil spectral des raies d'absorption du dioxyde de carbone en vue d'application à l'étude de l'atmosphère de la Terre par télédétection.
- Le Coarer, E., Vialatte, A., Bourdarot, G., Monsinjon, P., Guerineau, N., Barthelemy, M., Prugniaux, M., Sequies, T., and Puget, R. (2017). Atise: a miniature Fourier-transform spectro-imaging concept for surveying auroras and airglow monitoring from a 6/12u cubesat. N. Karafolas, B. Cugny, and Z. Sodnik, eds. (SPIE), p. 243.
- Lefevre, F., Brasseur, G., Folkins, I., Smith, A., and Simon, P. (1994). Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter: Three-dimensional model simulations. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *1984–2012* *99*, 8183–8195.
- Lepoutre, F., Louis, G., and Manceau, H. (1977). Collisional relaxation in CO<sub>2</sub> between 180 K and 400 K measured by the spectrophone method. *Chem. Phys. Lett.* *48*, 509–514.
- Li, J., Cummer, S., Lu, G., and Zigoneanu, L. (2012). Charge moment change and lightning-driven electric fields associated with negative sprites and halos. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *117*.
- Li, Cummer S. A., Lyons W. A., and Nelson T. E. (2008). Coordinated analysis of delayed sprites with high-speed images and remote electromagnetic fields. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *113*.
- Lindinger, W., Howorka, F., Lukac, P., Kuhn, S., Villinger, H., Alge, E., and Ramler, H. (1981). Charge transfer of  $\text{Ar}^+$  +  $\text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + \text{Ar}$  at near thermal energies. *Phys. Rev. A* *23*, 2319–2326.
- Liu, N., Kosar, B., Sadighi, S., Dwyer, J.R., and Rassoul, H.K. (2012). Formation of Streamer Discharges from an Isolated Ionization Column at Subbreakdown Conditions. *Phys. Rev. Lett.* *109*, 025002.
- Liu, N., Dwyer, J.R., Stenbaek-Nielsen, H.C., and McHarg, M.G. (2015). Sprite streamer initiation from natural mesospheric structures. *Nat. Commun.* *6*, 7540.

- Liu Ningyu, and Pasko Victor P. (2004). Effects of photoionization on propagation and branching of positive and negative streamers in sprites. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *109*.
- Liu Ningyu, Pasko Victor P., Burkhardt David H., Frey Harald U., Mende Stephen B., Su Han-Tzong, Chen Alfred B., Hsu Rue-Ron, Lee Lou-Chuang, Fukunishi Hiroshi, et al. (2006). Comparison of results from sprite streamer modeling with spectrophotometric measurements by ISUAL instrument on FORMOSAT-2 satellite. *Geophys. Res. Lett.* *33*.
- López-Puertas, M., and Taylor, F.W. (2001). *Non-LTE radiative transfer in the atmosphere* (World Scientific).
- López-Puertas, M., Rodrigo, R., Molina, A., and Taylor, F.W. (1986). A non-LTE radiative transfer model for infrared bands in the middle atmosphere. I. Theoretical basis and application to CO<sub>2</sub> 15 μm bands. *J. Atmospheric Terr. Phys.* *48*, 729–748.
- López-Valverde, M.A. (1991). *Emisiones infrarrojas en la atmósfera de Marte*. <http://purl.org/dc/dc/mitype/Text>. Universidad de Granada.
- Lowke, J.J., Phelps, A.V., and Irwin, B.W. (1973). Predicted electron transport coefficients and operating characteristics of CO<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–He laser mixtures. *J. Appl. Phys.* *44*, 4664–4671.
- Lyons, W.A. (1994). Characteristics of luminous structures in the stratosphere above thunderstorms as imaged by low-light video. *Geophys. Res. Lett.* *21*, 875–878.
- Lyons, W.A., Nelson, T.E., Armstrong, R.A., Pasko, V.P., and Stanley, M.A. (2003). Upward Electrical Discharges From Thunderstorm Tops. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* *84*, 445–454.
- Mack, J.A., Mikulecky, K., and Wodtke, A.M. (1996). Resonant vibration–vibration energy transfer between highly vibrationally excited O<sub>2</sub>(X 3Σ<sup>-</sup>g,v=15–26) and CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, N<sub>2</sub>, and O<sub>3</sub>. *J. Chem. Phys.* *105*, 4105–4116.
- Marsh, D.R., Mills, M.J., Kinnison, D.E., Lamarque, J.-F., Calvo, N., and Polvani, L.M. (2013). Climate Change from 1850 to 2005 Simulated in CESM1(WACCM). *J. Clim.* *26*, 7372–7391.
- Marshall, R.A., and Inan, U.S. (2005). High-speed telescopic imaging of sprites. *Geophys. Res. Lett.* *32*, L05804.
- Marshall, R.A., and Inan, U.S. Possible direct cloud-to-ionosphere current evidenced by sprite-initiated secondary TLEs. *Geophys. Res. Lett.* *34*.
- McHarg, M.G., Stenbaek-Nielsen, H.C., and Kammae, T. (2007). Observations of streamer formation in sprites. *Geophys. Res. Lett.* *34*, L06804.
- Mende, S.B., Rairden, R.L., Swenson, G.R., and Lyons, W.A. (1995). Sprite spectra; N<sub>2</sub> 1 PG band identification. *Geophys. Res. Lett.* *22*, 2633–2636.
- Mende, S.B., Chang, Y., Chen, A., Frey, H., Fukunishi, H., Geller, S., Harris, S., Heeterdks, H., Hsu, R., and Lee, L. (2006). Spacecraft based studies of transient luminous events. In *Sprites, Elves and Intense Lightning Discharges*, (Springer), pp. 123–149.
- Midey, A.J., Williams, S., Miller, T.M., Larsen, P.T., and Viggiano, A.A. (2002). Investigation of the Reaction of O<sub>3</sub><sup>+</sup> with N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> from 100 to 298 K. *J. Phys. Chem. A* *106*, 11739–11742.

