



Propagation du rayonnement en milieu diffusant. Etude de la transition entre le regime balistique et le regime diffusif et des fluctuations temporelles d'intensite

Rachid Elaloufi

► To cite this version:

Rachid Elaloufi. Propagation du rayonnement en milieu diffusant. Etude de la transition entre le regime balistique et le regime diffusif et des fluctuations temporelles d'intensite. domain_other. Ecole Centrale Paris, 2003. Français. NNT: . tel-00003084

HAL Id: tel-00003084

<https://theses.hal.science/tel-00003084>

Submitted on 3 Jul 2003

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.

THESE

présentée par

Rachid Elaloufi

pour l'obtention du

GRADE de DOCTEUR

Formation doctorale : Physique-Energétique

Laboratoire d'accueil : **Laboratoire d'Energétique Moléculaire et Macroscopique,
Combustion (EM2C) du CNRS et de l'ECP**

Propagation du rayonnement en milieu diffusant. Étude de la transition entre régime balistique et régime diffusif et des fluctuations temporelles d'intensité.

Soutenue le 6 mars 2003

Composition du jury :	MM.	Boccara	C.	Rapporteur
		Carminati	R.	
		Greffet	J.-J.	
		Maret	G.	Président
		Sebbah	P.	Rapporteur
		Tualle	J.-M.	

Propagation du rayonnement en milieu diffusant.
Étude de la transition entre régime balistique et régime
diffusif et des fluctuations temporelles d'intensité

Rachid Elaloufi

6 mai 2003

Réussir, c'est réaliser son rêve

Jacques Brel

*Connaître son ignorance est
la meilleure part de la connaissance*
proverbe chinois

Remerciements

Tout a commencé le jour où je me suis décidé à entamer une année Socrates-Erasmus à l'École Supérieure d'Optique à Orsay durant l'année scolaire 97-98. Cela devait être un aller-retour! En janvier, il fallait chercher mon futur stage de fin d'études. Parmi l'ensemble des propositions, il y avait un sujet qui m'intéressait plus que les autres. Ce sujet parlait de microscopie, de champ proche, de pointe tétraédrique, d'ondes évanescentes, ... J'ai décidé de me présenter à ce stage. J'ai téléphoné de suite, à un des deux responsables de ce sujet. C'était un certain Jean-Jacques Greffet. Qui aurait su que ce coup de fil du mois de mars de l'année 1998 allait tout simplement avoir des conséquences sur les 5 prochaines années? Après un entretien, j'ai effectivement commencé mon stage de fin d'études sous la direction de Jean-Jacques Greffet et de ... Rémi Carminati : mon co-encadrant de stage.

Ils travaillent tous deux au laboratoire EM2C (Energétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion) à l'Ecole Centrale Paris. Ce laboratoire était dirigé lors de mon stage, par Monsieur Jean-Pierre Martin. Je tiens vivement à le remercier de m'avoir accueilli au sein du laboratoire mais aussi Nasser Darabiha qui a repris le flambeau de la direction du laboratoire.

Il me fallait très peu de temps pour m'apercevoir que mes deux encadrants proposaient un sujet de stage qui ne remplirait certainement pas les fonds de tiroir mais bien au contraire, répondrait à des questions et à des polémiques que se posent les chercheurs. Comment refuser une thèse en ayant comme co-directeurs deux chercheurs passionnés qui partagent et qui savent partager leur passion. Après une année d'absence, je me suis lancé dans cette aventure qu'est la thèse de doctorat.

Je tiens à remercier sincèrement Jean-Jacques Greffet pour m'avoir appris les fondements même de la recherche scientifique au plus haut niveau et pour tout ce qu'il m'a transmis. Je le remercie également pour son honnêteté intellectuelle, pour ses précieux conseils, son sens de la pédagogie, son engagement envers tous ses thésards. C'est une personne passionnée et passionnante. L'une de ses forces, c'est peut-être son bagage multiculturel tant au niveau humain que scientifique. Merci encore de m'avoir intégré dans ton groupe, Jean-Jacques !

Mon co-encadrant de stage et de thèse, la personne qui m'a suivi de très près se nomme Rémi Carminati. Je le remercie énormément pour *tout*. Il me faudra bien plus d'un paragraphe pour développer le *tout*. Ceci dit, je le considère comme le moteur de ma thèse. Lui-même ancien thésard de Jean-Jacques Greffet, il a su, à son tour, montrer ses grandes valeurs humaines et pédagogiques. J'ai, de part ma personnalité et involontairement, mesuré à plusieurs reprises sa grande patience. Je tiens à préciser que, durant toutes ces années, j'ai pu apprécier sa grande disponibilité, surtout en deuxième année, où il arrivait

à bloquer un bout de temps sur son agenda surchargé, ses encouragements, sa patience, ses nombreux conseils, son approche pour aborder un problème, ses compétences et surtout son efficacité. Je suis content et fier d'être son premier stagiaire et thésard, j'espère ne pas l'avoir trop déçu et énervé ;-). Merci et encore merci, Rémi !

Le jour de la soutenance, j'ai eu l'honneur d'avoir comme président de jury, Monsieur Georg Maret. Je tiens vivement à le remercier pour tout l'intérêt scientifique qu'il a porté sur les différents sujets présentés lors de la soutenance de thèse. Je remercie également mes deux rapporteurs du manuscrit de thèse : Messieurs Claude Boccara et Patrick Sebbah ainsi que Jean-Michel Tualle qui a accepté d'être parmi les membres du jury.

Une thèse c'est de la recherche, ce sont des calculs, ce sont aussi des liens d'amitiés qui se créent entre personnes. Il y bien entendu l'ensemble de ma génération de thésards avec qui j'ai passé 36 mois inoubliables. Je pense notamment à :

Stéphane Durant avec qui j'ai passé d'excellentes et longues nuits ... blanches au labo et ailleurs ainsi que les très longues discussions portant sur la vie, eh oui on philosophe la nuit! Nous nous sommes auto-supportés l'un l'autre jusqu'à la dernière seconde de la thèse.

Jean-Philippe Mulet qui est quelqu'un de vraiment exceptionnel et avec qui j'ai passé de très bons moments notamment lors de nombreuses discussions sur les problèmes scientifiques et les problèmes de logiques mathématiques et d'autres choses...bien évidemment!

Merci à Thierry Schuller, Alix Lemaire, Christine Deron, Manuel Tancrez, Renan Hilbert, Stéphane Jay, Romain Baron et Bertrand Varoquié.

Parmi l'ensemble des thésards je dois remercier tout particulièrement Ngoc Bich Tran avec qui une réelle amitié belgo-maroco-hispanico-vietnamienne s'est installée. J'espère que cette grande amitié durera longtemps à travers le temps et l'espace.

À la génération suivante, je remercie mon voisin de bureau et grand ami, Cédric Rey pour toutes les sorties et découvertes qu'on a pu faire ensemble à Paris. Merci également aux trois passionnés de voitures : Ferry Tap, Mohamed Embouazza et Fabien Defransure. Merci aussi au Jedi Wilfried Wintrebert. Je remercie également une amie qui vient de la *Catalunya* au sud de l'Europe et avec qui j'ai discuté maintes fois de ... l'Espagne : Anna-Maria Pubill Melsiò. Comment remercier une personne que je côtoie depuis plus de 10 ans, avec qui j'ai passé une bonne partie de mes études à l'ULB, quelqu'un qui a un esprit vif et direct? Peut-être en disant tout simplement merci Hazem El-Rabii.

De la génération suivante, je tiens à remercier Marjorie Thomas à qui je souhaite beaucoup de bonheur et ce à tous les niveaux. Je porte toutes mes salutations et remerciements à François Marquier, Mickael Lecanu et Marta de la Cruz.

Et enfin à la génération entrante, celle qui a commencé en octobre 2002, je tiens à dire Bonne Route en Thèse. J'ai, en très peu de temps, noué des liens d'amitiés notamment avec Nathalie Dioc, Weeded Ghedhaifi, Marine Laroche, et surtout Émile Fakhouri. Je leur dis merci. Finalement, une dernière pensée amicale à Ghislain Singla, David Galley, Guillaume Ribert et Barbar Zeghondi.

Bien entendu, j'ai également côtoyé les *autres* générations de thésards. Je salue et remercie tous ceux qui m'ont donné de la joie, des conseils et surtout transmis un savoir. Je pense notamment à Rodolphe Duval, Mohammed Aguir, Ronnie Knikker, Christophe Nottin, Sébastien Ducruix, Amita Tripathi, Olivier Gicquel, Olivier Calvo-Perez et tant d'autres...

Un grand merci aux cop's que je retrouve chaque fois que je rentre en Belgique. Ils m'ont motivé à fond...Merci.

Merci également à tous les membres du laboratoire notamment mon voisin de bureau : Philippe Rivière. Merci également à l'ensemble du personnels rattachés à la direction de la Recherche de l'ECP.

Mes derniers remerciements reviennent tout naturellement aux personnes qui me sont les plus chères : ma famille au sens large du terme. Je tiens vivement à la remercier pour tout ce qu'elle m'a appris et apporté tant au niveau de mes études qu'au niveau de la vie de tous les jours. Merci à mes cousines, cousins, tantes, oncles, belles-soeurs, soeurs et frères pour leurs encouragements qui, pour moi, étaient véritablement une source de motivation tout au long de la thèse et en dehors. Finalement, je rends de grands hommages et remerciements à mon père et ma mère, deux personnes à qui je dois tout.

Résumé

Nous étudions la propagation d'une impulsion lumineuse à travers un milieu diffusant. La propagation peut être décrite par l'équation de transfert radiatif en régime dynamique (ETR). Nous proposons une méthode de résolution en géométrie plane. Elle consiste à appliquer la méthode des ordonnées discrètes dans le domaine fréquentiel de l'ETR. Nous calculons ainsi le flux d'énergie directionnel transmis et rétrodiffusé en fonction du temps et de l'angle.

Dans la seconde partie, nous étudions la validité de l'approximation de la diffusion. Cependant, l'expression théorique du coefficient D en milieu absorbant varie selon l'approche adoptée. Une nouvelle approche fondée sur l'analyse du mode fondamental de l'ETR est développée. Sans faire aucune hypothèse concernant le niveau d'absorption, nous obtenons une nouvelle définition et interprétation de D .

La troisième partie est consacrée à l'étude de la transition entre le régime balistique et le régime diffusif. Nous montrons que les réflexions internes jouent un rôle important pour les systèmes à faible épaisseur optique. Nous montrons ainsi que le régime diffusif est atteint aux temps longs, pour des systèmes de taille 8 ltr où ltr est la longueur de transport.

Enfin, dans la dernière partie, nous modélisons la corrélation temporelle du signal diffusé. Deux théories (QELS et DWS) permettent de modéliser respectivement le signal en diffusion simple et en régime diffusif. Nous avons développé un modèle décrivant les deux régimes ainsi que le régime intermédiaire. Le modèle est fondé sur une approche de type marche au hasard et sur la résolution de l'équation de transfert radiatif dynamique. Ce modèle a permis de décrire des expériences récentes de mesures de fluctuations temporelles de champs et d'intensité dans le régime de diffusion multiple intermédiaire.

Abstract

We study the propagation of light pulses through scattering media using the time-dependant radiative transfer equation (RTE). The standard discrete-ordinate method is used to solve this equation in the space-frequency domain in a slab geometry. We calculate both the diffuse and ballistic transmission and the backscattered signal for each direction.

We revisit the definition of the diffusion coefficient D for light transport in scattering and absorbing media. From an asymptotic analysis of the transport equation, we present a novel derivation of the diffusion coefficient, which is restricted neither to low absorption nor to a situation in which the specific intensity is quasi-isotropic.

We study the transition between the diffusive and the non-diffusive regimes. We observe a non-diffusive behavior for the systems whose thickness L is smaller than $8 \ell_{tr}$ where ℓ_{tr} is the transport mean-free path. We show also that the value of the effective diffusion coefficient in the non-diffusive region is strongly affected by internal reflections.

Finally, we propose a model for the temporal correlation function of scattered intensity, which is based on a random walk approach and the solution of the time-dependant RTE. This model describes the evolution of the correlation function during the transition from the single-scattering regime to the diffusive regime. It increases the range of validity of the previous QELS and DWS theories, which were valid for single-scattering and in the diffusive regime, respectively. Our model permits us to describe recent measurements of temporal fluctuations in the intermediate regime of multiple scattering.

Table des matières

I	Introduction	1
II	Équation de Transfert Radiatif en régime instationnaire	11
II.1	Introduction	13
II.2	Grandeurs radiatives	13
II.2.1	Luminance, flux et densité d'énergie	13
II.2.2	Extinction, absorption et diffusion	14
II.2.3	Fonction de phase	16
II.2.4	Exemples de fonction de Phase	17
II.3	Équation de Transfert Radiatif	18
II.3.1	Bilan d'énergie	18
II.3.2	Echelles de longueur	20
II.3.3	Fondements de l'ETR	21
II.4	Résolution de l'ETR en géométrie plane	23
II.4.1	Géométrie du système étudié	24
II.4.2	Méthode de résolution	25
II.4.3	Solution de l'équation homogène	30
II.4.4	Spectre des valeurs propres	31
II.4.5	Solution particulière	31
II.4.6	Solution générale	32
II.4.7	Conditions aux limites pour la luminance	32
II.4.8	Solution globale	34
II.5	Grandeurs de sortie	34
II.5.1	Luminance collimatée	34
II.5.2	Luminance diffuse	35
II.5.3	Flux diffusé réfléchi et transmis	36
II.6	Exemples de calculs dans un cas statique	37
II.6.1	Convergence	37
II.6.2	Conservation d'énergie	37
II.6.3	Comportement diffusif dans les milieux optiquement épais	39
II.7	Exemples de calculs dans un cas dynamique	41
II.7.1	Exemple : I	41
II.7.2	Exemple : II	44
II.8	Conclusion	48

III	Coefficient de diffusion en milieu diffusant et absorbant	49
III.1	Introduction	50
III.2	Approximation de la diffusion	50
III.2.1	Introduction	50
III.2.2	Différentes approximations	51
III.3	Coefficient de diffusion généralisé	53
III.3.1	Expression générale du flux d'énergie	53
III.3.2	Approche asymptotique	54
III.3.3	Définition du coefficient de diffusion	55
III.3.4	Discussion physique	56
III.4	Discussion et illustration des résultats	58
III.4.1	Modes propres et discussion physique	58
III.4.2	Coefficient de diffusion en fonction de l'absorption	61
III.4.3	Coefficient de diffusion en fonction de g	61
III.5	Approximation de la diffusion en régime temporel	64
III.5.1	Transmission dynamique à travers une couche plane	64
III.5.2	Importance du choix du coefficient de diffusion	66
III.6	Conclusion	68
IV	Diffusive to ballistic transition in dynamic light transmission through thin scattering slabs: A radiative transfer approach	71
IV.1	Introduction	73
IV.2	Time-dependent Radiative Transfer Equation	74
IV.3	Decay time and effective diffusion coefficient	76
IV.4	Comparison to experimental results	78
IV.5	Dispersion relation for the RTE	80
IV.6	Conclusion	83
V	Fluctuations temporelles : extension de la théorie de la spectroscopie par ondes diffusives.	87
V.1	Introduction	88
V.2	Théorie de la spectroscopie par ondes diffusives	89
V.2.1	Fonctions de corrélations du champ électromagnétique	89
V.2.2	Mesures homodynes et hétérodynes	92
V.2.3	Calcul de la fonction de corrélation en diffusion multiple	92
V.3	Mise en évidence expérimentale des transitions entre régimes	96
V.3.1	Interférométrie à faible longueur de cohérence	96
V.3.2	Mesures de fluctuations à longueur de chemin fixée en détection hétérodyne	98
V.4	Extension de la théorie DWS	105
V.4.1	Calcul de la fonction de corrélation du champ	106
V.4.2	Densité spectrale de puissance	107
V.4.3	Cas limite du régime diffusif	108

V.5	Comparaison du modèle aux résultats expérimentaux	109
V.5.1	Comparaison aux résultats de Bizheva <i>et al.</i>	110
V.5.2	Comparaison aux résultats de Wax <i>et al.</i>	112
V.6	Conclusion	114
V.7	Perspective	114
A	Coefficients de Fresnel	119
A.1	Coefficients de réflexion et de transmission en amplitude	119
A.2	Coefficients de réflexion et de transmission en énergie	120
B	Quadrature de Gauss	123
B.1	Définition	123
B.2	Propriétés	124
B.3	Cas général	124
B.4	Exemple	125
B.5	Quadrature de deux milieux séparés par une interface	126
C	Résolution du système d'équations homogènes	129
C.1	Solution homogène	129
D	Calcul du flux transmis en approximation de la diffusion	131
E	Valeurs et vecteurs propres de $\mathcal{M}$	133
F	Calcul du moment d'ordre 1 de la fonction de phase	135
G	Calcul de la densité de probabilité $P(n, s)$	137
G.1	La distribution de Poisson	137
G.2	Convergence de la loi de Poisson vers la loi de Gauss	138
	Références	139

Chapitre I

Introduction

L'Homme n'a cessé d'observer le monde qui l'entoure. Ces observations de la nature l'ont amené à *essayer* de donner une interprétation, une explication, une description pour chaque type de phénomènes observés. Pour pouvoir interpréter notamment tous ces phénomènes physiques, l'esprit humain a créé, découvert et utilisé les mathématiques. Cela a servi non seulement à décrire mais aussi à prédire des situations physiques bien précises. Parmi tous ces domaines d'*observation* de la nature, nous citerons par exemple ceux qui ont suscité la curiosité et l'intérêt de nos anciens et de nos contemporains : l'astronomie, la mécanique, la chimie et bien d'autres activités scientifiques. Un grand intérêt est apparu pour la lumière et tous les phénomènes qui y sont associés. On notera par exemple les phénomènes de réflexion, de réfraction par une interface, la diffraction ou encore les interférences.

Nous nous sommes intéressés dans le cadre de cette thèse de doctorat aux phénomènes de diffusion (*scattering*) de la lumière dans des milieux aléatoires appelés également milieux diffusants. Il est à noter qu'en langue française, le terme *diffusion* désigne deux phénomènes physiques bien distincts. Dans un premier cas, par exemple pour la lumière, il désigne une redistribution des directions de propagations après interaction avec un objet. En anglais, ce phénomène est appelé *scattering*. Le deuxième phénomène caractérise le transport d'une grandeur (par exemple la chaleur) dans un régime où le flux est proportionnel au gradient de la densité associée (par la température). Ce phénomène s'appelle *diffusion* en anglais.

Le phénomène de diffusion (*scattering*) de la lumière se rencontre partout dans notre vie quotidienne. En effet, le bleu du ciel, la couleur blanche du lait, le scintillement des étoiles, l'absorption de la peinture, le halo du phare des voitures en présence de brouillard sont des exemples de situations où la diffusion de la lumière est responsable de l'effet observé.

L'étude de la diffusion des ondes électromagnétiques dans des milieux aléatoires concerne plusieurs domaines d'applications.

- En astrophysique, la spectroscopie du rayonnement émis par une étoile permet de

déterminer la composition chimique de celle-ci. Cependant, le rayonnement est diffusé par les poussières interstellaires et par l'atmosphère avant d'arriver au niveau du détecteur [Chandrasekhar (1960)]. Ainsi l'étude de cette diffusion est nécessaire pour remonter au spectre du rayonnement initial émis par l'étoile en question.

- En radio-télécommunications, l'étude de la propagation des ondes dans l'atmosphère permet de déterminer par exemple un domaine de fréquences électromagnétiques acceptables où l'onde est peu diffusée et surtout peu absorbée.

- La diffusion par des surfaces rugueuses (peintures, couches minces, etc.) [Ogilvy (1991)] a un énorme champ d'applications notamment dans les domaines de la furtivité des avions, de la cosmétique, de la microscopie, de la médecine, etc. L'étude de la diffusion par des surfaces rugueuses est un sujet de recherche en soit [Tsang *et al.* (2000)]. Par exemple, il a été montré que le couplage entre la diffusion volumique et surfacique peut être découplé lorsque la rugosité de la surface assez faible [Durant (2003)].

- Depuis une dizaine d'année, l'optique dans le domaine du visible et de l'infrarouge fournit un apport considérable à l'imagerie médicale. En effet, un nouveau défi est mis en jeu : faire de l'imagerie des tissus vivants. Des techniques d'imagerie médicale utilisant des sources et détecteurs dans le domaine du visible et infrarouge ont été développées depuis peu [Mandelis (2000), Gao *et al.* (2002), Yodh et Chance (1995), Gayen et Alfano (1996), Das *et al.* (1993), Wang *et al.* (1991)]. Ces techniques d'imagerie dans le visible ne se situent pas aux quatre grandes techniques dites *classiques* : l'imagerie par résonance magnétique nucléaire, l'échographie (ultrason), les rayons X et les isotopes radioactifs. Elles s'inscrivent plutôt comme complémentaires par rapport aux autres techniques d'imagerie médicale où le but finalement est de voir l'invisible permettant ainsi d'apporter une aide substantielle au diagnostic d'un grand nombre de pathologies et de prévenir des maladies ceci en augmentant la précision et la résolution des images obtenues. Tout l'intérêt est de rechercher des techniques d'imagerie qui d'un point de vue économique sont peu coûteuses mais aussi et surtout non intrusives pour le patient.

- Le domaine de la télédétection est également fondé sur les phénomènes de la diffusion des ondes électromagnétiques à la surface de la Terre et bien d'autres domaines encore.

Prenons un exemple concret afin de comprendre les différentes échelles caractérisant une lumière diffusée : les nuages ! Lorsqu'il fait beau, les objets ont une ombre projetée sur le sol bien définie ce qui permet de déterminer la position et donc la direction du soleil. Par contre, lorsque le temps est nuageux, les objets n'ont pas d'ombre bien définie. La source de lumière n'est plus directive. La lumière a tout simplement été diffusée. L'intensité de la source de lumière (qui est initialement directive) s'atténue de manière exponentielle en fonction de la distance parcourue : c'est la loi de Beer-Lambert qui est caractérisée par une échelle de longueur qu'on appelle libre parcours moyen d'extinction. L'intensité s'est atténuée car il peut y avoir tout au long du parcours deux types de phénomènes qui contribuent à l'atténuation : l'absorption et la diffusion. L'absorption convertit le rayonnement incident en chaleur tandis que la diffusion redistribue dans l'espace le rayonnement incident. Elles sont caractérisées par les libres parcours moyen d'absorption et de diffusion. Ce sont les distances moyennes parcourues dans le milieu pour qu'il y ait un événement

d'absorption ou de diffusion. À l'intérieur du nuage, la lumière diffusée sera isotrope ou quasi-isotrope au bout d'une certaine distance car elle aura subi un grand nombre d'événements de diffusion et donc aura perdu sa directivité initiale. La distance à partir de laquelle, nous pouvons considérer que la lumière diffusée est quasi-isotrope, s'appelle la libre parcours moyen de transport. Cet exemple relativement simple introduit des notions importantes. Les échelles caractéristiques d'un milieu sont : son épaisseur physique, les libres parcours moyen de diffusion, d'absorption et de transport. Leurs valeurs relatives nous renseignent sur le caractère plutôt diffusant, absorbant, transparent ou opaque du milieu. Par exemple, si l'épaisseur physique du milieu est plus grande devant le libre parcours moyen de diffusion, on est en régime de **diffusion multiple**. Dans le cas contraire, on est en régime de **diffusion simple**.