- Milikh, G.M., Usikov, D.A., and Valdivia, J.A. (1998). Model of infrared emission from sprites. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *60*, 895–905.
- Millikan, R.C., and White, D.R. (1963). Vibrational Energy Exchange between N<sub>2</sub> and CO. The Vibrational Relaxation of Nitrogen. *J. Chem. Phys.* *39*, 98–101.
- Montanyà J., van der Velde O., Romero D., March V., Solà G., Pineda N., Arrayas M., Trueba J. L., Reglero V., and Soula S. (2010). High-speed intensified video recordings of sprites and elves over the western Mediterranean Sea during winter thunderstorms. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*.
- Moore, C.B., Wood, R.E., Hu, B., and Yardley, J.T. (1967). Vibrational Energy Transfer in CO<sub>2</sub> Lasers. *J. Chem. Phys.* *46*, 4222–4231.
- Morrill, J., Bucselá, E., Siefiring, C., Heavner, M., Berg, S., Moudry, D., Slinker, S., Fernsler, R., Wescott, E., Sentman, D., et al. (2002). Electron energy and electric field estimates in sprites derived from ionized and neutral N<sub>2</sub> emissions. *Geophys. Res. Lett.* *29*, 100–101.
- Morrill, J.S., Bucselá, E.J., Pasko, V.P., Berg, S.L., Heavner, M.J., Moudry, D.R., Benesch, W.M., Wescott, E.M., and Sentman, D.D. (1998). Time resolved N<sub>2</sub> triplet state vibrational populations and emissions associated with red sprites. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *60*, 811–829.
- Moss, G.D., Pasko, V.P., Liu, N., and Veronis, G. Monte Carlo model for analysis of thermal runaway electrons in streamer tips in transient luminous events and streamer zones of lightning leaders. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *111*.
- Moudry, D., Stenbaek-Nielsen, H., Sentman, D., and Wescott, E. (2003). Imaging of elves, halos and sprite initiation at 1ms time resolution. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *65*, 509–518.
- Neubert, T., Allin, T.H., Stenbaek-Nielsen, H., and Blanc, E. (2001). Sprites over Europe. *Geophys. Res. Lett.* *28*, 3585–3588.
- Neubert, T., Kuvvetli, I., Budtz-Jørgensen, C., Østgaard, N., Reglero, V., and Arnold, N. (2006). The atmosphere-space interactions monitor (ASIM) for the international space station. pp. 19–20.
- Nijdam, S., van Veldhuizen, E.M., and Ebert, U. (2010). Comment on “NO<sub>x</sub> production in laboratory discharges simulating blue jets and red sprites” by H. Peterson et al. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*, A12305.
- Nnadih, O., Martinez, P., Kosch, M., Lotz, S., and Fullekrug, M. (2016). First Ground-Based Observation of Sprites Over Southern Africa and Estimation of Their Physical and Optical Characteristics. AGU Fall Meet. Abstr. 33.
- Omholt, A. (1971). *The Optical Aurora* (Berlin Heidelberg: Springer-Verlag).
- Orr, B.J., and Smith, I.W.M. (1987). Collision-induced vibrational energy transfer in small polyatomic molecules. *J. Phys. Chem.* *91*, 6106–6119.
- Pancheshnyi, S., Eismann, B., Hagelaar, G.J.M., and Pitchford, L.C. ZDPlasKin | Zero-Dimensional Plasma Kinetics solver.
- Parker D. E., Wilson H., Jones P. D., Christy J. R., and Folland C. K. (1996). The impact of mount pinatubo on world-wide temperatures. *Int. J. Climatol.* *16*, 487–497.

- Parra-Rojas, F.C.P. (2015). Electrical discharges in planetary upper atmospheres: thermal and chemical effects. <http://purl.org/dc/dcmitype/Text>. Universidad de Granada.
- Parra-Rojas, F.C., Luque, A., and Gordillo-Vázquez, F.J. (2015). Chemical and thermal impacts of sprite streamers in the Earth's mesosphere. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *120* 2014JA020933.
- Pasko, V.P. (2010). Recent advances in theory of transient luminous events. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*, A00E35.
- Pasko, V.P., and George, J.J. (2002). Three-dimensional modeling of blue jets and blue starters. *J. Geophys. Res. Space Phys.* 1978–2012 *107*, SIA 12-1-SIA 12-16.
- Pasko, V.P., Inan, U.S., Bell, T.F., and Taranenko, Y.N. (1997). Sprites produced by quasi-electrostatic heating and ionization in the lower ionosphere. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *102*, 4529–4561.
- Pasko, V.P., Stanley, M.A., Mathews, J.D., Inan, U.S., and Wood, T.G. (2002). Electrical discharge from a thundercloud top to the lower ionosphere. *Nature* *416*, 152–154.
- Pasko, V.P., Yair, Y., and Kuo, C.-L. (2012). Lightning related transient luminous events at high altitude in the Earth's atmosphere: phenomenology, mechanisms and effects. *Space Sci. Rev.* *168*, 475–516.
- Pasko, V.P., Inan, U.S., and Bell, T.F. Spatial structure of sprites. *Geophys. Res. Lett.* *25*, 2123–2126.
- Passas, M., Sánchez, J., Sánchez-Blanco, E., Luque, A., and Gordillo-Vázquez, F.J. (2016). GRASSP: a spectrograph for the study of transient luminous events. *Appl. Opt.* *55*, 6436–6442.
- Peterson, H., Bailey, M., Hallett, J., and Beasley, W. (2009). NO<sub>x</sub> production in laboratory discharges simulating blue jets and red sprites. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *114*, A00E07.
- Peterson, H., Bailey, M., Hallett, J., and Beasley, W. (2010). Reply to comment by S. Nijdam et al. on “NO<sub>x</sub> production in laboratory discharges simulating blue jets and red sprites.” *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*, A12306.
- Petrov, N.I., and Petrova, G.N. (1999). Physical mechanisms for the development of lightning discharges between a thundercloud and the ionosphere. *Tech. Phys.* *44*, 472–475.
- Peverall, R., Rosén, S., Peterson, J.R., Larsson, M., Al-Khalili, A., Vikor, L., Semaniak, J., Bobbenkamp, R., Le Padellec, A., Maurellis, A.N., et al. (2001). Dissociative recombination and excitation of O<sub>2</sub><sup>+</sup>: Cross sections, product yields and implications for studies of ionospheric airglows. *J. Chem. Phys.* *114*, 6679–6689.
- Phelps, C.T., and Griffiths, R.F. (1976). Dependence of positive corona streamer propagation on air pressure and water vapor content. *J. Appl. Phys.* *47*, 2929–2934.
- Picard, R., Inan, U., Pasko, V., Winick, J., and Wintersteiner, P. (1997). Infrared glow above thunderstorms? *Geophys. Res. Lett.* *24*, 2635–2638.
- Piper, L.G., Velazco, J.E., and Setser, D.W. (1973). Quenching cross sections for electronic energy transfer reactions between metastable argon atoms and noble gases and small molecules. *J. Chem. Phys.* *59*, 3323–3340.
- Qin, J., Celestin, S., and Pasko, V.P. (2012). Minimum charge moment change in positive and negative cloud to ground lightning discharges producing sprites. *Geophys. Res. Lett.* *39*.