La concentration des particules dans un milieu diffusant joue un rôle important et caractérise les régimes de diffusion **dépendante** ou **indépendante**. En effet, si les particules sont suffisamment diluées dans le milieu, le coefficient d'extinction C_{ext} exprimé en m^{-1} se calcule par la relation suivante :

$$C_{ext} = \frac{1}{l_{ext}} = \frac{3}{4\pi} \frac{\sigma_{ext}}{a^3} f$$

où les quantités a , f et σ_{ext} sont respectivement le rayon moyen des particules, la fraction volumique des particules dans le milieu et la section efficace d'extinction en m^2 pour une particule. Nous observons que la relation qui lie le coefficient d'extinction et la fraction volumique est linéaire. Tant que cette relation linéaire est vérifiée, nous sommes en régimes de diffusion indépendante. Dans ce cas, les propriétés diffusantes d'un élément de volume contenant des particules sont identiques à chaque particule prise de manière isolée. Les particules n'interagissent pas entre elles. Par contre, toute déviation par rapport à cette relation est une marque d'une diffusion dépendante. La déviation par rapport à la loi linéaire s'accroît au fur et à mesure que la fraction volumique augmente. La déviation peut-être positive ou négative par rapport à la droite selon la taille des particules par rapport à la longueur d'onde. Des expériences [Ishimaru et Kuga (1982)] ont été réalisées afin de déterminer le coefficient d'extinction en fonction de la fraction volumique. La zone linéaire est obtenue pour les faibles fractions volumiques. La déviation commence à se faire sentir pour une fraction volumique atteignant quelques pourcents. Des calculs théoriques et numériques basés sur des modèles [Tsang, Mandt, et Ding (1992), Hespel (1999)] ont pu reproduire ce comportement. Nous nous placerons dans le cadre de cette thèse dans des cas où les milieux sont suffisamment dilués pour être en régime de diffusion indépendante.

Bien entendu, la longueur d'onde, la polarisation et la phase de l'onde incidente ont un impact direct sur les caractéristiques de la lumière diffusée dans des milieux aléatoires. Par exemple, la rétrodiffusion cohérente est un phénomène d'interférences qui est purement dû à l'aspect ondulatoire de la lumière. Ce phénomène est également appelé la *localisation faible* [Anderson (1958), Akkermans, Wolf, et Maynard (1986), Wolf et Maret

(1985), Wiersma, van Albada, van Tiggelen, et Lagendijk (1995)]. En effet, deux ondes ayant suivi des chemins multiples réciproques interfèrent constructivement.

Nous voyons à travers ces quelques exemples que l'étude de la diffusion de la lumière met en jeu les notions de diffusion multiple et simple, de diffusion indépendante et dépendante, les caractéristiques de l'onde incidente et du milieu en question.

Par conséquent, la diffusion de la lumière dans un milieu composé de particules dont la disposition se fait de manière aléatoire est un sujet qui est complexe en soi et difficile à modéliser. En effet, une théorie déterministe ne peut être développée et seule une approche statistique est envisageable. Le champ émergent du milieu est alors une variable aléatoire. Deux approches ont été développées afin de traiter les problèmes de la diffusion dans des milieux aléatoires. La première approche est basée sur la théorie ondulatoire décrite par les équations de Maxwell. La seconde approche quant à elle est une théorie phénoménologique qu'on nomme *théorie de transfert radiatif* qui est fondée sur l'équation de transfert radiatif que l'on désignera tout au long de ce manuscrit par les initiales : ETR.

L'ETR exprime le bilan d'énergie lumineuse dans un élément de volume où il peut y avoir de la diffusion, de l'absorption et de l'émission. La grandeur de base de l'ETR est la luminance (appelée également intensité spécifique). L'ETR est une équation intégral-différentielle du même type que l'équation de Boltzmann décrivant le transport d'un ensemble de particules classiques. Initialement, l'ETR a été développée pour l'astrophysique [Schuster (1905), Schwarzschild (1906), Chandrasekhar (1960)], puis dans le domaine de la neutronique où l'équation qui régit le transport des neutrons a la même structure que l'équation de transfert radiatif [Case et Zweifel (1967)]. Cette approche phénoménologique ne prend pas en compte les effets de cohérence.

La description de la propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu aléatoire dans le cadre d'une approche ondulatoire est fondée sur les équations de Maxwell pour des champs aléatoires. L'équation qui décrit la moyenne sur un ensemble des réalisations du milieu est appelée *équation de Dyson*. Tandis que la fonction de corrélation du champ est régie par l'*équation de Bethe-Salpeter* [Frisch (1966)]. Cette théorie prend en compte l'aspect ondulatoire du champ et tous les phénomènes qui y sont associés tels que la rétrodiffusion cohérente et la localisation forte contrairement à l'ETR qui est une théorie incohérente.

Ces deux théories ont évolué de manière indépendantes jusqu'à ce qu'un fondement ondulatoire de l'ETR soit proposé. En effet, la luminance a été définie dans le cadre de l'électrodynamique classique comme étant la transformée de Wigner de la fonction de corrélation du champ électromagnétique [Walther (1968), Walther (1973), Wolf (1978)]. L'ETR devient une limite de l'équation de Bethe-Salpeter sous l'hypothèse d'un milieu quasi-uniforme pour la fonction de corrélation du champ [Tualle (1996), Mandel et Wolf (1995), Apresyan et Kravtsov (1996), Frisch (1967), Barabanenkov et Finkel'berg (1967)].

Dans le cadre de cette thèse, nous avons abordé la description de la **diffusion dynamique** de la lumière par des milieux aléatoires en utilisant l'équation de transfert radiatif en régime **instationnaire**.

L'intérêt d'étudier le régime instationnaire se trouve dans l'utilisation actuelle de sources lumineuses impulsionnelles ultra-courtes (la largeur de l'impulsion est de l'ordre de $100fs$) et des détecteurs de plus en plus sensibles et rapide dans des techniques d'imagerie, ainsi que dans l'imagerie de systèmes dynamiques. Ceci est particulièrement vrai dans le domaine de l'imagerie médicale, auquel nous nous intéressons dans la suite.

La diffusion de la lumière en proche infrarouge a un énorme potentiel dans l'imagerie médicale. En général, l'imagerie optique consiste à éclairer un tissu par une source lumineuse et à mesurer la lumière rétrodiffusée ou transmise. L'étude de ce signal permettra d'analyser ce tissu, et de détecter, par exemple, la présence d'une tumeur. Nous notons l'existence d'autres méthodes qui n'utilisent pas le signal diffusé mais plutôt le signal cohérent. Nous citerons par exemple la microscopie confocale où un groupe de chercheurs à l'ESPCI est impliqué. Mais revenons à l'imagerie utilisant la lumière diffusée. Une manière d'augmenter le contraste des images obtenues, est d'éclairer le tissu par une impulsion lumineuse et de discriminer temporellement le signal diffusé. Les premiers photons sortant du milieu ou du tissu sont ceux qui se sont propagés rectilignement. Ce sont les *photons balistiques*. Viennent ensuite les photons qui ont subi quelques événements de diffusions, ils se propagent presque en ligne droite. On les appelle les *snake photons* en anglais. Les photons qui sont restés longtemps dans le milieu ont subi de multiples événements de diffusion. Ils sont en régime diffusif et leur transport obéit à l'équation de diffusion [Ishimaru (1978)]. La sélection des premiers photons traversant le milieu peut permettre d'augmenter le contraste de l'image lorsqu'on utilise une technique d'imagerie point par point [Gayen et Alfano (1996), Liu, Yoo, et Alfano (1994)]. Cette application nous montre tout l'intérêt d'étudier en détails la propagation d'impulsion dans des milieux aléatoires.

Un autre domaine qui motive l'étude de la propagation d'impulsion lumineuse dans des milieux diffusants à partir de l'ETR est celui des nanotechnologies. Un problème rencontré est celui du transport de chaleur aux courtes échelles de temps et d'espace [Tien et Chen (1994)]. Par exemple en ce qui concerne la conduction thermique, le transport de phonons sur des distances de quelques dizaines de nanomètres peut être décrit par une équation de transport qui est du même type que l'ETR [Majumdar (1993), Tien et Chen (1994), Chen (1999), Chen (2001)].

Nous exposons dans le chapitre 2 un rappel sur les grandeurs de bases de la radiométrie telles que le flux radiatif, la luminance, la densité d'énergie, les différentes échelles caractéristiques et la fonction de phase. Ces grandeurs radiométriques sont utiles pour écrire l'équation de transfert radiatif en régime instationnaire. Nous décrivons ensuite une méthode de résolution de l'ETR en régime instationnaire en géométrie plane. Nous présentons une méthode de résolution qui consiste à résoudre une équation qui a la même

structure que l'ETR en régime stationnaire mais dans le domaine fréquentiel. La source lumineuse est une onde plane dont la forme temporelle est une impulsion gaussienne. Nous écrivons également les conditions aux limites exactes pour une interface plane. Ces conditions aux limites prennent en compte les coefficients de **Fresnel** aux interfaces et les réflexions internes dans le milieu. Nous écrivons la solution générale de l'ETR pour la luminance diffuse sur la base des modes propres du système d'équations. Nous pouvons calculer la luminance collimatée transmise et réfléchie, les flux surfaciques diffus directionnels ou intégrés, en transmission ou en réflexion en fonction du temps pour une épaisseur donnée du milieu. Nous pouvons également nous placer dans le cas statique, où nous calculons les flux diffusés en fonction de l'épaisseur du milieu. Ceci permet en particulier de valider notre code de calcul dans le cas statique par rapport à des mesures expérimentales du flux transmis total. Dans le cas instationnaire, nous comparerons notre méthode de résolution de l'ETR par rapport à d'autres méthodes de calculs existantes.

Nous avons jusqu'ici parlé de deux approches permettant de décrire la propagation de la lumière dans les milieux diffusants (approche ondulatoire statistique et ETR). Dans certains cas, on peut utiliser l'approximation de la diffusion. C'est le cas si l'on s'intéresse à une échelle de temps plus grande que les temps caractéristiques du système (largeur de l'impulsion lumineuse, temps de vol,...) et une échelle de longueur qui est grande par rapport au libre parcours moyen de transport. Le régime où l'approximation de la diffusion est valable s'appelle le *régime diffusif*. La propagation de la densité d'énergie aux grandes échelles spatio-temporelles peut être décrite par une équation parabolique appelée *équation de diffusion*. Cette équation est de même type que celle de l'équation de la chaleur décrivant la conduction thermique. Le terme *diffusion* utilisé ici pris dans le même sens que la diffusion de la chaleur. En effet, aux grandes échelles, la densité d'énergie lumineuse s'étale de la même manière que la chaleur dans un milieu. Le seul paramètre dans cette équation, qui décrit les propriétés physiques du milieu est le coefficient de diffusion D . Il existe différentes approximations qui à partir de l'ETR ou de l'approche ondulatoire statistique permettent d'aboutir à l'équation de diffusion. L'intérêt de cette équation est qu'elle est plus simple à résoudre que l'ETR. En effet, l'équation de diffusion ne tient pas compte de la variation angulaire mais seulement des variations spatio-temporelles de la densité d'énergie. Par contre, l'expression du coefficient de diffusion D varie selon l'approche utilisée pour démontrer l'équation de diffusion. Il est important de définir un coefficient de diffusion qui traduise le plus justement les propriétés du milieu. Ce sera l'objet du chapitre 3.

Parmi les approximations existantes, l'approximation $P1$ décrite dans l'ouvrage d'Ishimuru [Ishimaru (1978)] est la plus couramment utilisée. Cette approximation consiste à représenter la luminance par un développement en harmonique sphérique et à s'arrêter à l'ordre 1. Cette approche est valable dans le cas où la luminance est quasi-isotrope et le milieu est faiblement absorbant. Une autre approche définit un coefficient de diffusion qui ne dépendrait pas de l'absorption [Durian (1998), Furutsu et Yamada (1994)]. Mais de récents travaux théoriques montrent clairement que le coefficient de diffusion dépend

de l'absorption du milieu [Aronson et Corngold (1999)].

Nous avons développé au cours du chapitre 3 une nouvelle approche de l'approximation de la diffusion. Cette approche est basée sur une analyse asymptotique des modes de l'ETR. Chaque mode angulaire est caractérisé par une longueur de décroissance. Le mode associé à la plus grande longueur est celui qui persistera aux grandes échelles du milieu. Les autres modes seront complètement atténués. Nous ne faisons aucune hypothèse concernant la répartition angulaire de la luminance et de l'absorption du milieu. Le coefficient de diffusion obtenu par cette approche décrit correctement les effets de diffusion et d'absorption.

À titre d'exemple, nous présentons une illustration de la nouvelle définition du coefficient de diffusion. Elle réside dans le calcul du flux transmis hémisphérique temporel qui émerge d'un slab. Le calcul de ce flux se fait de deux manières différentes. Le premier calcul est obtenu en résolvant l'ETR. Tandis que le second est obtenu à partir de l'équation de diffusion. En prenant comme calcul de référence la solution de l'ETR, nous comparons la solution de l'équation de diffusion pour différentes expressions du coefficient de diffusion. Nous montrons que le choix de la définition du coefficient de diffusion est crucial notamment pour déterminer la décroissance de l'intensité transmise aux temps longs.

Le domaine de validité de l'approximation de la diffusion n'est pas clairement défini. En effet, il est connu que le régime diffusif en régime statique est atteint pour les milieux à une grande épaisseur optique. Mais qu'en est-il en régime dynamique? Lorsqu'on s'intéresse au flux transmis hémisphérique en fonction du temps, l'équation de diffusion décrit-elle le bon comportement de ce flux aux temps longs? Certainement pour les milieux optiquement épais. Par contre, pour les milieux optiquement mince, l'équation de diffusion est-elle encore valable aux temps longs? L'article suivant [Yoo, Liu, et Alfano (1990)] donne une réponse affirmative à cette question. Par contre, l'étude expérimentale présentée dans [Kop, de Vries, Sprik, et Lagendijk (1997)] montre que pour les systèmes minces, l'approximation de diffusion ne permet pas de prédire le comportement aux temps longs. Nous montrons par une analogie précise que l'approximation de la diffusion n'est pas valable pour les milieux optiquement minces, même aux temps longs.

Nous présentons dans le quatrième chapitre, une étude théorique et numérique de la transition du régime balistique au régime diffusif de la diffusion de la lumière dans des milieux diffusants. Nous faisons cette étude à partir de l'ETR instationnaire. En effet, nous calculons le flux hémisphérique transmis en fonction du temps à travers une tranche de matériau sur lequel une impulsion lumineuse est envoyée. Nous déterminons à partir de la décroissance exponentielle de ce flux calculé, une constante de temps τ et cela pour différentes épaisseurs L de couche. De cette constante de temps et de l'épaisseur L du milieu, nous définissons un coefficient de diffusion effectif. Nous exposons des calculs qui montrent comment ce coefficient de diffusion effectif dépend de l'indice effectif du milieu et de l'épaisseur de ce même milieu. Nous montrons que le rôle des réflexions internes dans le milieu diffusant prend de l'ampleur lorsque celui-ci a une faible épaisseur optique.

Nous retrouvons quantitativement un résultat expérimental [Kop, de Vries, Sprik, et Lagendijk (1997)] montrant l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de l'épaisseur du slab.

Nous décrivons comment à partir de la relation de dispersion de l'ETR, nous pouvons déterminer la transition entre les régimes non-diffusifs et diffusifs. Les résultats obtenus sont conformes aux conclusions du troisième chapitre.

Une application de l'étude de la diffusion de la lumière par un milieu aléatoire, est la détermination d'informations sur les diffuseurs dans ce milieu. Ces informations sont par exemples le rayon moyen de particules diffusantes se trouvant dans un liquide, la viscosité de ce liquide, le coefficient de diffusion associé au mouvement brownien de ces particules, etc. L'étude de la diffusion dynamique de la lumière due à l'aspect dynamique des particules trouve des applications dans le domaine de la spectroscopie, de la biologie, de la chimie [Berne et Pecora (2000)] ou de l'imagerie médicale [Sebbah (2001)]. La technique qui consiste à étudier les fluctuations temporelles de l'intensité rétrodiffusée ou diffuse transmise par un milieu diffusant mais dont l'origine se trouve dans le déplacement aléatoire (mouvement brownien) des particules, s'appelle la *Diffusion Dynamique de la lumière* ou en anglais *Dynamic Light Scattering*.

L'analyse de la fonction de corrélation temporelle de l'intensité due à la diffusion des particules diffusantes permet de déterminer les propriétés du milieu énoncées dans le paragraphe précédent. L'étude peut se faire soit dans le domaine temporel (fonction de corrélation) soit dans le domaine spectral (densité spectrale de puissance).

Dans le milieu, au plus les photons subissent d'événements de diffusion, au plus le signal de sortie sera temporellement décorrélé. Il existe deux régimes extrêmes de diffusion qui sont la diffusion simple et le régime diffusif. Pour chacun de ces régimes, des techniques basées sur des théories bien établies ont été développées. Dans le premier cas, l'analyse des variations temporelles de l'intensité diffusée par le milieu dans le cadre de la diffusion simple a permis de développer une technique qui est largement utilisée notamment dans le domaine de la spectroscopie et de la biologie [Bloomfield et Lim (1978), Berne et Pecora (2000)], et appelée en anglais *Quasi-Elastic Light Scattering (QELS)*. Dans le second cas, l'étude se fait dans le régime diffusif où les photons ont subi énormément d'événements de diffusion dans le milieu [Maret et Wolf (1987)]. La théorie associée a été développée à la fin des années 1980 [Maret et Wolf (1987), Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)]. Cette technique porte le nom de *Diffusing Wave Spectroscopy (DWS)* en anglais.

Il y a quelques années, des mesures de fluctuations temporelles du signal diffusé ont été réalisées à longueur de chemin parcouru dans le milieu fixé. En effet, pour chaque longueur de chemin parcouru par les photons, des mesures de fluctuations temporelles du champ diffusé (*détection hétérodyne*) [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)] ou de l'intensité diffusée (*détection homodyne*) [Boas, Bizheva, et Siegel (1998)] ont été réalisées. Dans

les deux cas, la technique de mesure est fondée sur l'interférométrie à faible longueur de cohérence.

Ainsi, cette technique de mesure permet d'analyser le signal tant en diffusion simple qu'en régime diffusif mais également dans le régime intermédiaire qui est largement utilisé dans le domaine de l'imagerie bio-médicale. Cependant, les théories **QELS** et **DWS** ne prédisent que les comportements extrêmes que sont la diffusion simple et le régime diffusif mais pas le régime intermédiaire. L'extension de la théorie **DWS** au régime intermédiaire est l'objet de notre dernier chapitre.

Nous exposons dans le cinquième chapitre les différentes étapes de la théorie de la **DWS**, la technique de l'interférométrie à faible longueur de cohérence. Nous montrons ensuite des résultats d'expériences mesurant la densité spectrale de puissance de l'intensité rétrodiffusée et également du champ diffusé. Nous développons par la suite, un modèle permettant de décrire le comportement des régimes de diffusion simple, multiple et de l'intermédiaire. Nous retrouvons quantitativement les courbes expérimentales et l'on décrit complètement la transition. Nous montrons tout l'intérêt de la solution de l'équation transfert radiatif en régime instationnaire dans le modèle qui a été développé dans le cadre la diffusion dynamique de la lumière.

Chapitre II

Équation de Transfert Radiatif en régime instationnaire

Table des matières

II.1	Introduction	13
II.2	Grandeurs radiatives	13
II.2.1	Luminance, flux et densité d'énergie	13
II.2.2	Extinction, absorption et diffusion	14
II.2.3	Fonction de phase	16
II.2.4	Exemples de fonction de Phase	17
II.3	Équation de Transfert Radiatif	18
II.3.1	Bilan d'énergie	18
II.3.2	Echelles de longueur	20
II.3.3	Fondements de l'ETR	21
II.4	Résolution de l'ETR en géométrie plane	23
II.4.1	Géométrie du système étudié	24
II.4.2	Méthode de résolution	25
II.4.3	Solution de l'équation homogène	30
II.4.4	Spectre des valeurs propres	31
II.4.5	Solution particulière	31
II.4.6	Solution générale	32
II.4.7	Conditions aux limites pour la luminance	32
II.4.8	Solution globale	34
II.5	Grandeurs de sortie	34
II.5.1	Luminance collimatée	34
II.5.2	Luminance diffuse	35

II.5.3	Flux diffusé réfléchi et transmis	36
II.6	Exemples de calculs dans un cas statique	37
II.6.1	Convergence	37
II.6.2	Conservation d'énergie	37
II.6.3	Comportement diffusif dans les milieux optiquement épais . .	39
II.7	Exemples de calculs dans un cas dynamique	41
II.7.1	Exemple: I	41
II.7.2	Exemple: II	44
II.8	Conclusion	48

II.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous rappelons les définitions des grandeurs radiatives dont nous aurons besoin pour établir l'équation de transfert radiatif ETR en régime instationnaire. Les grandeurs radiatives seront définies selon une approche phénoménologique. La grandeur de base est la luminance qui est proportionnelle au flux d'énergie. Lorsqu'on éclaire un milieu par une onde électromagnétique, celle-ci s'atténue au fur et à mesure qu'elle pénètre dans le milieu. Cette atténuation est le fruit de deux processus : l'absorption et la diffusion. Dans le premier cas, une partie de l'énergie est transformée en chaleur tandis que dans le second cas, l'énergie est redistribuée dans tout l'espace. Ces deux processus sont décrits par les coefficients d'absorption monochromatique κ_ν et de diffusion monochromatique σ_ν . Nous rappelons également les notions de la fonction de phase. Ensuite, nous établissons l'ETR à partir d'un bilan d'énergie sur un élément de volume. Nous proposons une méthode de résolution numérique de l'ETR pour une géométrie plane, fondée sur la méthode des ordonnées discrètes dans le domaine spectral de l'ETR. Nous établissons également les conditions aux limites qui tiennent compte des interfaces physiques. Nous devons finalement résoudre un système d'équations différentielles du premier ordre. Ainsi nous pouvons calculer les flux surfaciques monochromatiques directionnels ou hémisphériques, transmis ou réfléchi par le milieu. Nous présentons un exemple de calcul du flux transmis et réfléchi hémisphérique dans un cas statique. Plusieurs exemples de calculs dans le cas instationnaire sont présentés et comparés à d'autres méthodes de résolution de l'ETR. Parmi ces méthodes, il y a l'approximation de la diffusion qui consiste à résoudre après quelques hypothèses et approximations sur la luminance, une équation de type parabolique où apparaît un coefficient de diffusion. Cependant, il existe plusieurs approches qui aboutissent à des coefficients de diffusion différents. Ce point sera discuté plus en détail au prochain chapitre. Ainsi nous décrivons le comportement du flux surfacique transmis et réfléchi à travers une tranche de milieu et validons notre méthode de résolution numérique de l'équation de transfert radiatif en régime instationnaire.

II.2 Grandeurs radiatives

II.2.1 Luminance, flux et densité d'énergie

II.2.1.1 Luminance

Le flux d'énergie radiative monochromatique P_ν traversant un élément de surface dS centré au point $\mathbf{r} = (x, y, z)$, dans un angle solide élémentaire $d\Omega$ centré sur la direction $\mathbf{u}$, dans l'intervalle de fréquences $[\nu, \nu + d\nu]$ et au temps t a pour expression :

$$P_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dS d\Omega d\nu \quad [W] \quad (\text{II.1})$$

La surface $dS' = \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} dS$ est la surface apparente depuis la direction $\mathbf{u}$ (Fig. II.1). $L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)$ est la luminance qui dépend de la position $\mathbf{r}$, de la direction $\mathbf{u}$ d'observation, du temps t et de la fréquence ν [Chandrasekhar (1960)]. La luminance s'exprime en $[W/(m^2.sr.Hz)]$ en unité SI.