- Qin, J., Celestin, S., and Pasko, V.P. (2013). Dependence of positive and negative sprite morphology on lightning characteristics and upper atmospheric ambient conditions. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *118*, 2623–2638.
- Qin, J., Pasko, V.P., McHarg, M.G., Stenbaek-Nielsen, H.C (2014). Plasma irregularities in the D-region ionosphere in association with sprite streamer initiation. *Nature Comm.* *5*, 3740.
- Radzig, A.A., and Smirnov, B.M. (1985). Spectroscopic Characteristics of Atomic Positive Ions. In *Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions*, (Springer, Berlin, Heidelberg), pp. 258–304.
- Rairden, R.L., and Mende, S.B. (1995). Time resolved sprite imagery. *Geophys. Res. Lett.* *22*, 3465–3468.
- Raizer, Y., Milikh, G., and Shneider, M. (2010). Streamer-and leader-like processes in the upper atmosphere: Models of red sprites and blue jets. *J. Geophys. Res.* *115*, A00E42.
- Raizer, Y.P., Milikh, G.M., Shneider, M.N., and Novakovski, S.V. (1998). Long streamers in the upper atmosphere above thundercloud. *J. Phys. Appl. Phys.* *31*, 3255.
- Rakov, V.V.A., and Uman, M.A. (2003). *Lightning: physics and effects* (Cambridge University Press).
- Rassou, S., Labaune, J., Packan, D., and Elias, P.-Q. (2016). Modeling plasma glow discharges in Air near a Mach 3 bow shock with KRONOS. p. GT1.002.
- Refloch, A., Courbet, B., Murrone, A., Villedieu, P., Laurent, C., Gilbank, P., Troyes, J., Tessé, L., Chainey, G., Dargaud, J.B., et al. (2011). CEDRE Software. *AerospaceLab* 1–10.
- Riviere, E., Huret, N., G-Taupin, F., Renard, J., Pirre, M., Eckermann, S., Larsen, N., Deshler, T., Lefevre, F., and Payan, S. (2000). Role of lee waves in the formation of solid polar stratospheric clouds: Case studies from February 1997. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 1984–2012 *105*, 6845–6853.
- Rodger, C.J., Seppälä, A., and Clilverd, M.A. (2008). Significance of transient luminous events to neutral chemistry: experimental measurements. *Geophys. Res. Lett.* *35*, L07803.
- Rodriguez, A., Stuhlmann, R., Tjemkes, S., Aminou, D.M., Stark, H., and Blythe, P. (2009). Meteosat Third Generation: mission and system concepts. In *Infrared Spaceborne Remote Sensing and Instrumentation XVII*, (International Society for Optics and Photonics), p. 74530C.
- Rothman, L., Gordon, I., Babikov, Y., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P., Birk, M., Bizzocchi, L., Boudon, V., and Brown, L. (2013). The HITRAN2012 molecular spectroscopic database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* *130*, 4–50.
- Rycroft M. J., and Odzimek A. (2010). Effects of lightning and sprites on the ionospheric potential, and threshold effects on sprite initiation, obtained using an analog model of the global atmospheric electric circuit. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*.
- Saltelli, A., Tarantola, S., and Chan, K. (1999). A quantitative model-independent method for global sensitivity analysis of model output. *Technometrics* *41*:39--56.
- Sato, M., and Fukunishi, H. (2003). Global sprite occurrence locations and rates derived from triangulation of transient Schumann resonance events. *Geophys. Res. Lett.* *30*, 1859.