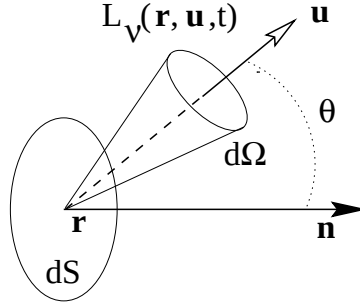


FIG. II.1 – Définition de la luminance

II.2.1.2 Vecteur flux radiatif

Le vecteur flux radiatif $\mathbf{q}$, qui est une quantité non directionnelle, s'exprime en fonction de la luminance L par :

$$\mathbf{q}_\nu(\mathbf{r}, t) = \int_{4\pi} L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) \mathbf{u} \, d\Omega \quad (\text{II.2})$$

Le flux de ce vecteur à travers une surface dS correspond au flux d'énergie radiative. Le vecteur $\mathbf{q}$ qui est défini ici dans un cadre purement radiométrique, joue le même rôle que le vecteur de Poynting défini dans le cadre de la théorie électromagnétique [Ishimaru (1978), p.166].

II.2.1.3 Densité d'énergie

La densité d'énergie au point $\mathbf{r}$, à l'instant t et pour un rayonnement de fréquence ν est donnée par la relation suivante :

$$u_\nu(\mathbf{r}, t) = \int \frac{L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)}{c} \, d\Omega \quad \left[\frac{J}{m^3 \, Hz} \right] \quad (\text{II.3})$$

On définit une densité d'énergie directionnelle : $u_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)/c$. La valeur c correspond à la vitesse de propagation de l'énergie qui correspond au rapport de la luminance et de la densité d'énergie. Nous pouvons relier $u_\nu(\mathbf{r}, t)$ à la densité volumique de photons $n_\nu(\mathbf{r}, t)$ et au quantum d'énergie photonique $h\nu$ par la relation suivante : $u_\nu(\mathbf{r}, t) = n_\nu(\mathbf{r}, t) h\nu$. Ceci donne une interprétation corpusculaire de ce qu'est la densité d'énergie.

II.2.2 Extinction, absorption et diffusion

Si l'on éclaire un objet par une onde électromagnétique, celui-ci va soit absorber une partie de l'énergie du champ, soit la diffuser, autrement dit la redistribuer dans tout l'espace. Si l'on s'intéresse à l'énergie se propageant dans une direction déterminée

(un faisceau par exemple), alors ces deux processus sont responsables de l'extinction de l'énergie électromagnétique incidente. On peut écrire cela symboliquement sous la forme :

$$Extinction = Absorption + Diffusion$$

On parle d'un milieu absorbant lorsque le processus d'absorption prédomine sur celui de la diffusion. Par exemple, l'encre de Chine diluée dans de l'eau ou des suies dans une fumée vont plutôt absorber une partie du rayonnement visible incident que la diffuser. En effet, lorsqu'on les observe, elles apparaissent noires. Par contre, les nuages sont plutôt diffusant dans le domaine visible qu'absorbant : ils apparaissent blancs.

II.2.2.1 Absorption

Soit un flux d'énergie radiative monochromatique P_ν se propageant dans un milieu absorbant dans l'élément d'angle solide $d\Omega$, au point $\mathbf{s}$, **normalement** à la surface dS . Sur un élément de longueur ds , une fraction dP_ν de l'énergie sera absorbée. De manière tout à fait générale, on écrit :

$$dP_\nu(\mathbf{s} + d\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) = -\kappa_\nu P_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) ds \quad (\text{II.4})$$

Le coefficient κ_ν introduit dans cette expression est le coefficient d'absorption monochromatique. Sa dimension en SI est m^{-1} . Son inverse $l_\nu^a = 1/\kappa_\nu$ est le libre parcours moyen d'absorption.

II.2.2.2 Diffusion

En ce qui concerne le processus d'extinction par diffusion, nous pouvons faire exactement le même raisonnement que pour l'absorption. Dans le processus de diffusion, une fraction de l'énergie se propageant initialement dans la direction $\mathbf{u}$ est diffusée dans une direction $\mathbf{u}'$ différente, ce qui contribue donc à l'extinction dans la direction $\mathbf{u}$. On introduit le coefficient σ_ν qui a également une dimension en m^{-1} . Son inverse $l_\nu^s = 1/\sigma_\nu$ est le libre parcours moyen de diffusion.

II.2.2.3 Extinction

Nous avons vu que l'extinction d'un faisceau lumineux dans un milieu est le résultat des processus d'absorption et de diffusion. Nous introduisons ici le coefficient d'extinction qui vaut :

$$\beta_\nu = \sigma_\nu + \kappa_\nu \quad [m^{-1}] \quad (\text{II.5})$$

Son inverse correspond à la longueur d'extinction : $l_\nu^{ext} = 1/\beta_\nu$. Ainsi l'extinction du flux d'énergie d'un faisceau collimaté dans un milieu est due à l'absorption et à la diffusion, et décroît selon la loi de Beer-Lambert : $\exp(-\beta_\nu s)$

II.2.2.4 Albédo

L'albédo représente la proportion d'énergie lumineuse diffusée par un corps éclairé. Il est défini par :

$$a_\nu = \frac{\sigma_\nu}{\beta_\nu} = \frac{\sigma_\nu}{\sigma_\nu + \kappa_\nu} \quad (\text{II.6})$$

Si l'albédo vaut 0, le milieu est purement absorbant. S'il vaut 1, le milieu est purement diffusant.

II.2.3 Fonction de phase

Lors de la diffusion, l'énergie est redistribuée dans tout l'espace, la fonction $p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u})$ décrit cette distribution. En effet, la fonction de phase *moyenne* (ou fonction angulaire de diffusion) représente la probabilité pour qu'un flux d'énergie arrivant sur l'élément de volume dV selon un angle solide $d\Omega'$ centré autour de la direction $\mathbf{u}'$ soit diffusé dans l'angle solide $d\Omega$ centré autour de la direction $\mathbf{u}$. Il existe différentes normalisations de la fonction de phase [Ishimaru (1978),p.157] selon les auteurs. Nous avons choisi celle-ci :

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) d\Omega' = 1 \quad (\text{II.7})$$

Si la fonction de phase est constante, on parle de *diffusion isotrope* (répartition équiprobable de l'énergie dans toutes les directions de l'espace). Sinon on parle de *diffusion anisotrope*.

II.2.3.1 Paramètre d'anisotropie

Le paramètre d'anisotropie g mesure le degré d'anisotropie de la diffusion. Il est défini comme étant la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion pondérée par la fonction de phase :

$$g = \frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}' d\Omega \quad (\text{II.8})$$

Lorsque la valeur de g tend vers 1, c'est que la diffusion s'effectue plutôt dans la direction du flux d'énergie incident. Par contre, lorsque $g \rightarrow -1$, c'est que la diffusion se fait dans le sens contraire de la direction incidente. Pour une diffusion isotrope, $g = 0$.

II.2.3.2 Dépendance angulaire

La fonction de phase dépend de l'angle d'incidence et de l'angle de diffusion. Mais pour des particules ayant une certaine symétrie (des sphères par exemple), la fonction de phase ne dépend que de l'angle relatif entre les deux directions. En coordonnées sphériques,

on a $\mathbf{u}(\theta, \phi)$ et $\mathbf{u}'(\theta', \phi')$. Le cosinus de l'angle relatif est fonction des coordonnées des deux directions par la relation suivante :

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}' = \cos \Theta = \mu \mu' + \sqrt{1 - \mu^2} \sqrt{1 - \mu'^2} \cos(\phi - \phi') \quad (\text{II.9})$$

où $\mu = \cos \theta$ et $\mu' = \cos \theta'$.

II.2.4 Exemples de fonction de Phase

II.2.4.1 Fonction de phase constante

La plus simple des fonctions de phase est celle qui est constante. La diffusion dans ce cas-là est purement isotrope, le facteur d'anisotropie vaut exactement 0.

$$p(\cos \Theta) = 1 \quad (\text{II.10})$$

II.2.4.2 Fonction de phase de Rayleigh

Si la particule est non absorbante, très petite devant la longueur d'onde (particule dite de "Rayleigh") de l'onde incidente, elle se comportera comme un dipôle électrique. Dans le cas où l'onde incidente est non polarisée, la fonction de phase est la suivante :

$$p(\cos \Theta) = \frac{3}{4}(1 + \cos^2 \Theta) \quad (\text{II.11})$$

II.2.4.3 Fonction de phase de Henyey-Greenstein

Un modèle qui est très bien adapté, notamment dans le domaine de l'imagerie médicale, est celui de la fonction de phase de Henyey-Greenstein (H-G) [Thomas et Stamnes (1999)]. Cette fonction dépend du cosinus de l'angle relatif entre la direction incidente et la direction de la diffusion : $\cos \Theta$ et du facteur d'anisotropie g .

$$p(\cos \Theta) = \frac{1 - g^2}{\sqrt{(1 + g^2 - 2g \cos \Theta)^3}} \quad (\text{II.12})$$

On peut montrer que cette fonction de phase obéit à la normalisation définie par l'équation (II.7)

II.2.4.4 Fonction de phase de Mie

La théorie de Mie consiste en la résolution exacte de la diffusion d'une onde plane électromagnétique par une particule sphérique, homogène et optiquement isotrope [van de Hulst (1981), Bohren et Huffman (1983)]. Si l'on fournit :

- l'indice de la particule : n_p ;
- l'indice du milieu hôte : n_h ;

- le rayon de la particule : r ;
- la longueur d'onde de l'onde incidente dans le milieu hôte : $\lambda = \lambda_0/n_h$.

Alors la théorie de Mie nous fournit :

- les sections efficaces d'extinction, de diffusion et d'absorption;
- l'albédo : a ;
- la fonction de phase : $p(\cos \Theta)$;
- le paramètre d'anisotropie g

en fonction du paramètre de taille : $X = 2\pi r/\lambda$. Ceci est rigoureux pour une seule particule. Si l'on suppose que la diffusion est *indépendante* et que l'on donne la concentration des particules dans le milieu, nous pouvons obtenir par de simples relations, les longueurs d'extinction, de diffusion et d'absorption et la fonction de phase du milieu.

II.2.4.5 Développement sur les polynômes de Legendre

Dans le cas général, la fonction de phase $p_\nu(\cos \Theta)$ peut être développée sur la base des polynômes de Legendre.

$$p(\cos \Theta) = \sum_{n=0}^M a_n P_n(\cos \Theta) \quad (\text{II.13})$$

Les a_n sont les coefficients de développement et $P_n(\cos \Theta)$ sont les polynômes de Legendre de degré n . La série converge en un nombre fini de terme selon la précision voulue. Le nombre de termes sera déterminé par l'anisotropie de la fonction de phase. Plus elle est anisotrope, plus il faudra de termes dans le développement. Il existe plusieurs méthodes de troncature de la fonction de phase, notamment pour celle qui doit décrire une diffusion fortement anisotrope [Thomas et Stamnes 1999]. Si l'on développe par exemple la fonction de phase de H-G sur la base des polynômes de Legendre, nous avons la relation suivante : $a_n = g^n$.

II.3 Équation de Transfert Radiatif

II.3.1 Bilan d'énergie

L'équation qui décrit l'évolution du flux d'énergie est une équation phénoménologique fondée sur un bilan d'énergie. Le bilan algébrique du flux d'énergie s'effectue sur un élément de volume dV de longueur ds . Comme décrit plus haut, les contributions négatives sont l'absorption et la diffusion. Le processus de diffusion peut contribuer positivement au bilan d'énergie. En effet, le flux d'énergie provenant de l'élément d'angle solide $d\Omega'$ centré autour de la direction $\mathbf{u}'$ peut être diffusé dans l'élément d'angle solide $d\Omega$ centré

sur $\mathbf{u}$. La fraction d'énergie diffusée dans la direction $\mathbf{u}$ s'obtient en intégrant sur toutes les directions incidentes afin de tenir compte des diffusions constructives :

$$dP_\nu(\mathbf{s} + d\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) = \frac{\sigma_\nu}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) P_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}', t) d\Omega' ds$$

Le bilan d'énergie s'effectue dans l'élément de volume V décrit dans la figure II.2, les

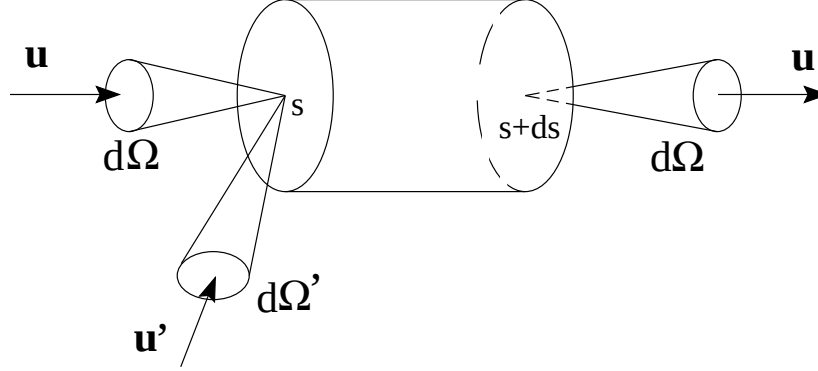


FIG. II.2 – *Système choisi pour le bilan d'énergie*

contributions négatives sont l'absorption et la diffusion tandis que la contribution positive est la diffusion venant d'autres directions. Nous ne traiterons dans cette thèse que des cas où le milieu est dit "froid". Nous travaillerons en effet dans le domaine du visible et proche infrarouge pour lequel à température ambiante (300 K) l'émission thermique est négligeable devant les processus d'absorption et de diffusion¹. Soit la densité d'énergie directionnelle $u_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t)$ reliée par la luminance $L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t)$ par la relation suivante :

$$u_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) = \frac{L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t)}{c} \quad (\text{II.14})$$

où c est la vitesse de propagation de l'énergie. Le bilan d'énergie sur l'élément de volume V s'écrit formellement :

énergie sortante = énergie entrante – rayonnement disparu + rayonnement apparu

$$\begin{aligned} V u_\nu(\mathbf{s} + c dt, \mathbf{u}, t + dt) &= + V u_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) \\ &\quad - c dt (\kappa_\nu + \sigma_\nu) V u_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) \\ &\quad + c dt \frac{\sigma_\nu}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) V u_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}', t) d\Omega' \end{aligned}$$

1. loi de Wien: $\lambda_{max}(\mu m) \approx 3000/T$, à 300 K le flux maximal émis se situe autour de $10\mu m$ (infrarouge)

En réarrangeant cette équation et en utilisant la relation (II.14), nous obtenons :

$$\frac{L_\nu(\mathbf{s} + c \, dt, \mathbf{u}, t + dt) - L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t)}{c \, dt} = -(\kappa_\nu + \sigma_\nu) L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) + \frac{\sigma_\nu}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}', t) d\Omega'$$

Lorsque la variation dt tend vers zéro, nous pouvons remplacer le membre de gauche par la dérivée matérielle de la luminance :

$$\frac{1}{c} \frac{d}{dt} L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) = -(\kappa_\nu + \sigma_\nu) L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}, t) + \frac{\sigma_\nu}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) L_\nu(\mathbf{s}, \mathbf{u}', t) d\Omega'$$

La dérivée matérielle $\frac{d}{dt}$ (point de vue de Langrange) peut s'exprimer en fonction de la dérivée partielle (point de vue d'Euler) par la relation suivante :

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + c \mathbf{u} \cdot \nabla$$

Nous obtenons finalement l'équation de transfert radiatif (ETR) instationnaire qui dans le domaine temporel [Ishimaru (1978)] s'écrit :

$$\boxed{\left[\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \right] L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = -\beta_\nu L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) + \frac{\sigma_\nu}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}', t) d\Omega'}$$

(II.15)

II.3.1.1 Discussion

L'ETR (équation (II.15)) décrit l'évolution spatio-temporelle de la luminance à travers un milieu diffusant et absorbant et où, dans notre cas, l'émission thermique est négligeable. Dans le cas général, la luminance à fréquence fixée est fonction de six variables indépendantes : trois coordonnées de position, deux coordonnées angulaires pour la direction de propagation et la variable temporelle.

L'ETR est une équation intégral-différentielle dont la résolution analytique est compliquée, sauf dans quelques cas particuliers relativement simples. Par exemple dans le cas où l'on a un milieu statistiquement homogène, transparent ($\kappa_\nu = 0$) et non diffusant ($\sigma_\nu = 0$) (ex : le vide), on retrouve la propriété de conservation de la luminance $dL_\nu/ds = 0$ le long de la trajectoire autrement dit la loi de Clausius. Tandis que dans un milieu hétérogène d'indice n , non absorbant, non diffusant et dans les limites de l'optique géométrique [(Apresyan et Kravtsov 1996), p.25], on a $d(L_\nu/n^2)/ds = 0$. Cette propriété sera utilisée par la suite pour l'écriture des conditions aux limites entre deux milieux d'indices différents.²

2. Dans le cas tout à fait général, où le milieu n'est pas homogène, dispersif (i.e la fréquence ν est susceptible de changer au cours de la propagation de l'énergie), transparent et non diffusant, la grandeur conservative est : $\frac{L_\nu}{n^2 \nu^3}$.

II.3.2 Echelles de longueur

Nous avons vu que l'extinction d'un faisceau lumineux est due à l'absorption et à la diffusion dans le milieu. Nous pouvons distinguer plusieurs régimes de propagation en comparant les libres parcours moyen (lpm) de diffusion, d'absorption et l'épaisseur du milieu L . Ces longueurs correspondent à la distance moyenne pour qu'un événement de diffusion ou d'absorption ait lieu.

- Si $L \leq \{l_s, l_a\}$, régime balistique,
- Si $l_s \approx L < l_a$, régime de diffusion simple,
- Si $l_s \ll L < l_a$, régime de diffusion multiple,
- Si $L \geq \{l_s, l_a\}$, régime où l'on a de la diffusion et de l'absorption.

II.3.2.1 Libre parcours moyen de transport

Dans un milieu sans perte, le libre parcours moyen de diffusion l_s décrit la décroissance du faisceau collimaté : I_c . En effet, après traversée d'une longueur L du milieu, nous avons $I_c = I_0 \exp(-L/l_s)$. Mais nous ne pouvons pas dire si le milieu est translucide ou pas. L'énergie perdue par le faisceau collimaté est redistribuée de manière diffuse. Il existe une échelle de longueur, appelée libre parcours moyen de transport et noté l_{tr} , qui caractérise l'évolution de la luminance diffuse. Cette longueur de transport nous renseigne sur la distance à partir de laquelle la luminance diffuse perd totalement sa direction initiale. Autrement dit le rayonnement devient quasi-isotrope. Pour déterminer cette longueur, nous utilisons un modèle de photons effectuant une marche aléatoire dans le milieu diffusant. Les photons subiront en moyenne une diffusion à chaque longueur de diffusion parcourue : l_s . L'angle de diffusion par rapport à la direction initiale sera en moyenne égale à $\langle \cos \Theta \rangle$ qui est en fait le paramètre d'anisotropie : g . La longueur totale parcourue par les photons qui ont subi N événements de diffusions sera égale à : $L_N = \sum_{i=1}^N l_s \langle \cos \Theta \rangle^{i-1}$. Lorsque $N \rightarrow \infty$, nous avons :

$$l_{tr} = \frac{l_s}{1 - g} \quad (\text{II.16})$$

II.3.2.2 Épaisseur Optique

L'épaisseur optique L^* qui est une grandeur adimensionnée, nous renseigne sur le nombre moyen d'événements de diffusion et/ou d'absorption que la luminance a subi sur une distance de longueur L :

$$L^* = L\beta \quad (\text{II.17})$$

Si l'épaisseur optique est beaucoup plus grande que l'unité, alors on se trouve en régime de diffusion multiple et/ou d'absorption forte.

II.3.3 Fondements de l'ETR

La théorie de transfert radiatif est une théorie phénoménologique fondée sur une analyse de la conservation de l'énergie. La grandeur de base est la luminance $L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)$ qui comme on l'a vu est proportionnelle à la puissance rayonnée. Les autres grandeurs phénoménologiques introduites dans la théorie sont les coefficients d'absorption κ , de diffusion σ et la fonction de phase $p(\mathbf{u}', \mathbf{u})$. Est-ce que ces notions phénoménologiques trouvent une justification théorique sur la base des équations de Maxwell? La réponse à cette question a suscité de nombreux travaux tentant de déduire la théorie de transfert radiatif des équations de Maxwell. En effet, à partir d'une théorie statistique du champ électromagnétique, on aboutit à une équation qui décrit la propagation du champ moyen dans un milieu aléatoire, c'est l'équation de Dyson. Une deuxième équation est établie pour la fonction de corrélation du champ: $\Gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t_1, t_2) = \langle E(\mathbf{r}_1, t_1) E^*(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle$, c'est l'équation de Bethe-Salpeter [Sheng (1995), Apresyan et Kravtsov (1996), Frisch (1966), Frisch (1967)].

En effectuant différentes approximations suffisantes mais pas forcément nécessaires sur l'équation de Bethe-Salpeter [Apresyan et Kravtsov (1996), Tualle (1996), Ryzhik, Papanicolaou, et Keller (1996), Lagendijk et van Tiggelen (1996)], on peut en déduire l'ETR. Cette démarche passe par une définition de la luminance à partir du champ électromagnétique. Walther [Walther (1968), Walther (1973), Marchand et Wolf (1974)] a proposé en 1968, une expression de la luminance qui est proportionnelle à la transformée de Wigner [Bartelt *et al.* (1980)] de la fonction de corrélation du champ. Cette expression s'exprime de la manière suivante :

$$L(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 \int \Gamma(\mathbf{r}_1 = \mathbf{r} + \frac{\mathbf{R}}{2}, \mathbf{r}_2 = \mathbf{r} - \frac{\mathbf{R}}{2}) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{u}\cdot\mathbf{R}} d\mathbf{R} \quad (\text{II.18})$$

Les variables spatiales $\mathbf{r} = (\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2)/2$ et $\mathbf{R} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$ décrivent respectivement les variations lentes et rapides de la fonction de corrélation du champ. La quantité $\mathbf{u}$ apparaît comme étant la variable conjuguée de $\mathbf{R}$ qui décrit les variations rapides de la fonction de corrélation du champ.

On peut raisonner de la même façon dans le domaine temporel, en définissant la quantité suivante :

$$L_\nu(t) = L(t, \nu) = \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 \int \Gamma(t_1 = t + \frac{T}{2}, t_2 = t - \frac{T}{2}) e^{-i\nu T} dT \quad (\text{II.19})$$

La variable $t = (t_1 + t_2)/2$ représente la variation lente de l'enveloppe temporelle de la fonction de corrélation du champ. La transformée de Fourier temporelle de la luminance fait apparaître la variable conjuguée ω . Cette TF représente le contenu spectral de l'enveloppe. La variable $T = t_1 - t_2$ représente les variations rapides de la fonction de corrélation. On lui associe la variable conjuguée ν qui représente la fréquence optique du

signal. La luminance $L(\nu, t)$ peut être interprétée comme un spectre local à l'instant t ³. C'est un exemple d'analyse temps-fréquence. Lorsqu'on nous dit que la luminance est quasi monochromatique c'est que la largeur spectrale $\Delta\nu$ de celle-ci est très inférieure à la fréquence centrale ν . L'ETR décrit ainsi le flux d'énergie à une fréquence déterminée⁴.

Le domaine de validité de la théorie du transfert radiatif se fait soit en analysant les différentes approximations faites à partir de l'équation de Bethe-Salpeter. Nous citerons à titre indicatif l'approximation de Bourret qui se limite aux faibles fractions volumiques où l'on ne garde que la corrélation d'ordre 2 [Barabanenkov et Finkel'berg (1967), Frisch (1966), Frisch (1967)]. D'autres approches existent et aboutissent toutes à l'ETR. On peut citer par exemples les références suivantes : [Tsang et Kong (2000), p.232, Apresyan et Kravtsov (1996)]. La deuxième manière de déterminer le domaine de validité se fait par des simulations numériques qui comparent la résolution de l'ETR et la résolution des équations de Maxwell sur un système bien défini. L. Roux *et al.* ont montré que la théorie de transport radiatif est encore valable sur des faibles épaisseurs optiques et jusqu'à une fraction volumique inférieure à 10% [Roux (1996)].

L'ETR peut être généralisée à une équation de transfert radiatif vectorielle, ceci afin de prendre en compte les effets de polarisation. On introduit alors le vecteur de Stokes qui joue le rôle de luminance en lumière polarisée [Chandrasekhar (1960)].

II.4 Résolution de l'ETR en géométrie plane

Un certain nombre de méthodes de résolution de l'équation de transfert ont été initialement développées pour des études atmosphériques ou en neutronique et sont maintenant réutilisées dans le cas du transport photonique dans des milieux aléatoires. Actuellement, aucune méthode n'est adaptée à tout type de problème. Il existe quatre catégories de méthodes de résolution de l'ETR faisant appel à des techniques différentes :

- La première concerne les *solutions analytiques* qui existent sous certaines hypothèses simplificatrices concernant des géométries de milieux diffusants simples et/ou des propriétés radiatives uniformes ainsi que des conditions aux limites homogènes.
- Les *méthodes statistiques* : la méthode de Monte Carlo fait partie de ce type de méthodes où le problème déterministe est transformé en problème probabiliste. Elle a été largement utilisée pour la résolution de l'ETR à partir des années 70, car elle fournit des solutions pouvant atteindre le même niveau de précision que les méthodes exactes. Un de ses atouts majeurs réside dans son adaptation aisée aux cas de géométries complexes. Par contre un de ces inconvénients majeurs est son coût en temps de calcul.

3. La transformée de Wigner n'est pas strictement positive de sorte qu'elle ne peut pas être considérée comme une densité spectrale d'énergie

4. c'est pour cela que ν est en indice

- *La méthode des flux* : le principe de ces méthodes est de séparer la dépendance angulaire de la dépendance spatiale de la luminance. L'équation intégral-différentielle est alors remplacée par un système d'équations aux dérivées partielles où n'interviennent que les variables d'espace. Il existe plusieurs méthodes se basant sur ce principe. **La méthode à N flux** discrétise l'espace angulaire en N angles solides élémentaires à l'intérieur desquels la luminance est supposée uniforme. **La méthode des ordonnées discrètes** qui a été présentée pour la première fois par Chandrasekhar [(Chandrasekhar 1960), p.55] en 1960, discrétise l'espace angulaire selon une quadrature (Gauss, Radau, ...) afin de remplacer l'intégrale de l'équation par une somme discrète. Cette méthode permet de transformer l'équation intégral-différentielle de la luminance en un système d'équations aux dérivées partielles. Nous utiliserons la quadrature de Gauss afin de résoudre le problème posé dans le cadre de cette thèse.
- D'autres méthodes se basent sur une hypothèse sur la variation angulaire de la luminance. Nous citerons juste à titre indicatif : **l'approximation de Milne-Eddington**, **l'approximation P_N** , un cas particulier est **l'approximation P_1** qui transforme l'équation intégral-différentielle en une équation de type parabolique.

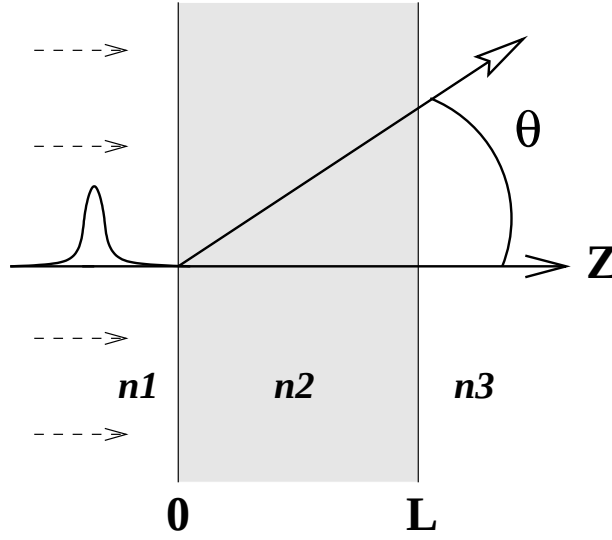
II.4.1 Géométrie du système étudié

Soit une tranche de matériau (*slab*) de largeur L , sur lequel une impulsion lumineuse est incidente dans la direction normale (figure II.3). Cette onde incidente est une onde plane dont la forme temporelle est une impulsion (ex : gaussienne). Le slab est caractérisé par un coefficient d'absorption κ_ν et par un coefficient de diffusion σ_ν où ν est la fréquence centrale de l'impulsion incidente. On y associe respectivement les libres parcours moyen de diffusion $l_s = \sigma_\nu^{-1}$ et d'absorption $l_a = \kappa_\nu^{-1}$. Le milieu homogène équivalent possède un indice effectif dont la partie réelle est notée n_2 . Les demi-espaces $z < 0$ et $z > L$ sont des milieux homogènes et transparents ayant respectivement les indices de réfraction n_1 et n_3 . On souhaite calculer, pour un milieu donné, les flux réfléchis et transmis dans toutes les directions en fonction du temps. Pour résoudre ce problème, nous partons de l'équation de transfert radiatif. Pour cette géométrie plane, on a :

1. une symétrie azimutale. La fonction de phase dépendra notamment de $\phi - \phi'$. On peut donc intégrer l'ETR par rapport à l'angle azimutal.
2. une invariance par translation du système diffusant et de l'onde plane, la luminance ne dépendra pas des coordonnées x et y .

L'équation (II.15) devient :

$$\left[\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} + \mu \frac{\partial}{\partial z} \right] L_\nu(z, \mu, \phi, t) = -\beta_\nu L_\nu(z, \mu, \phi, t) + \frac{\sigma_\nu}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mu', \mu, \phi' - \phi) L_\nu(z, \mu', \phi', t) d\phi' d\mu' \quad (\text{II.20})$$

FIG. II.3 – *Géométrie du système*

On intègre l'équation sur l'angle azimutal, et on pose :

$$L_\nu(z, \mu, t) \equiv \int_0^{2\pi} L_\nu(z, \mu, \phi, t) d\phi \quad (\text{II.21})$$

$$p_\nu(\mu', \mu) \equiv \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} p_\nu(\mu', \mu, \phi' - \phi) d\phi \quad (\text{II.22})$$

On remarquera que l'hypothèse de la dépendance en $\phi - \phi'$ pour la fonction de phase est moins restrictive que celle consistant à supposer la fonction de phase dépendant de $\cos \Theta = \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}'$ (voir Éq.(II.9)). En divisant l'équation (II.20) par le coefficient d'extinction, on fait apparaître l'épaisseur optique locale $\tau \equiv \beta z$ du milieu ainsi que l'albédo :

$$\left[\frac{1}{\beta c} \frac{\partial}{\partial t} + \mu \frac{\partial}{\partial \tau} \right] L_\nu(\tau, \mu, t) = -L_\nu(\tau, \mu, t) + \frac{a_\nu}{2} \int_{-1}^{+1} p_\nu(\mu', \mu) L_\nu(\tau, \mu', t) d\mu' \quad (\text{II.23})$$

II.4.2 Méthode de résolution

La méthode de résolution que nous utiliserons comprend trois étapes. Dans un premier temps, nous passons dans le domaine fréquentiel par une transformée de Fourier par rapport à la variable temporelle. Dans une seconde étape, nous utilisons la méthode des ordonnées discrètes qui s'avère efficace et rapide. Et finalement, nous repassons dans le domaine temporel par une transformée de Fourier inverse.

II.4.2.1 Transformée de Fourier

Nous définissons la TF de la luminance $L_\nu(\tau, \mu, t)$ par :

$$L_\nu(\tau, \mu, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} L_\nu(\tau, \mu, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (\text{II.24})$$

Ainsi que la TF inverse :

$$L_\nu(\tau, \mu, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} L_\nu(\tau, \mu, t) e^{i\omega t} dt \quad (\text{II.25})$$

En insérant la relation (II.24) dans l'ETR (Éq.(II.23)), nous obtenons :

$$\mu \frac{\partial}{\partial \tau} L_\nu(\tau, \mu, \omega) = -(1 - i\frac{\omega}{\beta c}) L_\nu(\tau, \mu, \omega) + \frac{a_\nu}{2} \int_{-1}^{+1} p_\nu(\mu', \mu) L_\nu(\tau, \mu', \omega) d\mu' \quad (\text{II.26})$$

La fréquence ν est la fréquence centrale de l'impulsion incidente, tandis que la fréquence ω correspond aux variations lentes de l'impulsion. On retrouve ici l'hypothèse de la luminance quasi monochromatique, qui permet de bien distinguer ces deux fréquences. On posera dans la suite :

$$\alpha = 1 - i\frac{\omega}{\beta c} \quad (\text{II.27})$$

Le facteur α correspond à un coefficient d'extinction effectif complexe. En effet, l'équation (II.26) a la même forme que l'ETR en régime stationnaire. Ainsi on a finalement à résoudre l'ETR statique avec une luminance complexe et un coefficient d'extinction complexe.

II.4.2.2 Luminance collimatée et luminance diffuse

Nous séparons la luminance en trois termes : une luminance collimatée L_c^+ dans la direction du faisceau incident, une luminance collimatée L_c^- dans la direction opposée au faisceau incident et la luminance diffuse L_d :

$$L(\tau, \mu, \omega) = L_c^+(\tau, \omega) \delta(\mu - 1) + L_c^-(\tau, \omega) \delta(\mu + 1) + L_d(\tau, \mu, \omega) \quad (\text{II.28})$$

Où $\delta(\mu - 1)$ est un delta de Dirac. En injectant cette relation dans l'équation (II.26), nous obtenons trois équations :

$$\begin{cases} \partial_\tau L_c^\pm(\tau, \omega) &= -\alpha L_c^\pm(\tau, \omega) \\ \mu \partial_\tau L_d(\tau, \mu, \omega) &= -\alpha L_d(\tau, \mu, \omega) + \frac{a}{2} \int_{-1}^{+1} p(\mu', \mu) L_d(\tau, \mu', \omega) d\mu' \\ &\quad + \frac{a}{2} p(\mu, 1) L_c^+(\tau, \omega) + \frac{a}{2} p(\mu, -1) L_c^-(\tau, \omega) \end{cases} \quad (\text{II.29})$$

Les deux premières équations traduisent la décroissance des faisceaux collimatés. La résolution de ces deux équations nous donne la loi de Beer-Lambert (décroissance exponentielle du flux collimaté dans le milieu 2). Les conditions aux limites aux interfaces pour la luminance collimatée (dans la direction normale) font intervenir :

1. le facteur de transmission entre les milieux 1 et 2 : T_{12}^0 en incidence normale,

2. le facteur de réflexion entre les milieux 2 et 1 : R_{21}^0 en incidence normale,
3. le facteur de réflexion entre les milieux 2 et 3 : R_{23}^0 en incidence normale.

Les expressions de ces facteurs sont données en annexe A.
En posant :

$$S(\tau, \mu, \omega) = \frac{a}{2} p(\mu, 1) L_c^+(\tau, \omega) + \frac{a}{2} p(\mu, -1) L_c^-(\tau, \omega) \quad (\text{II.30})$$

on obtient finalement les solutions des luminances collimatées montantes et descendantes ainsi que l'équation à résoudre pour la luminance diffuse :

$$\begin{cases} L_c^+(\tau, \omega) &= L_{inc}(0, \omega) e^{-\alpha\tau} \Gamma T_{12}^0 \\ L_c^-(\tau, \omega) &= L_{inc}(0, \omega) e^{-\alpha(2L^*-\tau)} \Gamma T_{12}^0 R_{23}^0 \\ \mu \partial_\tau L_d(\tau, \mu, \omega) &= -\alpha L_d(\tau, \mu, \omega) + \frac{a}{2} \int_{-1}^{+1} p(\mu', \mu) L_d(\tau, \mu', \omega) d\mu' + S(\tau, \mu, \omega) \end{cases} \quad (\text{II.31})$$

Le facteur Γ est le facteur de réflexion interne défini par :

$$\Gamma = [1 - R_{21}^0 R_{23}^0 e^{-2\alpha L^*}]^{-1} \quad (\text{II.32})$$

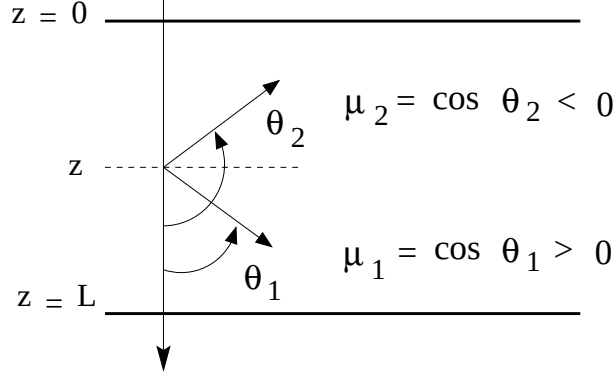
L'équation pour la luminance diffuse est pour le moment incomplète, il faut introduire les conditions aux limites afin que le problème soit mathématiquement bien posé. La signification physique de la fonction $S(\tau, \mu, \omega)$ est évidente c'est un terme source pour la luminance diffuse. En effet, elle traduit le passage de l'énergie de la luminance collimatée vers la luminance diffuse.

II.4.2.3 Conditions aux limites pour la luminance diffuse

Le fait d'avoir des interfaces séparant des milieux d'indices différents impose que l'on tienne compte des processus de réflexion et de transmission pour les conditions aux limites. Dans le cas des surfaces planes, où l'on a des réflexions spéculaires, les conditions aux limites pour la luminance diffuse s'écrivent de la manière suivante :

$$\begin{cases} L_d(\tau = 0, \mu > 0, \omega) &= R_{21}(|\mu|) L_d(\tau = 0, \mu < 0, \omega) \\ L_d(\tau = L^*, \mu < 0, \omega) &= R_{23}(|\mu|) L_d(\tau = L^*, \mu > 0, \omega) \end{cases} \quad (\text{II.33})$$

où R_{ij} est le facteur de réflexion de Fresnel en énergie entre les milieux d'indices n_i et n_j . On trouvera son expression en annexe A. La convention de signe utilisée est indiquée sur la figure II.4.

FIG. II.4 – *Convention adoptée pour les directions de propagation*

Dans le cas particulier où l'on n'a pas d'interfaces (i.e. les indices n_1 , n_2 et n_3 sont identiques), les facteurs de réflexion s'annulent et les conditions aux limites se résument à une luminance *diffuse entrante* dans le milieu qui est nulle en $z = 0$ et en $z = L$.

II.4.2.4 Discrétisation angulaire

Une discrétisation angulaire permet de remplacer le terme intégral de l'ETR en une somme discrète. Nous passons de ce fait d'une équation intégral-différentielle à un système d'équations différentielles couplées. C'est le principe même de la méthode des ordonnées discrètes. Le terme intégrale de l'ETR devient :

$$\int_{-1}^{+1} p(\mu', \mu) L(\mu') d\mu' \cong \sum_{i=1}^{2N} w_i p(\mu_i, \mu) L(\mu_i) \quad (\text{II.34})$$

où les facteurs w_i et μ_i sont appelés respectivement les poids et les abscisses de la quadrature envisagée. Il existe différentes quadratures mais aucune ne doit provoquer perte ou création d'un flux d'énergie. La quadrature doit satisfaire au mieux les relations de conservation suivantes :

$$\begin{aligned} \int_{-1}^{+1} d\mu &\rightarrow \sum_{i=1}^{2N} w_i = 2 \\ \int_{-1}^{+1} \mu d\mu &\rightarrow \sum_{i=1}^{2N} w_i \mu_i = 0 \\ \int_0^{+1} \mu d\mu &\rightarrow \sum_{i=1}^{2N} w_i \mu_i = \frac{1}{2} \end{aligned}$$

Cela nous permet d'évaluer l'erreur relative d'une quadrature à une autre par rapport aux valeurs théoriques. Nous citerons à titre indicatif les quadratures de Gauss, de Fiveland, de Chebyshev, de Radau, de Nicolau,... Des études [Kumar, Majumdar, et Tien

1990] ont montré que la quadrature la plus adaptée et la plus précise est la quadrature de Gauss. Cette méthode a été introduite par Chandrasekhar [Chandrasekhar 1960, p.54]. Nous discrétisons l'espace angulaire sur $2N$ directions (Fig. II.5) selon la quadrature de Gauss qui est décrite en annexe B. Nous utilisons les poids a_i et les abscisses μ_i de la quadrature de Gauss. L'indice i varie de 1 jusqu'à $2N$. L'intégrale est remplacée par une somme et l'équation pour la luminance diffuse (Éq.II.31) est transformée en un système de $2N$ équations différentielles à $2N$ inconnues :

$$\begin{aligned} \mu_i \partial_\tau L_d(\tau, \mu_i, \omega) = & -\alpha L_d(\tau, \mu_i, \omega) + \frac{a}{2} \sum_{j=1}^{2N} p(\mu_i, \mu_j) L_d(\tau, \mu_j, \omega) a_j + S(\tau, \mu_i, \omega) \\ & i = 1 \dots 2N \end{aligned} \quad (\text{II.35})$$

La numérotation des directions discrétisées choisie est indiquée sur la figure II.5.

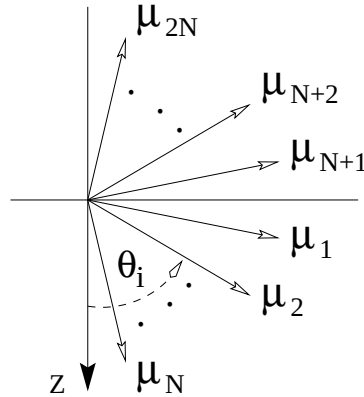


FIG. II.5 – *Discrétisation angulaire*

Par souci de clarté et de simplicité, nous séparons les facteurs qui correspondent aux $\mu_i > 0$ des $\mu_i < 0$:

$$\begin{aligned} L(i) &= L_d(\tau, \mu_i, \omega) \\ L(-i) &= L_d(\tau, -\mu_i, \omega) \\ \Sigma(i) &= S(\tau, \mu_i, \omega) \\ \Sigma(-i) &= S(\tau, -\mu_i, \omega) \\ p(i, j) &= p(\mu_i, \mu_j) \end{aligned}$$

La somme peut être décomposée grâce aux propriétés de symétrie des poids et des

abscisses de Gauss (voir Annexe B) :

$$\begin{aligned}
\sum_{j=1}^{2N} p(i, j) L(j) a_j &= \sum_{j=1}^N p(i, j) L(j) a_j + \sum_{j=N+1}^{2N} p(i, j) L(j) a_j \\
&= \sum_{j=1}^N p(i, j) L(j) a_j + \sum_{j=1}^N p(i, j+N) L(j+N) a_{j+N} \\
&= \sum_{j=1}^N p(i, j) L(j) a_j + \sum_{j=1}^N p(i, -j) L(-j) a_{-j}
\end{aligned}$$

En injectant cette expression dans l'équation (II.35), et en arrangeant les termes afin d'avoir des éléments de matrice communs, le système devient :

$$\begin{cases} \partial_\tau L(i) &= \sum_{j=1}^N \frac{1}{\mu_i} [-\alpha \delta_{ij} + \frac{a}{2} p(i, j) a_j] L(j) + \sum_{j=1}^N \frac{1}{\mu_i} \frac{a}{2} p(i, -j) a_j L(-j) + \frac{\Sigma(i)}{\mu_i} \\ \partial_\tau L(-i) &= \sum_{j=1}^N \frac{-1}{\mu_i} [-\alpha \delta_{ij} + \frac{a}{2} p(i, j) a_j] L(-j) + \sum_{j=1}^N \frac{-1}{\mu_i} \frac{a}{2} p(i, -j) a_j L(j) - \frac{\Sigma(-i)}{\mu_i} \end{cases}$$

$i = 1 \dots N$

En définissant les matrices suivantes :

$$\begin{aligned}
\mathbf{M}^+ &= \{M_{ij}^+\} = \frac{1}{\mu_i} [-\alpha \delta_{ij} + \frac{a}{2} p(i, j) a_j] & (N \times N) \\
\mathbf{M}^- &= \{M_{ij}^-\} = \frac{1}{\mu_i} \frac{a}{2} p(i, -j) a_j & (N \times N) \\
\Sigma^+ &= \{\Sigma_i^+\} = \frac{1}{\mu_i} \Sigma(i) & (N \times 1) \\
\Sigma^- &= \{\Sigma_i^-\} = \frac{-1}{\mu_i} \Sigma(-i) & (N \times 1) \\
\mathbf{L}^+ &= \{L_i^+\} = L(i) & (N \times 1) \\
\mathbf{L}^- &= \{L_i^-\} = L(-i) & (N \times 1)
\end{aligned}$$

le système matriciel s'écrit de la manière suivante (l'indice i varie de 1 à N) :

$$\begin{cases} d_\tau L_i^+ &= \sum_{j=1}^N M_{ij}^+ L_j^+ + \sum_{j=1}^N M_{ij}^- L_j^- + \Sigma_i^+ \\ d_\tau L_i^- &= \sum_{j=1}^N -M_{ij}^- L_j^+ + \sum_{j=1}^N -M_{ij}^+ L_j^- + \Sigma_i^- \end{cases}$$

réécrit sous forme de bloc de matrices :

$$d_\tau \begin{bmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{M}^+ & \mathbf{M}^- \\ -\mathbf{M}^- & -\mathbf{M}^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \Sigma^+ \\ \Sigma^- \end{bmatrix} \quad (\text{II.36})$$

Ou de manière plus compacte :

$$d_\tau \mathbf{L} = \mathbf{M} \mathbf{L} + \Sigma \quad (\text{II.37})$$

C'est un système d'équation différentielle du premier ordre ayant des coefficients complexes qui ne dépendent pas de la variable τ . La résolution passe par une recherche de la solution homogène du système homogène et d'une solution particulière du système non homogène.

II.4.3 Solution de l'équation homogène

La structure particulière de la matrice du système d'équations (C.1), nous permet de réduire la dimension du problème d'un facteur 2. En effet, nous montrons en annexe E que les valeurs propres de la matrice $\mathbf{M}$ apparaissent par paires : $\pm|k_i|$. Les calculs détaillés en annexe C, nous montrent que la solution générale de l'équation homogène s'écrit sous forme d'une combinaison linéaire des vecteurs propres $\mathbf{G}_i$ pondérés par une exponentielle ayant comme argument la valeur propre associée $\exp(\pm k_i \tau)$ et par une constante C_i qui sera déterminée par les conditions aux limites :

$$\mathbf{L}_{hom} = \sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i e^{k_i \tau} \quad (\text{II.38})$$

Il est utile de rappeler que $\mathbf{L}_{hom}$ est un vecteur de taille $2N$ ou les N premières composantes correspondent aux directions $\mu_i > 0$ tandis que les N suivantes correspondent aux $\mu_i < 0$.