Sato, M., Takahashi, Y., Adachi, T., Kobayashi, N., Mihara, M., Ushio, T., Morimoto, T., Suzuki, M., Yamazaki, A., Inan, U., et al. (2013). Photometric Characteristics of Sprites and Elves Derived from JEM-GLIMS Nadir Observations (Invited). AGU Fall Meet. Abstr. 32.

Schulz, G.J. (1964). Vibrational Excitation of  $\text{N}_2$ , CO, and  $\text{H}_2$  by Electron Impact. *Phys. Rev.* *135*, A988–A994.

Sentman, D.D., and Stenbaek-Nielsen, H.C. (2009). Chemical effects of weak electric fields in the trailing columns of sprite streamers. *Plasma Sources Sci. Technol.* *18*, 034012.

Sentman, D.D., and Wescott, E.M. (1993). Observations of upper atmospheric optical flashes recorded from an aircraft. *Geophys. Res. Lett.* *20*, 2857–2860.

Sentman, D.D., Wescott, E.M., Osborne, D., Hampton, D., and Heavner, M. (1995). Preliminary results from the Sprites94 aircraft campaign: 1. Red sprites. *Geophys. Res. Lett.* *22*, 1205–1208.

Sentman D. D., Stenbaek-Nielsen H. C., McHarg M. G., and Morrill J. S. (2008). Plasma chemistry of sprite streamers. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *113*.

Siefring, C.L., Morrill, J.S., Sentman, D.D., and Heavner, M.J. (2010). Simultaneous near-infrared and visible observations of sprites and acoustic-gravity waves during the EXL98 campaign. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *115*, A00E57.

Simek, M. (2003). Determination of  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  metastable density produced by nitrogen streamers at atmospheric pressure: 1. Design of diagnostic method. *Plasma Sources Sci. Technol.* *12*, 421.

Sobol, I.M. (1993). Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models. *Math. Model. Comput. Exp.* *1*:407–414.

Soula, S., Iacovella, F., van der Velde, O., Montanyà, J., Füllekrug, M., Farges, T., Bór, J., Georgis, J.-F., NaitAmor, S., and Martin, J.-M. (2014). Multi-instrumental analysis of large sprite events and their producing storm in southern France. *Atmospheric Res.* *135–136*, 415–431.

Soula, S., Mlynarczyk, J., Füllekrug, M., Pineda, N., Georgis, J.-F., Velde, O. van der, Montanyà, J., and Fabró, F. (2017). Dancing sprites: Detailed analysis of two case studies. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *122*, 3173–3192.

Starikovskaia, S.M., Starikovskii, A.Y., and Zatsepin, D.V. (2001). Hydrogen oxidation in a stoichiometric hydrogen-air mixture in the fast ionization wave. *Combust. Theory Model.* *5*, 97–129.

Stenbaek-Nielsen, H.C., and McHarg, M.G. (2008). High time-resolution sprite imaging: observations and implications. *J. Phys. Appl. Phys.* *41*, 234009.

Stenbaek-Nielsen, H.C., McHarg, M.G., Kanmae, T., and Sentman, D.D. (2007). Observed emission rates in sprite streamer heads. *Geophys. Res. Lett.* *34*, L11105.

Stenbaek-Nielsen, H.C., Kanmae, T., McHarg, M.G., and Haaland, R. (2013). High-Speed Observations of Sprite Streamers. *Surv. Geophys.* *34*, 769–795.

Suszcynsky, D.M., Roussel-Dupré, R., Lyons, W.A., and Armstrong, R.A. (1998). Blue-light imagery and photometry of sprites. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *60*, 801–809.