II.4.4 Spectre des valeurs propres

Le système matriciel $\mathbf{M}$ de taille $2N$ possède exactement $2N$ valeurs propres. Nous avons développé la luminance sur la base des vecteurs propres de la matrice $\mathbf{M}$. Dans le cas particulier où l'on a un milieu isotrope $g = 0$ et sans pertes $a = 1$, on peut montrer que la valeur propre $k^2 = 0$ fait partie de l'ensemble des valeurs propres. Le vecteur propre qui est associé est de la forme : $K_1(\tau + \mu_i) + K_2$. Les facteurs K_1 et K_2 sont des constantes qu'on détermine à partir des conditions aux limites. Ainsi on montre que l'on peut décomposer la luminance sur l'ensemble des vecteurs propres de la manière suivante [Chandrasekhar (1960), p.71] : $L_i = \sum_{i=1}^{2N-2} C_i \mathbf{G}_i e^{k_i \tau} + K_1(\tau + \mu_i) + K_2$. Dès lors que l'albédo n'est plus égale à 1, la valeur $k = 0$ n'est plus valeur propre. En pratique, il est commode d'insérer des pertes fictives lorsqu'on traite numériquement ces types de problèmes. En effet, si la longueur d'absorption est beaucoup plus grande que la taille du système, le résultat n'est pas affecté. On peut donc utiliser la relation (II.38) dans tous les cas. Par ailleurs, on peut montrer [Case et Zweifel (1967)] que le spectre de l'opérateur intégral-différentiel de l'ETR est constitué d'un ensemble discret de valeurs propres et un continuum. Les valeurs propres discrètes correspondent aux valeurs les plus faibles (celles de plus grande portée). Le résultat théorique est confirmé par le calcul numérique. Lorsque l'on modifie l'ordre de la quadrature et donc le nombre de valeurs propres calculées, on s'aperçoit que les plus basses ne varient pas tandis que les autres qui appartiennent au continuum changent fortement comme le montre le tableau suivant.

	N=10	N=15	N=20	N=25	N=50
k_0	0.29626	0.29626	0.296269	0.296269	0.296269
k_1	1.01030	1.00439	1.00242	1.00153	1.00037
k_2	1.04970	1.02064	1.01131	1.00713	1.00174
k_3	1.12597	1.05024	1.02713	1.01701	1.00412
k_4	1.25294	1.09531	1.05052	1.03142	1.00753

TAB. II.1 – les premières valeurs propres en fonction du nombre de discrétisation angulaire

II.4.5 Solution particulière

La forme du terme source, nous suggère de chercher une solution particulière sous la forme suivante :

$$\mathbf{L}_{par} = \mathbf{X} e^{-\alpha\tau} + \mathbf{Y} e^{\alpha\tau} e^{-2\alpha L^*} \quad (\text{II.39})$$

En introduisant, cette relation dans l'équation (C.1), et en identifiant les termes sources aux termes de $\mathbf{L}_{par}$, on doit résoudre un système d'équations linéaires à coefficients complexes qui nous fournit les vecteurs $\mathbf{X}$ et $\mathbf{Y}$.

II.4.6 Solution générale

La solution s'obtient en additionnant la solution générale de l'équation homogène Éq. (II.38) et la solution particulière Éq. (II.39) :

$$\mathbf{L}_d = \sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i e^{k_i\tau} + \mathbf{X} e^{-\alpha\tau} + \mathbf{Y} e^{\alpha\tau} e^{-2\alpha L^*} \quad (\text{II.40})$$

II.4.7 Conditions aux limites pour la luminance

Il nous faut maintenant compléter l'équation (II.40) par les conditions aux limites. Ceci permet de déterminer les constantes C_i de la solution générale. Pour cela nous allons discrétiser les équations (II.33).

II.4.7.1 Interface en $\tau = 0$

Pour cette interface, on a :

$$\begin{aligned} & \sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i(\mu > 0) + \mathbf{X}(\mu > 0) + \mathbf{Y}(\mu > 0) e^{-2\alpha L^*} \\ = & R_{21}(|\mu|) \left[\sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i(\mu < 0) + \mathbf{X}(\mu < 0) + \mathbf{Y}(\mu < 0) e^{-2\alpha L^*} \right] \end{aligned}$$

En notation indicielle, l'équation devient :

$$\sum_{i=1}^{2N} C_i G_{ji} + X_j + Y_j e^{-2\alpha L^*} = R_{21} \left[\sum_{i=1}^{2N} C_i G_{j+N,i} + X_{j+N} + Y_{j+N} e^{-2\alpha L^*} \right]$$

où l'indice j varie de $[1...N]$. En réarrangeant les termes, on a :

$$\sum_{i=1}^{2N} C_i [G_{ji} - R_{21} G_{j+N,i}] = -X_j - Y_j e^{-2\alpha L^*} + R_{21} [X_{j+N} + Y_{j+N} e^{-2\alpha L^*}] \quad (\text{II.41})$$

II.4.7.2 Interface en $\tau = L^*$

Pour cette interface, nous avons:

$$\begin{aligned} & \sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i(\mu < 0) e^{k_i L^*} + \mathbf{X}(\mu < 0) e^{-\alpha L^*} + \mathbf{Y}(\mu < 0) e^{-\alpha L^*} \\ = & R_{23}(|\mu|) \left[\sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i(\mu > 0) e^{k_i L^*} + \mathbf{X}(\mu > 0) e^{-\alpha L^*} + \mathbf{Y}(\mu > 0) e^{-\alpha L^*} \right] \end{aligned}$$

De même, en utilisant les notations indicielles, on a:

$$\begin{aligned} & \sum_{i=1}^{2N} C_i G_{ji} e^{k_i L^*} + X_j e^{-\alpha L^*} + Y_j e^{-\alpha L^*} \\ = & R_{23} \left[\sum_{i=1}^{2N} C_i G_{j-N,i} e^{k_i L^*} + X_{j-N} e^{-\alpha L^*} + Y_{j-N} e^{-\alpha L^*} \right] \end{aligned}$$

L'indice j variant de $[N+1...2N]$. En réarrangeant les termes, on obtient :

$$\sum_{i=1}^{2N} C_i [G_{ji} - R_{23} G_{j-N,i}] e^{k_i L^*} = [-X_j - Y_j + R_{23} (X_{j-N} + Y_{j-N})] e^{-\alpha L^*} \quad (\text{II.42})$$

Afin de résoudre le système d'équations formé par (II.41) et (II.42), on pose :

$$F_{ji} = \begin{cases} G_{ji} - R_{21} G_{j+N,i} & j = 1...N \\ G_{ji} - R_{23} G_{j-N,i} & j = N+1...2N \end{cases}$$

$$H_j = \begin{cases} -X_j + R_{21} X_{j+N} & j = 1...N \\ -X_j + R_{23} X_{j-N} & j = N+1...2N \end{cases}$$

$$K_j = \begin{cases} (-Y_j + R_{21}Y_{j+N}) e^{-2\alpha L^*} & j = 1 \dots N \\ -Y_j + R_{23}Y_{j-N} & j = N + 1 \dots 2N \end{cases}$$

Les systèmes d'équations (II.41) et (II.42) deviennent alors :

$$\begin{cases} \sum_{i=1}^{2N} F_{ji} C_i & = H_j + K_j & j = 1 \dots N \\ \sum_{i=1}^{2N} F_{ji} e^{k_i L^*} C_i & = (H_j + K_j) e^{-\alpha L^*} & j = N + 1 \dots 2N \end{cases} \quad (\text{II.43})$$

L'inversion de la matrice du système d'équations (II.43) peut provoquer des problèmes de convergences numériques et ceci à cause d'un mauvais conditionnement de la matrice à inverser [Thomas et Stamnes (1999)]. En effet, la matrice contient des exponentielles à arguments positifs et négatifs. Il est nécessaire d'éliminer les exponentielles à arguments positifs qui apparaissent dans la matrice du système (II.43). Pour cela, on ordonne les valeurs propres par ordre décroissant :

$$k_1 > k_2 > \dots > k_N > 0 > k_{N+1} > \dots > k_{2N}$$

Etant donné que les valeurs propres apparaissent par paires, on a la propriété suivante :

$$k_i = -k_{2N-i+1} \quad i = N + 1 \dots 2N$$

On utilise ensuite la transformation d'échelle suivante :

$$\begin{cases} C_i & = \tilde{C}_i e^{-k_i L^*} & i = 1 \dots N \\ C_i & = \tilde{C}_i & i = N + 1 \dots 2N \end{cases}$$

On résout le système d'équations où tous les termes exponentiels ont des arguments négatifs, afin de déterminer les constantes $\tilde{C}_i$.

II.4.8 Solution globale

Nous obtenons la solution suivante dans le domaine fréquentiel :

$$\mathbf{L}_d = \sum_{i=1}^N \tilde{C}_i \mathbf{G}_i e^{k_i(\tau-L^*)} + \sum_{i=N+1}^{2N} \tilde{C}_i \mathbf{G}_i e^{k_i \tau} + \mathbf{X} e^{-\alpha \tau} + \mathbf{Y} e^{\alpha \tau} e^{-2\alpha L^*} \quad (\text{II.44})$$

Il suffit d'appliquer la transformée de Fourier inverse afin d'obtenir la luminance diffuse réelle en tous points et ainsi que pour toutes les directions.

$$\mathbf{L}_d(\tau, t) = \{L_d(\tau, \mu_i, t)\} = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{L}_d(\tau, \omega) e^{-i\omega t} d\omega$$

II.5 Grandeurs de sortie

Les luminances émergeant du milieu diffusant, tant en réflexion qu'en transmission, peuvent être calculées à partir des luminances en $\tau = 0$ et $\tau = \beta L$. Calculons dans un premier temps, les luminances collimatées réfléchies $L_c^R(t)$ et transmises $L_c^T(t)$. Dans un second temps, nous calculerons les luminances diffuses en réflexion $L_d^R(\mu, t)$ et en transmission $L_d^T(\mu, t)$. Ceci nous permettra d'obtenir le flux surfacique directionnel et intégré réfléchi $R_d(t)$ et transmis $T_d(t)$.

II.5.1 Luminance collimatée

II.5.1.1 En réflexion

Pour obtenir le flux réfléchi dû uniquement à la luminance collimatée, nous devons prendre en compte non seulement la réflexion de la luminance incidente à la première interface mais aussi la luminance collimatée L_c^- qui émerge du milieu diffusant dans la direction arrière. On obtient alors :

$$L_c^R(t) = R_{12}^0 L_{inc}(0, t) + T_{21}^0 L_c^-(\tau = 0, t) \quad (\text{II.45})$$

Les facteurs R_{12}^0 et T_{21}^0 sont les coefficients de Fresnel en énergie. Leurs expressions sont données dans l'annexe A.

II.5.1.2 En transmission

Soit un flux incident collimaté faisant un angle θ_i avec la normale. La conservation de l'énergie impose que ce flux est égal à la somme du flux réfléchi et du flux transmis.

$$\begin{aligned} L_i \cos \theta_i dS &= L_r \cos \theta_i dS + L_t \cos \theta_j dS \\ L_t &= \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_j} T_{ij} L_i \end{aligned}$$

où T_{ij} est le facteur de Fresnel en énergie et où le facteur de transmission du collimaté T_{ij}^c venant du milieu d'indice n_i vers le milieu d'indice n_j est défini comme suit :

$$\boxed{T_{ij}^c = \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_j} T_{ij}} \quad (\text{II.46})$$

Mais dans notre cas, puisqu'on est en incidence normale ($\theta_i = 0$), on a

$$T_{ij}^c = T_{ij}^0 \quad (\text{II.47})$$

Finalement, le flux transmis dû uniquement à la luminance collimatée L_c^+ vaut :

$$L_c^T(t) = T_{23}^0 L_c^+(\tau = \beta L, t) \quad (\text{II.48})$$

II.5.2 Luminance diffuse

La transmission de la luminance diffuse d'un milieu vers un autre s'accompagne d'un changement de direction de propagation ainsi que d'un changement d'angle solide. Par contre, en réflexion l'angle solide n'est pas modifié.

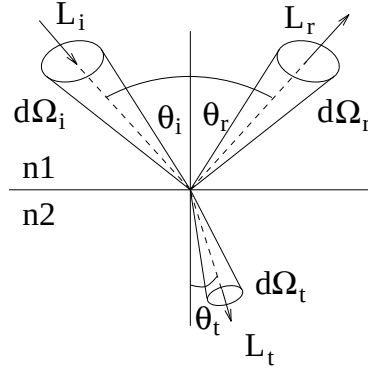


FIG. II.6 – Réflexion et transmission sur une interface plane

II.5.2.1 En réflexion

Les facteurs de réflexion pour la luminance diffuse sont donnés exactement par les facteurs de réflexion de Fresnel en énergie.

II.5.2.2 En transmission

Dans le cas de la transmission d'une luminance diffuse, il faut tenir compte du changement de l'ouverture angulaire lors du passage entre les deux milieux. Soit une luminance diffuse incidente L_i ayant une ouverture angulaire $d\Omega_i$ centrée autour de la direction faisant un angle θ_i avec la normale. On a la relation suivante :

$$\begin{aligned}
 L_i \cos \theta_i dS d\Omega_i &= L_r \cos \theta_i dS d\Omega_i + L_t \cos \theta_j dS d\Omega_j \\
 L_i \cos^2 \theta_i dS d\theta_i d\phi_i &= L_r \cos^2 \theta_i dS d\theta_i d\phi_i + L_t \cos^2 \theta_j dS d\theta_j d\phi_j \\
 L_i &= L_r + L_t \frac{\cos^2 \theta_j d\theta_j d\phi_j}{\cos^2 \theta_i d\theta_i d\phi_i}
 \end{aligned}$$

En utilisant la relation de Snell-Descartes $n_i \sin \theta_i = n_j \sin \theta_j$ et $\phi_i = \phi_j$, nous obtenons leur forme différentielle $n_i \cos \theta_i d\theta_i = n_j \cos \theta_j d\theta_j$ et $d\phi_i = d\phi_j$. en injectant ces relations dans l'équation précédente, nous aboutissons à :

$$L_i = L_r + \frac{n_i^2}{n_j^2} L_t \quad \Rightarrow \quad L_t = \frac{n_j^2}{n_i^2} (1 - R_{ij}) L_i = \frac{n_j^2}{n_i^2} T_{ij} L_i \quad (\text{II.49})$$

Où l'on peut définir le facteur de transmission pour la luminance diffuse:

$$\boxed{T_{ij}^d = \left(\frac{n_j}{n_i}\right)^2 T_{ij}} \quad (\text{II.50})$$

Nous calculons non seulement la luminance transmise $L_d^T(\tau = L^*, \mu, t)$ mais également la luminance réfléchi qui émerge du milieu en $\tau = 0$:

$$L_d^T(\mu, t) = T_{23}^d(\mu') L_d(\tau = L^*, \mu', t) \quad \text{avec} \quad \mu' = \sqrt{1 + \left(\frac{n_3}{n_2}\right)^2 (\mu^2 - 1)} \quad (\text{II.51})$$

$$L_d^R(\mu, t) = T_{21}^d(\mu') L_d(\tau = 0, \mu', t) \quad \text{avec} \quad \mu' = -\sqrt{1 + \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 (\mu^2 - 1)} \quad (\text{II.52})$$

II.5.3 Flux diffusé réfléchi et transmis

En pratique, on mesure le flux d'énergie dans une direction particulière ou dans l'ensemble de toutes les directions à l'aide par exemple d'une sphère intégrante. Nous définissons le flux surfacique (monochromatique) directionnel réfléchi et transmis :

$$\Phi_d^R(\mu, t) = \mu L_d^R(\mu, t) \quad (\text{II.53})$$

$$\Phi_d^T(\mu, t) = \mu L_d^T(\mu, t) \quad (\text{II.54})$$

et aussi le flux surfacique intégré ou total réfléchi et transmis :

$$R_d(t) = \int_{-1}^0 \mu L_d^R(\mu, t) d\mu \quad (\text{II.55})$$

$$T_d(t) = \int_0^{+1} \mu L_d^T(\mu, t) d\mu \quad (\text{II.56})$$

II.6 Exemples de calculs dans un cas statique

Afin de valider la méthode de résolution de l'ETR, nous nous plaçons dans le cas particulier où l'ETR est indépendante du temps : on est en régime statique. Le facteur α défini par l'équation (II.27) est indépendant de la fréquence ω et vaut tout simplement 1. Nous allons étudier la convergence de la méthode sur un cas physique, puis nous présenterons un test de conservation d'énergie.

II.6.1 Convergence

Prenons comme exemple des particules sphériques dans de l'air (système où il n'y a pas d'interfaces physiques). Ces particules ont un indice de $1.33 + i10^{-4}$ et un diamètre de $0.140\mu m$. On éclaire en incidence normale un faisceau lumineux de longueur d'onde $\lambda = 0,550\mu m$. La théorie de Mie nous permet de calculer l'albédo qui vaut dans ce cas $a = 0.9948$ et le paramètre d'anisotropie $g = 0.11$. Les particules se trouvent dans une couche d'air d'épaisseur $L = 300\mu m$. On impose une concentration volumique de 1%. L'épaisseur optique du milieu est de $L^* = 1.347$ et les libres parcours moyens de diffusion et de transport valent respectivement $l_s = 223\mu m$ et $l_{tr} = 253\mu m$. Nous calculons le flux transmis hémisphérique ainsi que le flux réfléchi hémisphérique et cela pour différents ordres de discrétisation de l'espace angulaire. Nous voyons sur le tableau II.2 que la convergence dans ce cas, est assurée (à 10^{-5} près) à partir d'une discrétisation angulaire du demi-espace de $N = 16$.

	N=2	N=4	N=8	N=16	N=20	N=24	N=32
R_d	0.37364	0.37302	0.37263	0.37253	0.37252	0.37251	0.37251
T_d	0.35533	0.35550	0.35582	0.35590	0.35591	0.35591	0.35592

TAB. II.2 – Réflectivité et transmittivité diffuse en fonction du nombre de discrétisation angulaire

II.6.2 Conservation d'énergie

L'onde incidente impose un flux constant⁵ dans la direction normale au slab. La conservation d'énergie est vérifiée en calculant tous les flux qui émergent du slab, à savoir : les flux diffus réfléchis et transmis, les flux collimatés réfléchis et transmis. Nous calculons toutes ces grandeurs en fonction de l'épaisseur optique du slab pour une même configuration des propriétés physiques. Le nombre de directions de discrétisation de l'espace angulaire des milieux incident et émergent (vide : $n_1 = n_3 = 1$) est fixé à $N1 = N3 = 15$, tandis que dans le slab $N2 = 20$. La longueur d'onde de l'onde incidente est fixée à $\lambda = 781nm$. Le slab est constitué de particules sphériques d'indice $n_p = 2.8 + i0.003$ placées dans un liant ayant un indice $n_L = 1.46$. Le diamètre moyen des particules est fixé à $190nm$. Le paramètre d'anisotropie vaut $g = 0.343$, les longueurs de diffusion et d'absorption valent respectivement $l_s = 0.65\mu m$ ($l_s^* = 1.008$) et $l_a = 78\mu m$ ($l_a^* = 122$). L'albédo vaut $a = 0.9918$. La figure II.7 nous indique les différents flux d'énergie émergent du matériau en fonction de son épaisseur optique L^* .

- Le flux collimaté transmis : T_c suit une décroissance exponentielle et est fortement atténué à quelques épaisseurs optiques (i.e. $\tau = 10$). C'est une manifestation de la loi de Beer-Lambert.
- Après quelques épaisseurs optiques, le flux collimaté réfléchi : R_c est constant car il ne dépend que de l'interface entre le milieu incident et le slab. La deuxième interface

5. L'amplitude est fixée à l'unité

n'a une influence sur le flux collimaté réfléchi qu'aux très faibles épaisseurs optiques. Cela correspond au deuxième terme du membre de gauche de la relation (II.45) qui est négligeable lorsque l'épaisseur optique augmente.

- Le flux surfacique intégré diffus transmis : T_d augmente pour les faibles épaisseurs optiques. En effet, pour ces épaisseurs, la luminance n'a pas encore subi beaucoup d'événements de diffusion et le flux transmis total est plutôt piloté par le collimaté. Par contre, au fur et à mesure que l'épaisseur du slab augmente, la luminance transmise décroît en $1/L^*$ tandis que le flux diffus réfléchi R_d augmente.
- L'énergie totale sortante décroît de manière linéaire pour les épaisseurs faibles devant la longueur d'absorption. Cette décroissance est due au fait que le milieu absorbe une partie de l'énergie. Pour un chemin de longueur L , la fraction de puissance absorbée est $1 - \exp -L/l_a \approx 1 - (1 - L/l_a) = L/l_a$ lorsque $L \ll l_a$.

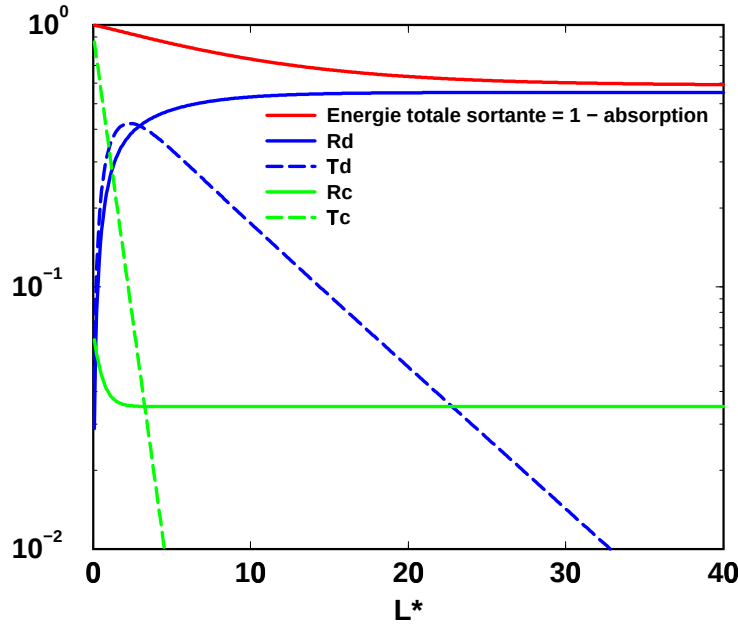


FIG. II.7 – Évolution de l'énergie qui émerge d'un slab en fonction de l'épaisseur optique

II.6.3 Comportement diffusif dans les milieux optiquement épais

Nous allons appliquer notre méthode de calcul au cas des milieux optiquement épais pour lesquels il existe des comportements connus. Il existe bien entendu plusieurs types d'expériences qui mesurent la variation du flux surfacique transmis soit directionnel soit intégré en fonction de l'épaisseur du matériau [Kop *et al.* (1997), Tualle (1996)].

Par exemple l'expérience décrite dans la référence [Kop *et al.* (1997)] montre des mesures du flux surfacique total transmis (recueilli à l'aide d'une sphère intégrante) à travers une couche et cela pour différentes épaisseurs optiques (Fig.II.8(a)). Leur montage consiste à déposer un échantillon sur un substrat de quartz d'indice: 1.46. L'échantillon est constitué de particules de TiO_2 d'indice: 2.8, de diamètre moyen: $220nm$. La largeur de ces échantillons varie entre $1.43\mu m$ à $18\mu m$. La longueur d'onde du flux lumineux incident vaut $\lambda = 781nm$. La longueur de transport est estimée à $0.95\mu m$. Les coefficients de réflexion moyen sur l'interface air-échantillon et sur l'interface échantillon-quartz valent respectivement $R_{as} = 0.4$ et $R_{sq} = 0.02$.

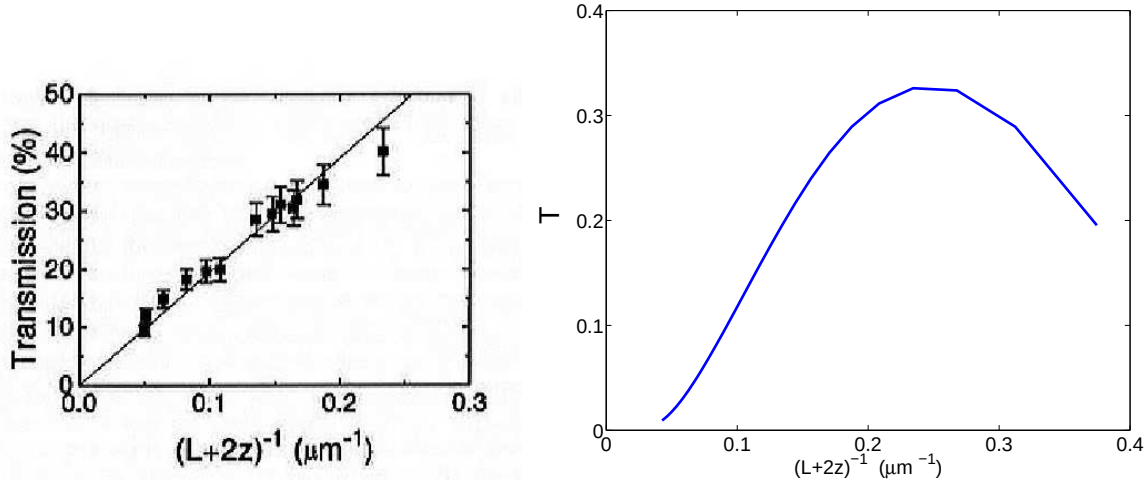
La figure II.8(a) nous présente le résultat de la mesure du flux transmis en fonction de l'inverse de la largeur effective du milieu. Cette largeur effective [Ishimaru (1978), Zhu *et al.* (1991)] est obtenue en ajoutant à la largeur réelle L du matériau deux fois la longueur d'extrapolation qui vaut: $z = z_0(1 + \bar{R})(1 - \bar{R})$. Où $z_0 = 2l_{tr}/3$ et la quantité $\bar{R}$ est le coefficient de réflexion moyen pour chaque interface [Zhu *et al.* (1991)].

Cela permet de comparer le résultat des mesures avec l'approximation de la diffusion qui prédit que le flux transmis total vaut [Kop *et al.* (1997), Durian (1994)]:

$$T = \frac{l_{tr} + z}{L + 2z} \quad (II.57)$$

Nous avons résolu l'ETR dans le cas statique, sur une configuration physique proche de leur expérience. Le nombre de discrétisations dans les trois milieux vaut respectivement $N1 = 10$, $N2 = 20$ et $N3 = 10$. La fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein ayant comme paramètre d'anisotropie $g = 0$ (diffusion isotrope). Les longueurs de diffusion et d'absorption sont fixées à $l_s = 0.95\mu m$ et $l_a = 80\mu m$, d'où l'albédo vaut $a = 0.988$. Nous calculons pour différentes épaisseurs de matériau le flux surfacique transmis hémisphérique (diffus + collimaté) en fonction de l'inverse de la longueur d'extrapolation. Le résultat numérique est tracé sur la figure II.8(b). Nous obtenons effectivement un comportement linéaire pour les grandes épaisseurs optiques, nous sommes en régime diffusif. Tandis qu'aux faibles épaisseurs, nous n'avons plus de comportement linéaire et l'approximation de la diffusion n'est plus valable. Nous discuterons plus précisément au chapitre 4, l'aspect des transitions entre régimes. En régime diffusif, le flux transmis décroît en $1/L_{eff}$. On retrouve un comportement du type loi d'Ohm qui dit que la conductance⁶ des électrons décroît en $1/L$. Nous pouvons identifier le flux transmis hémisphérique comme une "conductance" pour la lumière. La résolution de l'ETR permet de retrouver le comportement de la mesure expérimentale tant qualitativement que quantitativement. En effet, nous retrouvons bien un décrochage pour $\frac{1}{L+2z} \simeq 0.20$.

6. La conductance G est définie comme étant l'inverse de la résistance R . L'unité de la conductance est le *Siemens*. La conductance d'un matériau de longueur L , de section A , ayant une résistivité ρ vaut $G = \frac{A}{\rho L}$



(a) Mesure expérimentale (Kop et al. (1997)) (b) Résolution numérique de l'ETR stationnaire

FIG. II.8 – Flux total transmis hémisphérique mesuré

II.7 Exemples de calculs dans un cas dynamique

Nous donnons quelques exemples de résolution de l'ETR instationnaire. Nous avons bien évidemment validé notre code de calcul basé sur la méthode de calcul décrite au paragraphe 1.4.2. La validation s'est faite en comparant nos résultats (en réflexion et en transmission) et ceux obtenus par d'autres méthodes de calculs publiées [(Kim et Ishimaru 1998)].

II.7.1 Exemple : I

L'exemple que nous montrons ici possède les caractéristiques suivantes:

- Particules sphériques en suspension dans un milieu d'indice $n = 1$ (pas d'interfaces physiques)
- Le nombre de directions discrétisées est fixée à 20,
- Indice des particules: $n_p = 2.8 + i0.01$,
- Rayon des particules: $210nm$,
- Longueur d'onde du rayonnement incident: $781nm \Rightarrow$ Paramètre de taille = 1.689,
- Fonction de phase intégrée sur l'angle azimutal Éq.(II.22): théorie de Mie. La figure II.9 montre la répartition angulaire de la fonction de phase calculée par la

théorie de Mie pour une seule particule. Les angles sont indiqués en degré et correspondent à l'angle relatif entre l'onde plane incidente et la direction d'observation,

- La concentration a été fixée de manière à obtenir une longueur de diffusion de $l_s = 0.65 \mu m$ ($l_s^* = 1.06$). Par conséquent, la longueur d'absorption vaut $l_a = 11 \mu m$ ($l_a^* = 18$),
- L'albédo et le paramètre d'anisotropie valent respectivement $a = 0.944$ et $g = 0.186$.

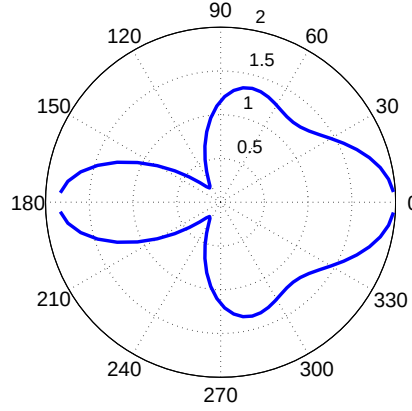


FIG. II.9 – *Fonction de phase de Mie pour une particule de rayon 210nm, d'indice $n_p = 2.8 + i0.01$, placée dans un milieu hôte d'indice $n = 1$, la longueur d'onde $\lambda = 781nm$*

II.7.1.1 Flux transmis

Le flux incident est une onde plane éclairant la couche sous incidence normale et dont la forme temporelle est une gaussienne: $A e^{-t^2/T^2}$, $A = 1$ et $T = 30fs$ (la largeur à mi-hauteur vaut $\approx 50fs$). Deux cas sont envisagés: une *fine* couche d'épaisseur $4\mu m$ et une couche *épaisse* de largeur $10\mu m$. Ils ont respectivement une épaisseur optique de 6.5 et 16.3. Nous résolvons l'ETR afin d'obtenir toutes les luminances transmises sur l'ensemble des directions de discrétisation en fonction du temps. Nous multiplions la luminance par le cosinus de l'angle afin d'obtenir le flux surfacique monochromatique directionnel transmis Éq.(II.54). Les figures II.10(b) et II.10(a) nous montrent le flux transmis en fonction du temps et pour chaque angle.

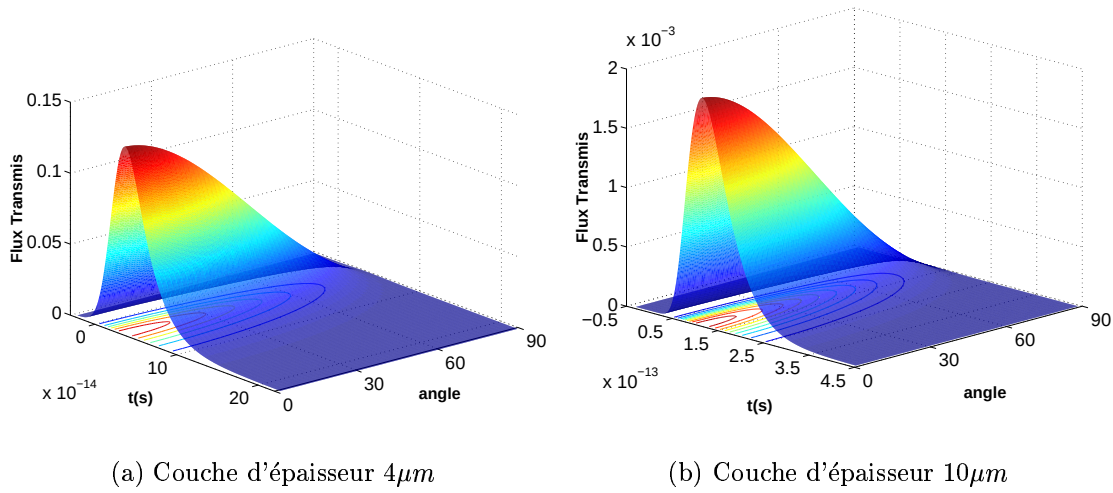


FIG. II.10 – *Flux surfacique directionnel transmis à travers une couche composée de particules sphériques en suspension dans un milieu d'indice $n = 1$, l'indice et le rayon des particules valent $n_p = 2.8 + i0.01$ et $r = 210\text{nm}$, la longueur d'onde de l'impulsion incidente qui est une gaussienne de largeur à mi-hauteur 50fs , vaut $\lambda = 781\text{nm}$. Les longueurs de diffusion, d'absorption, l'albédo et le paramètre d'anisotropie valent respectivement $l_s = 0.65\mu m$, $l_a = 11\mu m$, $a = 0.944$ et $g = 0.18$.*

L'impulsion incidente qui est gaussienne, est centrée sur $t = 0$. Nous observons :

- un décalage temporel du maximum de l'impulsion qui correspond au premier ordre, au temps de propagation des photons traversant le milieu. Par exemple pour la couche dont la largeur vaut $L = 4\mu m$, les photons traversent cette distance en $4 \cdot 10^{-6} / 3 \cdot 10^8 = 1.33 \cdot 10^{-14} \text{ s}$. Une étude plus détaillée [Tualle (1996)] montrerait que le maximum du flux transmis et réfléchi dépendrait des coefficients d'absorption, de diffusion du paramètre d'anisotropie et bien entendu de la largeur du milieu.
- Aux temps longs, le flux décroît de manière exponentielle et cela pour toutes les directions. Cela correspond aux photons qui sont restés longtemps dans le matériau et donc qui ont été diffusé de multiple fois. C'est en quelque sorte, un régime de diffusion que l'on atteint aux temps longs quelle que soit l'épaisseur. Cependant, il est essentiel de bien de voir que ce qui maintient les photons dans le système, pour une couche optiquement mince, ce sont les réflexions aux parois. Dès lors, il est clair que la décroissance temporelle exponentielle est surtout sensible aux facteurs de réflexion de Fresnel, et beaucoup moins au libre parcours moyen et au paramètre d'anisotropie. Nous reviendrons sur ce point au chapitre 4.
- L'amplitude du flux décroît au fur et à mesure que l'on s'écarte de la direction du flux incident (direction normale). A la limite, en direction rasante, le flux est rigoureusement nul.

II.7.1.2 Flux réfléchi

Nous prenons exactement le même problème physique et calculons cette fois-ci la luminance diffuse réfléchie dans toutes les directions discrétisées *arrière*. Dans les deux cas, la luminance réfléchie dépend peu de l'épaisseur des couches. En effet, aux courts instants, le signal ne dépend pas de l'épaisseur. En revanche, aux temps longs, il est piloté par les longs chemins qui dépendent de la réflexion R_d aux interfaces et de l'épaisseur L du milieu notamment. L'essentiel de l'énergie étant réfléchi dans les $5 \cdot 10^{-14}$ premières secondes, le rôle des longs chemins (et donc de L et de R_d) est minime.

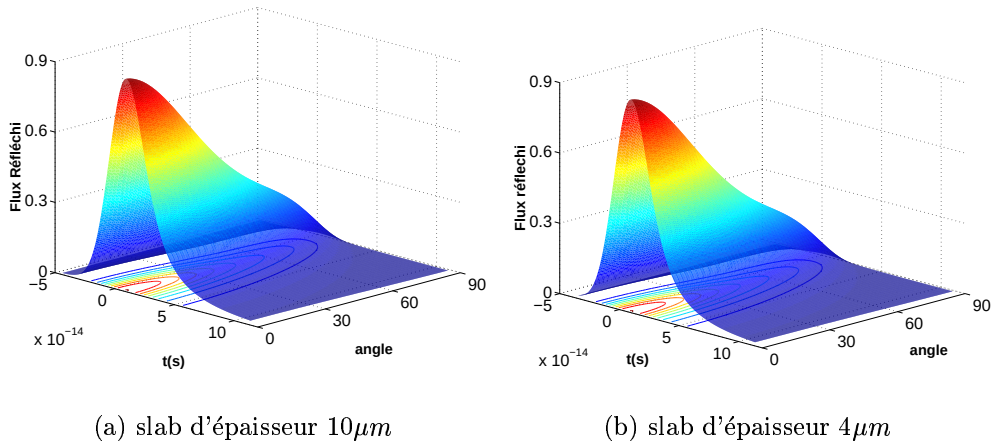


FIG. II.11 – *Flux surfacique monochromatique directionnel réfléchi*

II.7.2 Exemple : II

Le deuxième exemple consiste à montrer que nous obtenons les mêmes résultats que ceux obtenus par d'autres méthodes de résolutions de l'ETR instationnaire. Nous présentons ci-après les comparaisons entre nos calculs de flux transmis et réfléchis et ceux obtenus par Kim et Ishimaru [Kim et Ishimaru (1998)] qui comparent eux-mêmes plusieurs méthodes résolutions de l'ETR stationnaire et instationnaire. Les figures II.12(a); II.14(a); II.13(a); II.15(a) représente leur résultat de calcul de résolution numérique de l'ETR instationnaire basé sur la méthode des éléments finis dans le domaine spectrale. Leur calcul est comparé à l'approximation de la diffusion⁷.

Nous avons pris le même système qui se trouve dans l'article dont les caractéristiques sont les suivantes :

- Particules suspension dans un milieu d'indice $n = 1$ (pas d'interfaces physiques);
- le nombre de directions discrétisées est fixée à 20;

⁷. Il existe plusieurs définitions du coefficient de diffusion que l'on note : D . Nous discuterons de ce point plus en détails dans le prochain chapitre

- la fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein;
- la largeur à mi-hauteur de l'impulsion incidente est fixée à 10 *ps*;
- l'épaisseur de la couche est fixée à 3 *cm*.

Nous calculons les flux surfaciques hémisphériques monochromatiques diffus transmis et réfléchi Éq : (II.56) pour 4 situations différentes qui sont résumées dans le tableau suivant :

Albédo	g	l_{sca} (cm)	l_{abs} (cm)	l_{tr} (cm)
0.99	0.0	0.151	15	0.151
0.99	0.85	0.151	15	1.010
0.85	0.0	0.176	1	0.176
0.85	0.85	0.176	1	1.176

TAB. II.3 – Paramètres des différents cas envisagés

Le calcul des flux transmis et réfléchis à partir de l'ETR, nous montre que :

- la décroissance des flux suit une loi exponentielle aux temps longs;
- cette décroissance n'est pas la même selon qu'il y ait de l'absorption ou pas, de la diffusion ou pas. En effet la décroissance des flux transmis et réfléchi est beaucoup plus importante lorsqu'il y a plus d'absorption ($a = 0.85$) et que le paramètre d'anisotropie est élevé ($g = 0.85$);
- on a exactement le même comportement des flux transmis et réfléchis obtenus en résolvant l'ETR par la méthode des éléments finis [Kissilev et Perona (1994)] dans le domaine spectral décrite dans [Kim et Ishimaru (1998)];
- l'approximation de la diffusion qui découle de l'ETR revient à résoudre une équation différentielle de type parabolique. Cette équation fait apparaître un coefficient de diffusion que l'on note D . Celui-ci est différent selon que l'on prenne une approximation ou une autre. Nous observons que lorsqu'il y a très peu d'absorption et une diffusion isotrope, toutes les approximations de la diffusion donnent un résultat qui est en très bon accord avec la solution de l'ETR;
- par contre, ces approximations de la diffusion diffèrent de la solution de l'ETR lorsqu'il y a de l'absorption (voir Fig. II.12(b)) et/ou une diffusion anisotrope (voir Fig. II.13(b)). En effet, le choix du coefficient de diffusion est crucial notamment lorsque le système que l'on étudie présente de l'absorption et/ou une forte diffusion. Nous reviendrons en détails sur ce problème dans le chapitre suivant;
- notre méthode de calcul est en très bon accord par rapport à l'ensemble des différentes méthodes de résolutions de l'ETR instationnaire.

II.7.2.1 Flux transmis

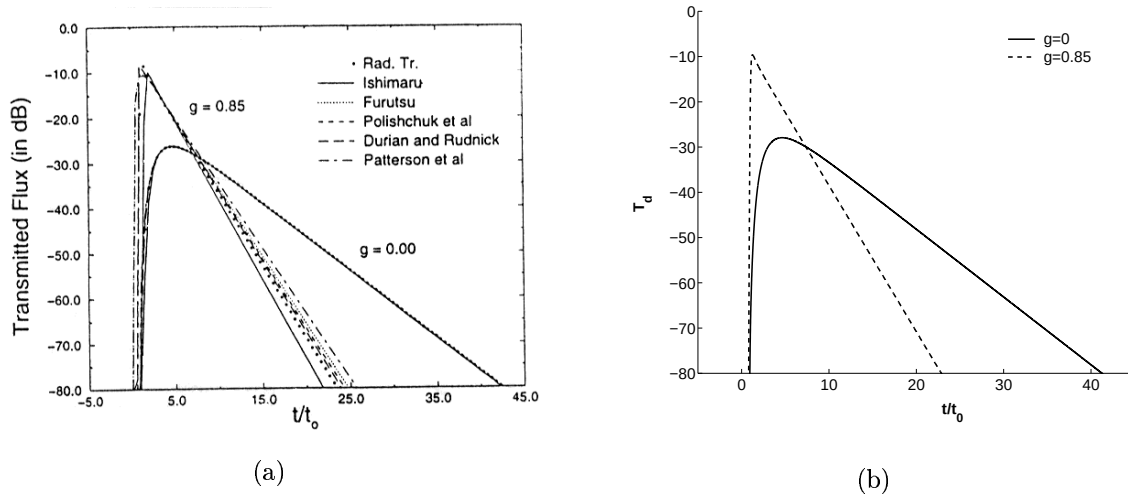


FIG. II.12 – Flux surfacique monochromatique hémisphérique transmis dans le cas où l'albédo est fixée à : $a=0.99$ et le paramètre d'anisotropie vaut dans un premier temps : $g=0$ et dans un second temps : $g=0.85$ [Kim et Ishimaru (1998)]

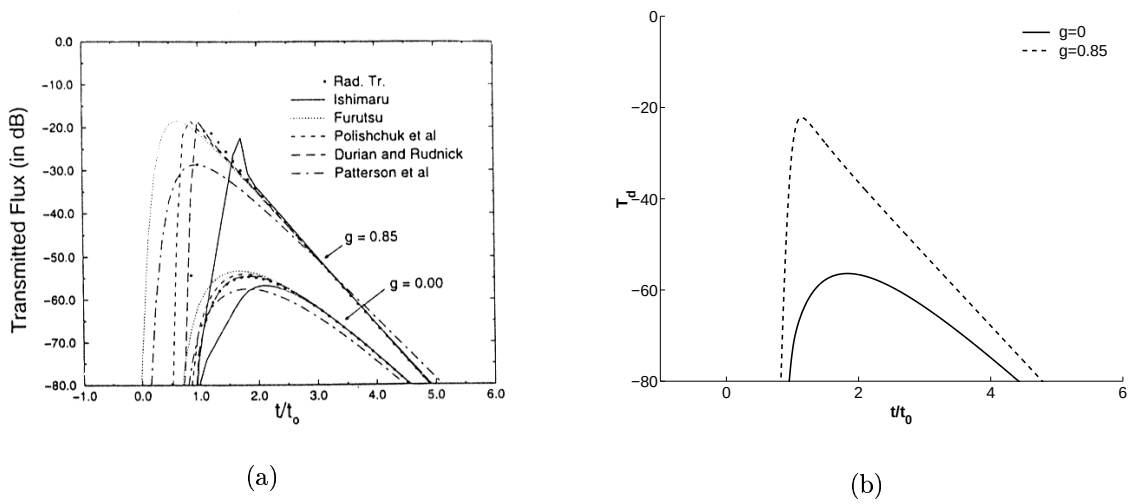


FIG. II.13 – Flux surfacique monochromatique hémisphérique transmis dans le cas où l'albédo est fixée à : $a=0.85$ et le paramètre d'anisotropie vaut dans un premier temps : $g=0$ et dans un second temps : $g=0.85$ [Kim et Ishimaru (1998)]

II.7.2.2 Flux réfléchi

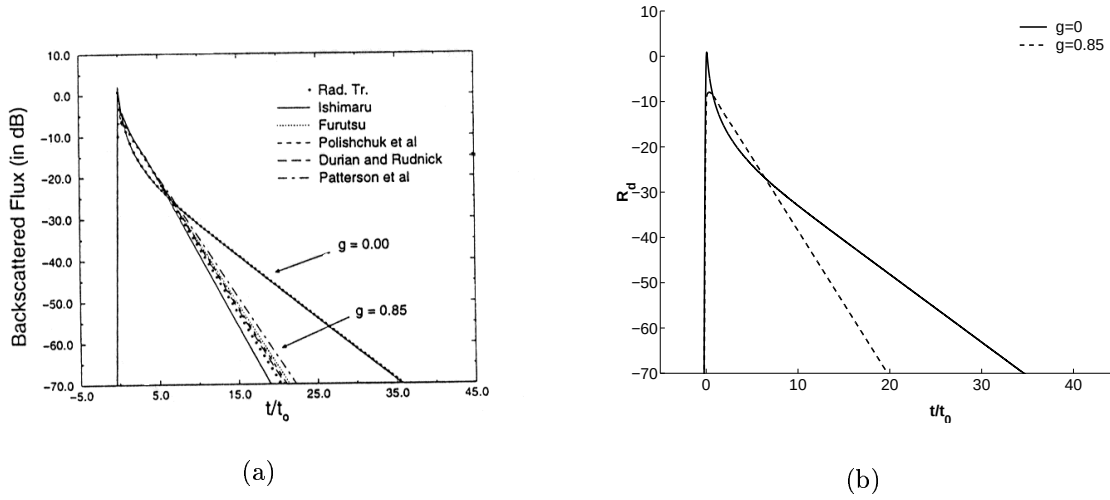


FIG. II.14 – Flux surfacique monochromatique hémisphérique réfléchi dans le cas où l'albédo est fixée à : $a=0.99$ et le paramètre d'anisotropie vaut dans un premier temps : $g=0$ et dans un second temps : $g=0.85$ [Kim et Ishimaru (1998)]

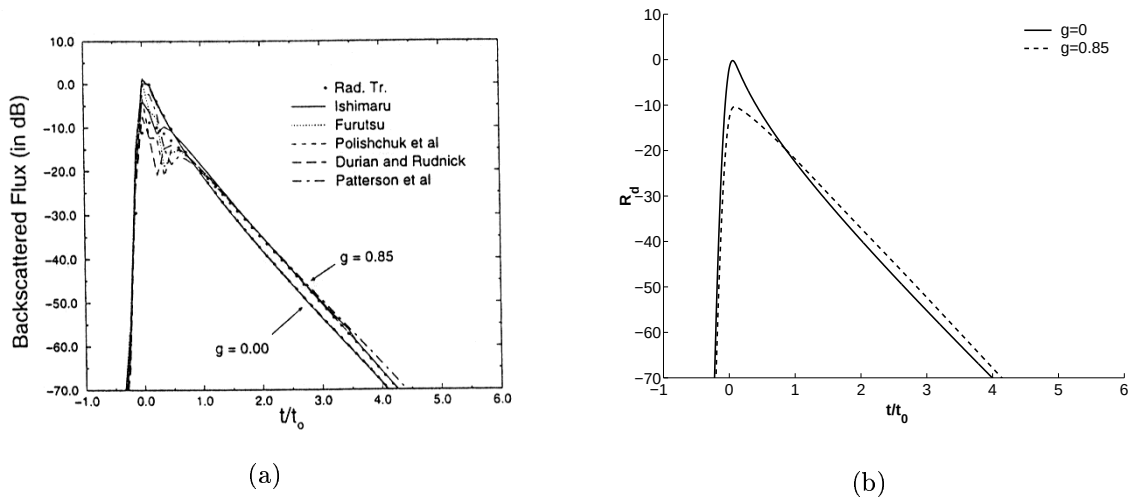


FIG. II.15 – Flux surfacique monochromatique hémisphérique réfléchi dans le cas où l'albédo est fixée à : $a=0.85$ et le paramètre d'anisotropie vaut dans un premier temps : $g=0$ et dans un second temps : $g=0.85$ [Kim et Ishimaru (1998)]

II.8 Conclusion

Nous avons présenté et développé une méthode de calcul numérique exacte de l'ETR en régime instationnaire dans une géométrie plane. La résolution de l'ETR se fait en passant à l'aide d'une transformée de Fourier, dans le domaine fréquentiel. Nous obtenons ainsi une équation de même type que celle de l'ETR en régime statique mais avec un coefficient d'extinction complexe. Pour la résoudre, nous avons appliqué la méthode des ordonnées discrètes qui est une méthode standard de résolution de l'ETR stationnaire. Nous avons introduit des conditions aux limites qui prennent en compte les facteurs de Fresnel en énergie dans le cas où le système contient des interfaces physiques. Cette méthode permet d'étudier la transmission et la réflexion d'une impulsion ultra-courte à travers un milieu diffusant et absorbant dans toutes les directions. Nous obtenons les flux surfaciques monochromatiques directionnels et hémisphériques en transmission et en réflexion.