- Takahashi, Y., Yoshida, K., Sakamoto, Y., and Sakamoi, T. (2010). SPRITE-SAT: A university small satellite for observation of high-altitude luminous events. In *Small Satellite Missions for Earth Observation*, (Springer), pp. 197–206.
- Thoman, J.W., Gray, J.A., Durant, J.L., and Paul, P.H. (1992). Collisional electronic quenching of NO A 2Σ<sup>+</sup> by N<sub>2</sub> from 300 to 4500 K. *J. Chem. Phys.* *97*, 8156–8163.
- Thomas, J.N., Taylor, M.J., Pautet, D., Bailey, M., Solorzano, N.N., Holzworth, R.H., McCarthy, M.P., Kokorowski, M., Sabbas, F.S., Pinto, O., et al. (2007). A very active sprite-producing storm observed over Argentina. *Eos Trans. Am. Geophys. Union* *88*, 117–119.
- Toynbee, H., and Mackenzie, T. (1886). Notice. *Nature*.
- van der Velde, O., Mika, Á., Soula, S., Haldoupis, C., Neubert, T., and Inan, U.S. (2006). Observations of the relationship between sprite morphology and in-cloud lightning processes. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *111*.
- Vialatte, A. (2017). Effets des entrées énergétiques sur les composés azotés dans la haute atmosphère de la Terre (Grenoble Alpes).
- Vitello, P.A., Penetrante, B.M., and Bardsley, J.N. (1994). Simulation of negative-streamer dynamics in nitrogen. *Phys. Rev. E* *49*, 5574–5598.
- Wescott, E., Sentman, D., Stenbaek-Nielsen, H., Huet, P., Heavner, M., and Moudry, D. (2001). New evidence for the brightness and ionization of blue starters and blue jets. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *1978–2012* *106*, 21549–21554.
- Wescott, E.M., Sentman, D., Osborne, D., Hampton, D., and Heavner, M. (1995). Preliminary results from the Sprites94 aircraft campaign: 2. Blue jets. *Geophys. Res. Lett.* *22*, 1209–1212.
- Wescott, E.M., Sentman, D.D., Heavner, M.J., Hampton, D.L., Osborne, D.L., and Vaughan, O.H. Blue starters: Brief upward discharges from an intense Arkansas thunderstorm. *Geophys. Res. Lett.* *23*, 2153–2156.
- Whitaker, M., Biondi, M.A., and Johnsen, R. (1981). Electron-temperature dependence of dissociative recombination of electrons with  $\text{N}_2^+$ . *Phys. Rev. A* *24*, 743–745.
- Wilson, C.T.R. (1924). The electric field of a thundercloud and some of its effects. *Proc. Phys. Soc. Lond.* *37*, 32D.
- Winkler, H., and Notholt, J. (2014). The chemistry of daytime sprite streamers – a model study. *Atmos Chem Phys* *14*, 3545–3556.
- Yair, Y., Price, C., Levin, Z., Joseph, J., Israelevitch, P., Devir, A., Moalem, M., Ziv, B., and Asfur, M. (2003). Sprite observations from the space shuttle during the Mediterranean Israeli dust experiment (MEIDEX). *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *65*, 635–642.
- Yair, Y., Israelevich, P., Devir, A.D., Moalem, M., Price, C., Joseph, J.H., Levin, Z., Ziv, B., Sternlieb, A., and Teller, A. (2004). New observations of sprites from the space shuttle. *J. Geophys. Res. Atmospheres* *109*, D15201.

Yaniv, R., Yair, Y., Price, C., Bór, J. 'zsef, Sato, M., Hobara, Y., Cummer, S., Li, J., and Devir, A. (2014). Ground-based observations of the relations between lightning charge-moment-change and the physical and optical properties of column sprites. *J. Atmospheric Sol.-Terr. Phys.* *107*, 60–67.

Zipf, E.C., Espy, P.J., and Boyle, C.F. The excitation and collisional deactivation of metastable N(<sup>2</sup>P) atoms in auroras. *J. Geophys. Res. Space Phys.* *85*, 687–694.

NIST Chemical Kinetics Database.





## Simulation de la signature infrarouge des phénomènes lumineux transitoires en moyenne atmosphère

Les sprites sont les plus communs des phénomènes lumineux transitoires (TLEs, transient luminous events). Leurs émissions radiatives, dans la gamme du visible, du proche infrarouge et du proche ultraviolet, ont principalement été attribuées à l'excitation des états électroniques de N<sub>2</sub> et N<sub>2</sub><sup>+</sup>. Même s'il n'a encore jamais été observé, l'existence de rayonnement infrarouge moyen et lointain a également été prédite et serait liée aux états vibrationnels de CO<sub>2</sub>. L'intérêt de l'étude du rayonnement infrarouge des sprites est dual. Dans les sciences de l'atmosphère, la composition chimique du milieu peut être retrouvée à travers différentes méthodes de télédétection infrarouge. Pour la Défense, l'émission infrarouge des sprites peut être la cause d'une fausse alarme pour les systèmes de veille optronique satellitaires ou aéroportés. C'est pourquoi il est important de pouvoir caractériser le rayonnement infrarouge des sprites.

Le premier objectif de ce travail est de caractériser la chimie vibrationnelle consécutive à ces phénomènes, car, dans ce contexte, celle-ci constitue un mode de production de rayonnement infrarouge encore partiellement expliqué. Le second est de quantifier les émissions radiatives associées, et de les propager à travers l'atmosphère, vers différents types d'observateurs (au sol, en vol, en orbite).

Pour cela, nous avons développé un modèle de cinétique plasma-vibrationnelle, couplé à un modèle de transfert radiatif atmosphérique. Celui-ci permet de simuler les effets énergétiques et chimiques consécutifs à la perturbation électrique des streamers, principaux éléments constitutifs des sprites.

Grâce à cet outil, nous avons montré que les streamers peuvent affecter les concentrations des états vibrationnels de CO<sub>2</sub>, et conduire à de fortes signatures dans l'infrarouge moyen et lointain. Ces signatures devraient être détectables pour un observateur situé dans la stratosphère et dans l'espace. Les effets des incertitudes associées aux principaux paramètres du modèle sur les signatures de sortie ont été hiérarchisés et quantifiés à travers une étude de sensibilité. Ces travaux ont permis de définir des spécifications instrumentales (fréquence d'acquisition, résolution spatiale et spectrale, bandes spectrales...) pour le futur spectro-imageur de la mission HALESIS (High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro-imagery), qui aura pour but d'acquies des images hyperspectrales infrarouges de l'atmosphère localement perturbée par des TLEs.

**Mots-clés :** CHIMIE PLASMA ; CHIMIE ATMOSPHERIQUE ; TRANSFERT RADIATIF

## Simulation of the infrared signature of transient luminous events in the middle atmosphere

Sprites are the most common type of transient luminous events (TLEs). In the visible, near infrared and near ultraviolet, their emissions have been related to the excitation of electronic states of N<sub>2</sub> and N<sub>2</sub><sup>+</sup>. Even if it hasn't been observed yet, the existence of emissions in the middle and far infrared is suspected and could be related to vibrational excitation of CO<sub>2</sub>. There is a dual interest in the study of infrared emissions following a sprite. In atmospheric sciences, the chemical composition can be retrieved through different remote sensing methods. For the Defense, infrared emissions of sprites could cause false alarms through airborne and spaceborne optronic detection systems. This is why it is necessary to explain infrared emissions of sprites. The first objective of this work is to characterize the vibrational chemistry consecutive to this phenomenon, which is a partially understood way to produce infrared emissions. The second objective is to quantify these emissions and to propagate them through the atmosphere, toward different kinds of observers (ground based, in flight, in orbit).

To do so, we have developed a model of plasma-vibrational kinetics, coupled to an atmospheric radiative transfer model. We used this model to evaluate the energetic and chemical effects following the electrical perturbation caused by the propagation of streamers, main constituent elements of sprites.

Thanks to this tool, we showed that streamers can affect the concentrations of vibrational CO<sub>2</sub> and lead to strong emissions in the middle and far infrared. These signatures could be detectable for an observer situated in the stratosphere and in space. The effects of the uncertainties of the principal parameters of the model on the output infrared signatures have been ranked and quantified through a sensitivity analysis. This work allowed defining instrumental specifications (acquisition frequency, spectral and spatial resolution, spectral bands...) for the future spectro-imager of the HALESIS (High Altitude Luminous Events Studied by Infrared Spectro-imagery) mission, which will record hyperspectral infrared images of the atmosphere locally disturbed by TLEs.

**Keywords :** PLASMA CHEMISTRY ; ATMOSPHERIC CHEMISTRY ; RADIATIVE TRANSFER