Nous avons validé notre méthode de calcul en comparant nos résultats aux autres méthodes de résolutions numériques [Kim et Ishimaru (1998)] de l'ETR. Nous avons également comparé nos résultats obtenus par notre méthode de calculs par rapport aux résultats obtenus dans l'approximation de la diffusion.

En utilisant la résolution numérique de l'ETR comme solution de référence, nous avons observé que l'approximation de la diffusion ne fonctionne pas dans tous les cas. En fait, nous avons eu un premier aperçu d'un problème qui comprend deux aspects.

Le premier aspect concerne la transition entre les régimes. Nous pouvons le résumer par la question suivante : quel est le domaine de validité de l'approximation de la diffusion en fonction des échelles spatiales et temporelles du système ? L'étude de cette question est l'objet du chapitre 4.

Le second aspect concerne la définition du coefficient de diffusion D en présence d'absorption. Ce sujet a fait l'objet d'une controverse au cours des dernières années. Nous proposons au chapitre 3 une nouvelle approche du problème qui permet de définir de manière rigoureuse le coefficient de diffusion en milieu absorbant et en présence de diffusion anisotrope.

Chapitre III

Coefficient de diffusion en milieu diffusant et absorbant

Table des matières

III.1	Introduction	50
III.2	Approximation de la diffusion	50
III.2.1	Introduction	50
III.2.2	Différentes approximations	51
III.3	Coefficient de diffusion généralisé	53
III.3.1	Expression générale du flux d'énergie	53
III.3.2	Approche asymptotique	54
III.3.3	Définition du coefficient de diffusion	55
III.3.4	Discussion physique	56
III.4	Discussion et illustration des résultats	58
III.4.1	Modes propres et discussion physique	58
III.4.2	Coefficient de diffusion en fonction de l'absorption	61
III.4.3	Coefficient de diffusion en fonction de g	61
III.5	Approximation de la diffusion en régime temporel	64
III.5.1	Transmission dynamique à travers une couche plane	64
III.5.2	Importance du choix du coefficient de diffusion	66
III.6	Conclusion	68

III.1 Introduction

Nous présentons dans ce chapitre une nouvelle approche de l'approximation de la diffusion. Cette approche est fondée sur une décomposition de la luminance sur les modes propres de l'ETR [Case et Zweifel (1967)]. Dans ce cadre, l'approximation de la diffusion s'obtient par une analyse asymptotique de la luminance via les modes propres. Nous verrons qu'en régime diffusif, seul le mode associé à la plus petite valeur propre contribue à la propagation de la luminance et les autres modes sont atténués. Ceci nous amène à définir un coefficient de diffusion D valable tant pour les milieux absorbants que diffusants. Nous comparons notre définition du coefficient de diffusion aux autres coefficients obtenus par d'autres méthodes telles que l'approximation P_1 . Nous étudions la dépendance du coefficient D en fonction de l'albédo et du paramètre d'anisotropie.

Nous illustrons sur un calcul obtenu par l'ETR et par la solution analytique de l'équation de diffusion, l'importance d'une définition du coefficient de diffusion. Nous étudions également la validité de l'approximation de la diffusion. Nous montrons en particulier que l'approximation de la diffusion n'est plus valable dans les milieux ayant une faible épaisseur optique ($L^* < 8$) même aux longs temps. Ce qui est en contradiction avec les résultats de [Yoo *et al.* (1990)]. C'est par contre en accord avec ceux de [Kop *et al.* (1997)]. Par contre, elle prédit correctement la propagation de la densité d'énergie dans des milieux ayant une grande épaisseur optique.

III.2 Approximation de la diffusion

III.2.1 Introduction

L'approximation de la diffusion permet de passer de l'équation de transfert radiatif qui décrit la luminance en un point donné et dans une direction donnée, à une équation de type parabolique (du même type que l'équation de la chaleur) qui décrit l'évolution de la densité d'énergie. Cette densité a été définie dans le précédent chapitre comme étant : $U(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c} \int L(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) d\Omega$. La densité d'énergie dépend seulement de la position, éventuellement du temps et de la fréquence. Nous travaillerons par la suite à fréquence fixée. L'approximation de la diffusion simplifie la résolution du problème de transfert radiatif dans les milieux considérés. L'équation de diffusion obtenue est en effet plus simple à résoudre que l'ETR. Il apparaît dans l'équation un coefficient dit *coefficient de diffusion* D' qui décrit les propriétés physiques du milieu. L'équation de diffusion est la suivante :

$$\frac{\partial U}{\partial t} - D' \Delta U + \kappa c U = 0 \quad (\text{III.1})$$

Dans cette équation, la dimension du coefficient de diffusion D' est en m^2/s . Dans certains cas (par exemple les cas stationnaires), on utilise un coefficient de diffusion D en

m , ce qui revient à écrire l'équation de diffusion sous la forme :

$$\frac{1}{c} \frac{\partial U}{\partial t} - D \Delta U + \kappa U = 0 \quad (\text{III.2})$$

où c est la vitesse de l'énergie dans le milieu. L'approximation de la diffusion suppose que l'on soit en régime diffusif. Autrement dit, la densité d'énergie $U(\mathbf{r}, t)$ doit avoir des variations spatiales grandes devant la longueur de transport l_{tr} et temporelles lentes par rapport à l_{tr}/c . Il faut s'assurer que l'on est bel et bien dans le cadre de cette approximation mais également que l'on utilise le coefficient de diffusion le plus approprié.

Il existe plusieurs approches qui, partant de l'ETR, aboutissent toutes à l'équation de diffusion. Cependant, selon l'approche adoptée, on aboutit à des coefficients de diffusion différents. Le choix d'une expression pour le coefficient de diffusion dépendant ou pas de l'absorption est encore aujourd'hui un sujet de controverse [Aronson et Corngold (1999)]. Dans la suite de ce chapitre, nous utiliserons le coefficient de diffusion D exprimé en m .

III.2.2 Différentes approximations

III.2.2.1 Approche statistique

Dans le cas où l'on est dans un milieu où la longueur d'absorption est bien supérieure aux autres longueurs caractéristiques (milieux non absorbants), la luminance tend à devenir isotrope au-delà de la longueur de transport. En effet, dans un milieu diffusant, par exemple un nuage, la propagation de la lumière n'est plus rectiligne. La lumière y subit tellement de diffusions que la trace de sa direction initiale finit par être effacée et la luminance tend à devenir isotrope. Dans un tel régime de diffusion multiple, la description du mécanisme de transport diffusif peut être considéré comme un problème de marche au hasard des photons [Gandjbakhche et Weiss (1995)]. Ce modèle de marche au hasard permet d'obtenir une équation de diffusion et une valeur du coefficient de diffusion qui relie le flux photonique et le gradient de la densité d'énergie. Cette expression est l'équivalent de la loi de Fick (transport de particules), de loi de Fourier (conduction de la chaleur) ou de loi de Ohm (conduction électronique). Le coefficient de diffusion obtenu à partir d'un tel modèle vaut [Reif (1972)] :

$$D_{st} = \frac{l_{tr}}{3} = \frac{1}{3\sigma(1-g)} \quad (\text{III.3})$$

III.2.2.2 Approximation P_1

Cette méthode repose sur l'hypothèse d'une variation angulaire quasi isotrope de la luminance. La méthode consiste en un développement de la luminance sur les harmoniques sphériques. La précision de cette méthode et la complexité angulaire de la luminance augmente avec l'ordre de l'approximation. Dans le cadre de l'approximation P_1 , la luminance est supposée quasi isotrope et on la décompose en une contribution purement isotrope (densité d'énergie) et une contribution anisotrope (proportionnelle au

flux d'énergie) [Ishimaru (1978)]. L'approximation $P1$ suppose implicitement qu'il y ait une faible absorption dans le milieu. En effet, si l'absorption est forte, les photons sont absorbés avant d'être diffusés de sorte que l'on ne peut pas atteindre une situation où la luminance est quasi isotrope. De la même manière que dans la paragraphe précédent, on aboutit à une loi de Fick qui fait apparaître un coefficient de diffusion exprimé en m et qui vaut :

$$D_{P1} = \frac{1}{3[\kappa + \sigma(1 - g)]} \quad (\text{III.4})$$

III.2.2.3 Analyse asymptotique

La théorie de transport des neutrons [Bussac et Reuss (1986), Case et Zweifel (1967)] se base sur une équation de transport neutronique qui est du même type que l'ETR. Beaucoup de méthodes de résolution de cette équation ont été développées par les neutroniciens durant les années 1950 et 1960. Ces méthodes ont parfois été adaptées au transport d'énergie radiative dans des milieux aléatoires. Parmi ces méthodes, il y a l'analyse asymptotique analytique [Case et Zweifel (1967), chap4] qui consiste à développer la luminance sur une base de vecteurs propres pondérés par une exponentielle :

$$L_k(z, \mu) = \Phi_k(\mu) e^{-kz} \quad (\text{III.5})$$

La fonction Φ et la quantité k sont respectivement le vecteur et la valeur propre qu'on peut déterminer en injectant la luminance (Éq. (III.5)) dans l'ETR. Nous trouvons une relation de fermeture pour les vecteurs propres et une équation transcendante qui est en fait une relation de dispersion pour les valeurs propres k . Pour les milieux ayant une grande épaisseur optique, seul le mode associé à la plus petite valeur propre k_0 contribue, les autres étant complètement atténués. On peut à partir de cette valeur propre k_0 définir un coefficient de diffusion D rigoureux mais qui n'est pas explicite [Bowden et Williams (1964), Aronson et Corngold (1999)] :

$$D_{as} = \frac{\kappa}{k_0^2}. \quad (\text{III.6})$$

Tout le problème revient à calculer explicitement la valeur k_0 . Dans le cas isotrope, la relation de dispersion est donnée par :

$$\frac{a k}{2} \ln \frac{k+1}{k-1} = 1 \quad (\text{III.7})$$

Cette équation se résout par développement en série entière. Au premier ordre, nous obtenons la relation suivante pour le coefficient de diffusion valable dans le cas où la diffusion est isotrope et le milieu faiblement absorbant :

$$D_{as}^0 = \frac{1}{3(\sigma + 0.2\kappa)} \quad (\text{III.8})$$

En se basant sur une analyse asymptotique de l'équation de transfert radiatif en régime statique [Aronson et Corngold (1999), Graaff et Ten Bosch (2000)] ou sur l'équation des télégraphistes [Durian (1998)], Aronson *et al.* aboutissent à une expression du coefficient de diffusion qui est de la forme :

$$D_{as}^{\alpha} = \frac{1}{3(\alpha\kappa + \sigma(1 - g))} \quad (\text{III.9})$$

où α est un paramètre spécifique à chaque cas qui se situe dans l'intervalle $[0.2; 0.8]$. Le coefficient de diffusion (Éq. (III.9)) est partiellement satisfaisant car le paramètre α qui est un facteur de correction dépend du coefficient d'absorption et de la fonction de phase. C'est un paramètre tabulé qui dépend de l'albédo, du paramètre d'anisotropie, etc. Ainsi la définition de ce coefficient de diffusion n'explicite pas clairement la dépendance des différents paramètres apparaissant dans l'expression.

Nous présenterons dans ce chapitre une nouvelle expression du coefficient de diffusion valable dans des milieux absorbants, ayant une diffusion anisotrope ou pas. Ce coefficient de diffusion *généralisé* découle d'une analyse asymptotique basée sur les modes propres de l'équation de transfert radiatif. Notre approche est différente de celle proposée par Case *et al.* [Case et Zweifel (1967)] et permet une nouvelle interprétation du coefficient de diffusion en le reliant à la répartition angulaire du mode propre fondamental.

III.3 Coefficient de diffusion généralisé

III.3.1 Expression générale du flux d'énergie

Nous raisonnons sur une géométrie plane (une couche) et nous partons de l'équation de transfert radiatif en régime statique. La tranche du milieu diffusant est éclairé par une onde plane monochromatique en incidence normale. L'ETR s'écrit dans ce cas :

$$\mu \frac{\partial L(z, \mu)}{\partial z} = -(\kappa + \sigma) L(z, \mu) + \frac{\sigma}{2} \int_{-1}^{+1} p(\mu', \mu) L(z, \mu') d\mu' \quad (\text{III.10})$$

En appliquant l'opérateur $\int ... d\mu$ à l'équation (III.10) et en introduisant le flux radiatif et la densité d'énergie qui valent respectivement :

$$q_z(z) = \int_{-1}^{+1} \mu L(z, \mu) d\mu \quad (\text{III.11})$$

$$U(z) = \frac{1}{c} \int_{-1}^{+1} L(z, \mu) d\mu \quad (\text{III.12})$$

nous obtenons :

$$\frac{\partial}{\partial z} q_z(z) = -\kappa c U(z) \quad (\text{III.13})$$

On applique ensuite l'opérateur $\int \dots \mu d\mu$ à l'équation (III.10) et à l'aide de la relation (III.13), nous obtenons¹ :

$$\begin{aligned} \int_{-1}^{+1} \mu^2 \frac{\partial L(z, \mu)}{\partial z} d\mu &= -(\kappa + \sigma) \int_{-1}^{+1} \mu L(z, \mu) d\mu + \frac{\sigma}{2} \int_{-1}^{+1} \int_{-1}^{+1} \mu p(\mu, \mu') L(z, \mu') d\mu d\mu' \\ &= -(\kappa + \sigma) q_z(z) + \sigma g q_z(z) \end{aligned}$$

Nous en déduisons ainsi une expression générale, et exacte, du flux radiatif :

$$q_z(z) = \frac{-1}{\kappa + \sigma(1 - g)} \frac{\partial}{\partial z} \int_{-1}^{+1} \mu^2 L(z, \mu) d\mu \quad (\text{III.14})$$

III.3.2 Approche asymptotique

Dans le chapitre précédent, nous avons indiqué la solution générale de la luminance exprimée à partir des modes propres du système (Éq. (II.44)). Ainsi la luminance diffuse est la superposition de l'ensemble de tous les modes propres. Chaque mode décroît exponentiellement selon une constante de longueur qui est l'inverse de la valeur propre associée à ce mode. En régime asymptotique, seul le mode associé à la plus petite valeur propre existe encore tandis que les autres ont été atténués. Par conséquent le comportement diffusif (*approximation de la diffusion*) est directement lié à ce mode propre qu'on appellera **mode fondamental**. La seule hypothèse que nous ferons se base sur le fait que la dimension caractéristique du milieu est suffisamment grande par rapport aux échelles de longueurs de transport et d'absorption. Nous pouvons écrire la forme asymptotique de la luminance en ne tenant compte que du mode fondamental [Case et Zweifel (1967)] :

$$L(z, \mu) = c_0^+ g_0^+(\mu) \exp(-k_0 z) + c_0^- g_0^-(\mu) \exp(k_0 z) \quad (\text{III.15})$$

où $g_0^\pm(\mu)$ sont les vecteurs propres associés aux valeurs propres $\pm k_0$, la valeur k_0 étant la plus petite valeur propre en valeur absolue du système considéré². Les vecteurs propres sont normalisés par $\int_{-1}^{+1} g_0^\pm(\mu) d\mu = 1$ et les constantes $c_0^\pm$ dépendent des conditions aux limites. En insérant l'expression asymptotique de la luminance dans l'équation du flux radiatif (Éq. (III.14)), nous obtenons la relation suivante :

$$q_z(z) = \frac{k_0}{\kappa + \sigma(1 - g)} [c_0^+ \langle g_0 \rangle \exp(-k_0 z) + c_0^- \langle g_0 \rangle \exp(k_0 z)] \quad (\text{III.16})$$

1. nous avons utilisé la relation suivante qui est démontrée en annexe F : $\int_{-1}^{+1} \mu p(\mu', \mu) d\mu = 2g\mu'$

2. Contrairement au chapitre 2 où les valeurs propres sont adimensionnées, ici elle est en m^{-1}

où $\langle g_0 \rangle$ est un facteur qui s'exprime comme suit :

$$\langle g_0 \rangle = \int_{-1}^{+1} \mu^2 g_0^\pm(\mu) d\mu \quad (\text{III.17})$$

Remarquons que la valeur du facteur $\langle g_0 \rangle$ est la même pour le mode g_0^+ ou pour le mode g_0^- . En effet le mode propre associé à la valeur propre $-k_0$ est symétrique par rapport au mode propre associé à la valeur $+k_0$.

$$g_0^-(-\mu) = g_0^+(\mu) \quad (\text{III.18})$$

Nous pouvons relier le vecteur flux radiatif à la densité d'énergie par une relation de type *loi de Fick*. Pour cela, nous calculons explicitement l'expression de la densité d'énergie à l'aide des équations (III.12) et (III.15), qui vaut :

$$U(z) = \frac{1}{c} [c_0^+ \exp(-k_0 z) + c_0^- \exp(k_0 z)] \quad (\text{III.19})$$

et en l'identifiant à l'équation (III.16), nous obtenons finalement une équation du type *la loi de Fick* :

$$q_z(z) = -\frac{c}{\kappa + \sigma(1 - g)} \langle g_0 \rangle \frac{\partial U(z)}{\partial z} \quad (\text{III.20})$$

III.3.3 Définition du coefficient de diffusion

On reconnaît dans l'équation (III.20) une loi de diffusion où l'on peut isoler un coefficient de diffusion. À ce stade, l'hypothèse de base ne concerne ni l'absorption, ni un comportement angulaire de la luminance contrairement à l'approximation P_1 qui se base sur une hypothèse de quasi-isotropie de la luminance. De cette relation, nous identifions un coefficient de diffusion dépendant des longueurs de diffusion, d'absorption, du paramètre d'anisotropie et du facteur $\langle g_0 \rangle$. Le coefficient de diffusion identifié, exprimé en m^2/s vaut :

$$D' = \langle g_0 \rangle \frac{c}{\kappa + \sigma(1 - g)} \quad (\text{III.21})$$

et l'équation (III.20) s'écrit de la manière suivante :

$$q_z(z) = -D' \frac{\partial U(z)}{\partial z}$$

En substituant cette expression dans l'équation (III.13), nous obtenons l'équation de diffusion pour la densité d'énergie :

$$D' \Delta U - \kappa c U = 0 \quad (\text{III.22})$$

Ce type d'équation peut être résolu avec un coefficient de diffusion en m^2/s comme par exemple dans [Durduran, Yodh, Chance, et Boas (1997)]. Toutefois, il peut être plus

commode (notamment dans les cas où l'on traite des problèmes stationnaires) d'utiliser un coefficient de diffusion exprimé en m . En particulier, ce coefficient ne dépend plus de la vitesse de transport de l'énergie c . Dans ce cas, on définit le coefficient de diffusion par :

$$D = \langle g_0 \rangle \frac{1}{\kappa + \sigma(1 - g)} \quad (\text{III.23})$$

et le flux radiatif s'écrit :

$$q_z(z) = -Dc \frac{\partial U(z)}{\partial z}$$

L'équation de diffusion stationnaire à résoudre s'exprime alors de la manière suivante :

$$D\Delta U - \kappa U = 0 \quad (\text{III.24})$$

Ce coefficient D est issu d'une théorie asymptotique modale de l'équation de transfert radiatif en régime stationnaire. Il ne dépend d'aucune hypothèse concernant l'absorption ou le facteur d'anisotropie. On remarquera que l'expression de ce coefficient de diffusion est déterminée par le moment d'ordre deux de la distribution angulaire $\langle g_0 \rangle$ du mode fondamental g_0 .

L'équation (III.23) est rigoureuse, dans le sens où le comportement diffusif du flux radiatif est directement obtenu à partir du mode fondamental. De plus, nous ne devons pas employer la solution de l'équation de diffusion pour en extraire un coefficient de diffusion D comme c'est le cas dans l'approche initiale de Case et Zweifel [Case et Zweifel (1967), (Aronson et Corngold 1999)].

III.3.4 Discussion physique

L'expression obtenu pour D est semblable à celles obtenues par les autres théories, avec $\langle g_0 \rangle$ qui apparaît comme un facteur correctif. Dans le cas particulier où l'on a un mode fondamental qui est *isotrope*, on a $g_0^\pm(\mu) = 1/2$ et ainsi $\langle g_0 \rangle = 1/3$. On retrouve dans ce cas, le résultat de l'approximation P_1 .

Nous montrons également une équivalence de notre approche qui est basée sur les modes propres par rapport à une approche asymptotique [Case et Zweifel (1967), Aronson et Corngold (1999), Graaff et Ten Bosch (2000)] basée cette fois-ci sur les valeurs propres. Le flux et la densité d'énergie sont reliées par équation (III.13). En y introduisant les relations (III.20) et (III.19), nous obtenons une expression reliant le facteur $\langle g_0 \rangle$ et la valeur propre k_0 :

$$\langle g_0 \rangle = \frac{\kappa(\kappa + \sigma(1 - g))}{k_0^2}$$

En remplaçant cette expression dans la relation du coefficient de diffusion Eq. (III.23), nous obtenons finalement :

$$D = \frac{\kappa}{k_0^2}$$

qui est exactement la même expression (Éq. (III.6)) que celle obtenue par Case *et al* [Case et Zweifel (1967)]. Notre résultat est donc strictement équivalent à celui de Case *et al*. Dans la suite du chapitre, les facteurs D et D_{as} représentent exactement la même quantité à savoir le coefficient de diffusion obtenu par la théorie asymptotique modale.

La validité de l'équation (III.23) repose sur le fait que l'on puisse écrire la luminance à partir du mode fondamental (Éq. (III.15)). En effet, l'hypothèse de base est fondée sur le fait que le milieu ait une grande épaisseur optique de sorte que seul le mode fondamental persiste et que les autres modes sont fortement atténués. Ceci se produit sous deux conditions :

1. la valeur propre k_1 associée au deuxième mode propre ne doit pas être proche de la valeur propre du mode fondamental : $k_1 \gg k_0$;
2. la quantité $-k_1 L$ qui est en argument de l'exponentielle doit être suffisamment petite afin que le second mode propre soit atténué où L est l'épaisseur du milieu. La condition se résume à $k_1 L \gg 1$.

La seconde condition est vérifiée dans le cas où le milieu possède une grande épaisseur optique. Tandis que la première n'est pas si évidente. Nous avons vérifié numériquement que la différence entre les valeurs propres k_0 et k_1 est assez grande pour que l'expression asymptotique limitée au mode fondamental de la luminance soit vérifiée. En effet, nous avons calculé pour 4 cas différents, les trois premières valeurs propres. Elles sont représentées dans le tableau III.1.

	$\omega_0 = 0.988$		$\omega_0 = 0.840$	
	$g = 0$	$g = 0.343$	$g = 0$	$g = 0.343$
k_0 (μm^{-1})	0.1989	0.1616	0.8100	0.6800
k_1 (μm^{-1})	1.0662	1.0661	1.2539	1.2539
k_2 (μm^{-1})	1.0700	1.0697	1.2585	1.2582

TAB. III.1 – Comparaison des trois premières valeurs propres dans 4 cas différents

Nous pouvons observer dans le tableau III.1 que l'écart entre les deux premières valeurs propres justifie le développement asymptotique de la luminance sur le mode fondamental. À chaque mode propre est associé une valeur propre k dont la dimension est en m^{-1} et une longueur d'atténuation $1/k$. Ainsi, le mode fondamental possède la plus grande longueur d'atténuation $1/k_0$.

On note également que la valeur propre associée au mode fondamental décroît lorsque le paramètre d'anisotropie g augmente. En effet, plus g est élevé, plus la diffusion vers l'avant est importante.

En résumé, nous pouvons dire que le coefficient de diffusion obtenu :

- est directement défini à partir du comportement asymptotique de la luminance;
- a une forme similaire au coefficient de diffusion obtenu par l'approximation $P1$. Le facteur $\langle g_0 \rangle$ apparaît comme un facteur correctif. Si l'on a un mode fondamental qui est purement isotrope, alors $\langle g_0 \rangle = 1/3$ et nous retrouvons le résultat de l'approximation $P1$;
- ne suppose aucune hypothèse concernant le niveau d'absorption;
- est valable même si la luminance n'est pas quasi isotrope, contrairement à l'hypothèse de base de l'approximation $P1$ [Ishimaru (1978)].

III.4 Discussion et illustration des résultats

III.4.1 Modes propres et discussion physique

La figure III.1 nous indique le comportement angulaire du *mode fondamental* ainsi que le mode propre associé à la seconde valeur propre dans un milieu où la diffusion est anisotrope. Nous voyons effectivement que la structure angulaire des modes propres devient de plus en plus complexe. La luminance diffuse est une superposition de l'ensemble des modes pondérés par des constantes qui dépendent des conditions aux limites. Voyons maintenant le comportement angulaire du mode fondamental en fonction du facteur d'anisotropie et de l'absorption.

III.4.1.1 Paramètre d'anisotropie

On se place dans les mêmes conditions physiques que le cas précédent, nous observons sur la figure III.2 qu'il y a une légère influence du paramètre d'anisotropie g sur le comportement angulaire du mode fondamental.

III.4.1.2 Absorption

On se situe dans le même cas que celui de la figure précédente, mais avec un paramètre d'anisotropie fixé à $g = 0.5$ et l'albédo qui varie. Pour cela on fixe le coefficient $\sigma = 1/l_s$ et c'est le coefficient d'absorption κ qui varie. Nous voyons sur la figure III.3 que pour une faible absorption ($a=0.995$) le mode est quasi isotrope. Il faut effectivement une légère anisotropie de la luminance pour conserver un flux non nul. En diminuant l'albédo ($a=0.85$ et $a=0.6$), le mode fondamental devient de plus en plus anisotrope. Notons que

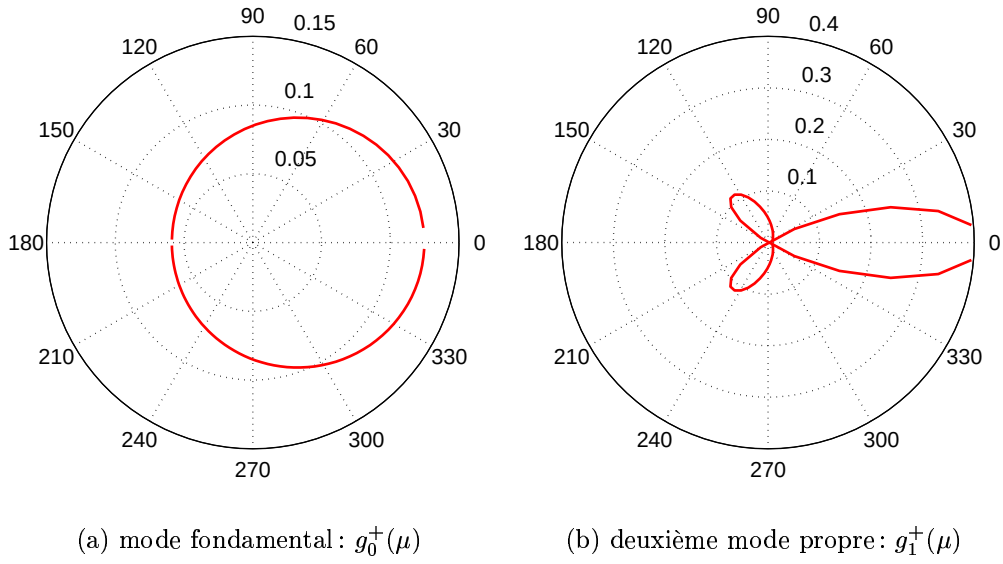


FIG. III.1 – Diagramme polaire représentant le mode fondamental $g_0^+(\mu)$ (Fig(a)) ainsi que le mode propre associé à la seconde valeur propre $g_1^+(\mu)$ (Fig(b)). La fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein, le paramètre d'anisotropie vaut $g = 0.8$, la longueur d'absorption $l_a = 100 \mu\text{m}$, la longueur de diffusion $l_s = 0.95 \mu\text{m}$ et la longueur de transport $l_{tr} = 4.65 \mu\text{m}$. Dans ce cas, la plus petite valeur propre et la suivante valent respectivement $k_0 = 0.0757619\text{m}^{-1}$ ($1/k_0 = 13.1992\text{m}$) et $k_1 = 0.613895\text{m}^{-1}$ ($1/k_1 = 1.6289\text{m}$)

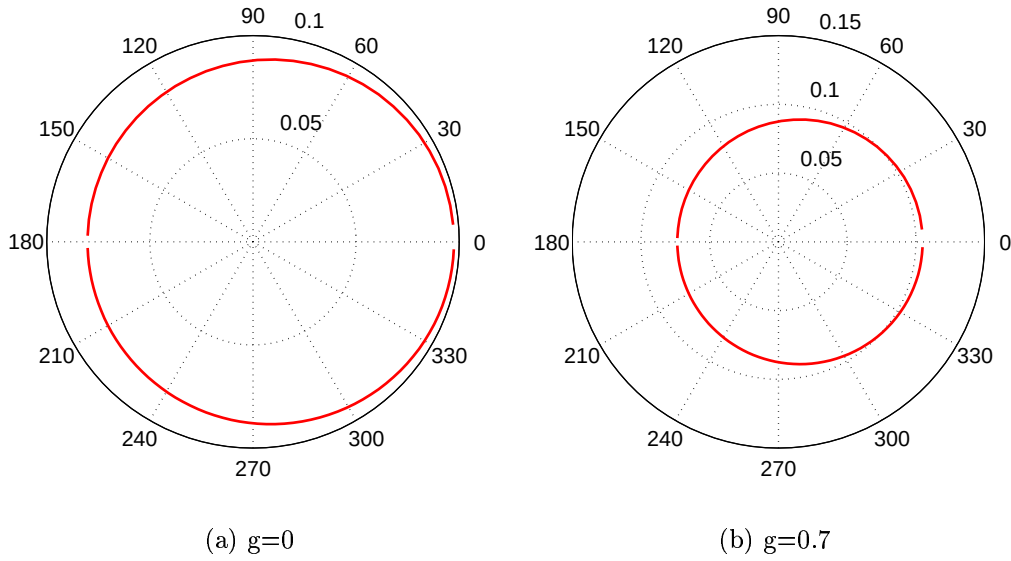


FIG. III.2 – Représentation polaire du mode fondamental calculé dans les mêmes conditions que le cas précédent. La fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein, les longueurs d'absorption et de diffusion sont fixées respectivement à $l_a = 100 \mu\text{m}$ et $l_s = 0.95 \mu\text{m}$. Dans un cas Fig.III.1(a), la fonction de phase est isotrope $g = 0$ et l'autre cas Fig.III.1(b), le paramètre d'anisotropie vaut $g = 0.7$

l'approximation P_1 ne serait pas du tout valable pour ces cas-là mais nous pouvons toujours définir un coefficient de diffusion D car seul le mode fondamental de l'ETR contribue à la luminance.

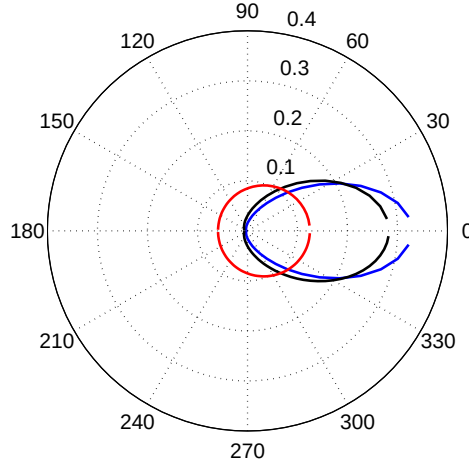


FIG. III.3 – Diagramme polaire du mode fondamental $g_0^+(\mu)$ pour trois valeurs de l'albédo : $a=0.995$; $a=0.85$; $a=0.6$

On peut comprendre l'allure du mode à l'aide d'un modèle de photons effectuant une marche au hasard dans le milieu. En effet si la longueur d'absorption est plus petite que la longueur de transport, la luminance ne peut pas atteindre une structure quasi isotrope vu que les photons sont absorbés bien avant d'atteindre un régime de diffusion multiple. Dans ce cas, le mode fondamental n'est pas quasi isotrope. C'est pour cela que l'approximation P_1 échoue bien que la loi de Fick reste valable.

III.4.1.3 Facteur $\langle g_0 \rangle$

Nous étudions la variation de $\langle g_0 \rangle$ en fonction de l'absorption dans un cas où la diffusion est isotrope $g = 0$ et un autre cas où on l'on a une diffusion anisotrope $g = 0.5$.

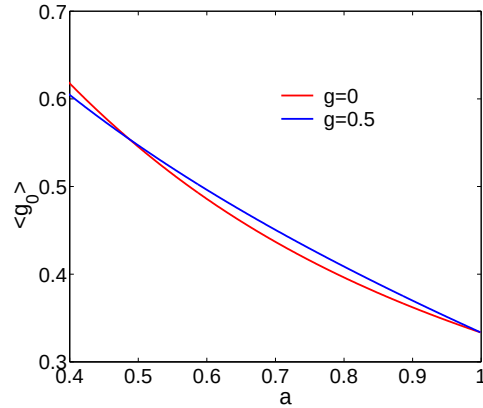


FIG. III.4 – Comportement du facteur $\langle g_0 \rangle$ en fonction de l'albédo dans le cas où la diffusion est isotrope $g = 0$ et anisotrope $g = 0.5$

Nous observons sur la figure III.4 que lorsqu'on n'a pas d'absorption $a = 1$, le facteur $\langle g_0 \rangle$ tend vers $1/3$. Nous retrouvons alors $D = \frac{1}{3}l_{tr}$ qui est connu pour être le résultat exact en absence d'absorption. Nous voyons également qu'il y a une faible dépendance de $\langle g_0 \rangle$ en fonction du paramètre d'anisotropie.

III.4.2 Coefficient de diffusion en fonction de l'absorption

Nous montrons dans ce paragraphe, le comportement du coefficient de diffusion D calculé par notre approche en fonction de l'absorption. Les figures III.5(a) et III.5(b) montrent la dépendance du coefficient de diffusion en fonction de l'albédo pour une longueur de transport fixée à $l_{tr} = 0.95\mu m$. La fonction de phase utilisé est celle de Henyey-Greenstein. Dans le premier cas, la valeur du facteur d'anisotropie est fixée à $g = 0$ et dans le deuxième cas à $g = 0.5$. Nous avons superposé les différents coefficients de diffusion issus des différentes approximations et ceci afin de les comparer, à savoir :

- D_{as} est le coefficient issu du comportement asymptotique modale. Il est calculé numériquement à partir du mode fondamental de l'ETR. C'est le coefficient donné par l'équation (III.23).
- D_{P1} est directement donnée par l'équation (III.4). Nous rappelons que cette théorie est largement utilisée notamment dans l'imagerie médicale [Ishimaru (1978)].
- D_{st} est le coefficient obtenu à partir d'une approche statistique microscopique [Lagendijk et van Tiggelen (1996)] de particules dans un milieu non absorbant. Notons juste l'expression de ce coefficient de diffusion a été proposé par quelques auteurs comme étant le coefficient de diffusion exact même en présence d'absorption [Furutsu et Yamada (1994), Bassani *et al.* (1997), Durian et Rudnick (1997)] résultat qui s'avère incorrect selon les articles suivants [Aronson et Corngold (1999), Durian (1998), Graaff et Ten Bosch (2000)].

- $D_{as}^0 = 1/(3(\sigma(1-g)) + 0.2\kappa)$ est le développement au premier ordre de D_{as} qui correspond à un milieu où la diffusion est isotrope et l'absorption négligeable [Aronson et Corngold (1999)].

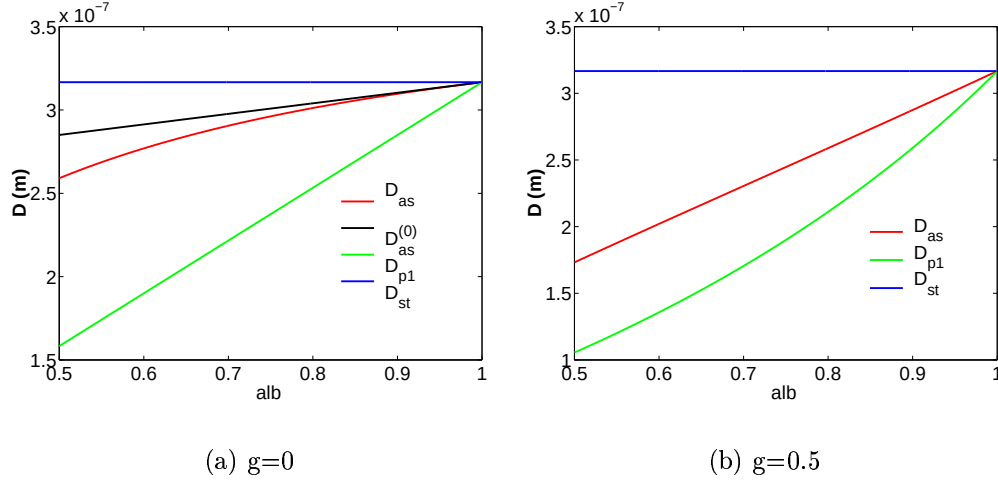


FIG. III.5 – Comportement du coefficient de diffusion D en m en fonction de l'albédo a pour une longueur de transport fixée à $l_s = 0.95\mu\text{m}$ et un paramètre d'anisotropie fixé à $g = 0$ (Fig.(a)) et à $g = 0.5$ (Fig.(b)). La fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein

Dans le cas où la diffusion est isotrope (paramètre d'anisotropie $g = 0$), l'approximation $P1$ et la théorie asymptotique modale sont clairement différentes au fur et à mesure que l'albédo diminue et donc que l'absorption augmente. Nous observons sur la figure III.5 que l'approximation $P1$ sous estime le coefficient D . Lorsque la diffusion est anisotrope ($g = 0.5$), la dépendance de l'absorption devient de plus en plus importante. L'expression D_{as}^0 donne un résultat assez précis pour un albédo $a > 0.8$. Quand l'anisotropie augmente, la dépendance du coefficient de diffusion en fonction de l'absorption devient de plus en plus importante par rapport aux autres définitions du coefficient de diffusion.

III.4.3 Coefficient de diffusion en fonction de g

Pour étudier la dépendance du coefficient de diffusion D en fonction du paramètre d'anisotropie, nous devons bien entendu faire varier g et fixer deux paramètres parmi les suivants: a , l_{abs} , l_{sca} , l_{tr} . Cela fixera automatiquement les autres paramètres du système. Nous montrons dans un premier temps via deux exemples, l'influence du paramètre d'anisotropie en fonction de g dans le cas où l'on fixe l'albédo a et la longueur de diffusion l_{sca} . Dans un deuxième temps, nous fixerons les longueurs d'absorption l_{abs} et de transport l_{tr} .

Nous fixons la longueur de diffusion $l_{sca} = 0.95\mu\text{m}$. Les figures III.6 montrent l'influence du paramètre d'anisotropie pour une valeur fixée de l'albédo $a = 0.995$ et $a = 0.85$.

Pour un milieu faiblement absorbant (Fig. III.6(a)), les différents coefficients de diffusion prédisent le même comportement sauf pour D_{st} qui ne dépend pas explicitement du paramètre d'anisotropie. Notons que dans ce cas-là, le coefficient de diffusion est multiplié par un facteur cinq lorsqu'on passe de $g = 0$ à $g = 0.8$. Par contre lorsqu'on a un peu

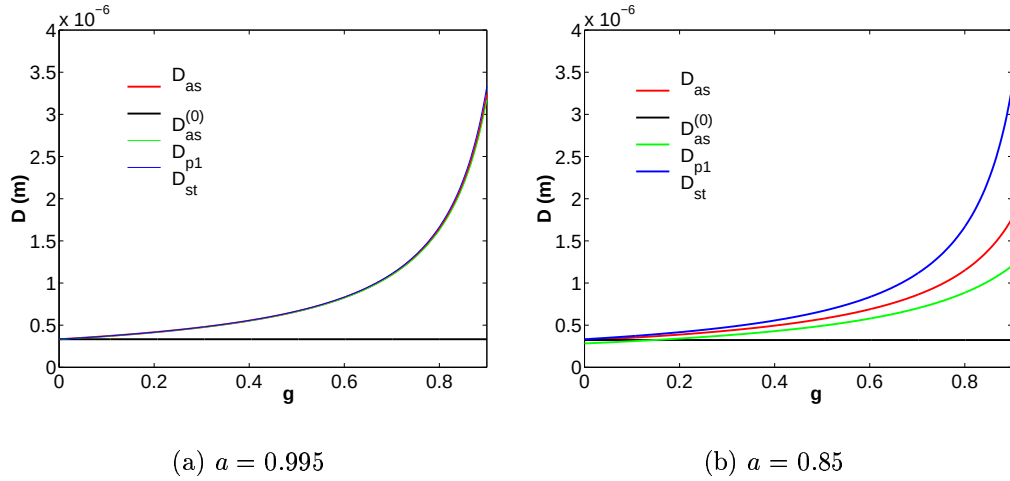


FIG. III.6 – Comportement du coefficient de diffusion D en m en fonction du paramètre d'anisotropie g pour une longueur de diffusion fixée à $l_s = 0.95\mu m$, un albédo fixé à $a = 0.995$ (Fig.(a)) et à $a = 0.85$ (Fig.(b)). La fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein

plus d'absorption (Fig. III.6(b)), les coefficients de diffusion se différencient au fur et à mesure que le paramètre d'anisotropie augmente. L'approximation P_1 est sous estimée par rapport à la valeur du coefficient de diffusion D_{as} . Par exemple, pour $g = 0.8$, il y a 40% de différence entre les deux théories. Ces résultats démontrent que les expressions de D_{P1} et de D_{st} ne décrivent pas la dépendance du coefficient de diffusion lorsqu'on a une diffusion anisotrope dans un milieu absorbant.

L'influence du facteur d'anisotropie g sur le coefficient de diffusion D , pour une valeur fixée des libres parcours moyens d'absorption l_{abs} et de transport l_{tr} est montrée sur la figure III.7. Les coefficients de diffusion D_{st} et D_{P1} qui dépendent de l_{abs} et de l_{tr} sont constants. Tandis que l'expression de D_{as} prévoit une légère dépendance de g . Cette dépendance est indiquée par le facteur $\langle g_0 \rangle$ dans l'équation (III.23). C'est une propriété intéressante de notre nouvelle approche du coefficient de diffusion, bien qu'en pratique, on pourrait négliger cette dépendance comme pourrait le montrer la figure III.7.

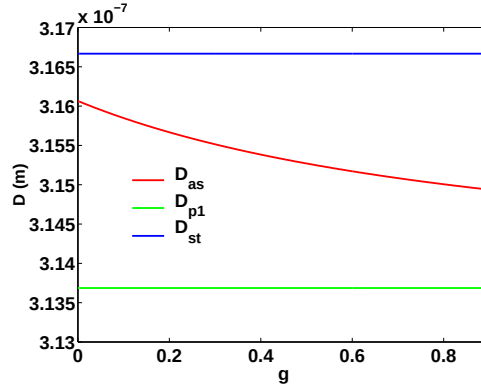


FIG. III.7 – Coefficient de diffusion D en m en fonction du paramètre d'anisotropie g pour une longueur de transport fixée à $l_{tr} = 0.95\mu\text{m}$ et une longueur d'absorption $l_{abs} = 0.1\text{mm}$

III.5 Approximation de la diffusion en régime temporel

Nous illustrons dans cette section l'importance d'une définition correcte du coefficient de diffusion pour le transport radiatif en régime instationnaire. Ceci est d'un grand intérêt notamment dans le domaine de l'imagerie médicale qui utilise la lumière diffusée par les tissus biologiques. On trouvera des références concernant les techniques d'imagerie médicale à partir de la lumière diffusée dans les articles suivants [Yodh et Chance (1995), Gayen et Alfano (1996), Mandelis (2000), Liu *et al.* (1994), Bizheva *et al.* (1998)].

III.5.1 Transmission dynamique à travers une couche plane

Une des manières d'aboutir à l'équation qui décrit la densité d'énergie (dans le cadre de l'approximation de la diffusion) peut être obtenue à partir de l'ETR dans la limite où les variations spatio-temporelles de la luminance sont lentes par rapport au libre parcours moyen de diffusion l_s et au temps moyen entre deux événements de diffusion l_s/c .

Nous obtenons ainsi l'équation (III.2) qui avec un terme source devient :

$$\frac{\partial U(\mathbf{r}, t)}{\partial t} - D' \nabla^2 U(\mathbf{r}, t) + c \kappa U(\mathbf{r}, t) = q(\mathbf{r}, t) \quad (\text{III.25})$$

où D' est le coefficient de diffusion en m^2/s et $q(\mathbf{r}, t)$ est le terme source. Dans l'approximation de la diffusion, le flux surfacique hémisphérique transmis $T(t)$ peut être calculé analytiquement en résolvant l'équation (III.25). La résolution s'effectue en utilisant la méthode des images et les conditions aux limites extrapolées à la largeur effective [Ishimaru (1978)]. Le calcul détaillé est effectué en annexe D. Si la source est ponctuelle

en espace et en temps $q(z, t) = \delta(z)\delta(t)$ nous obtenons la relation suivante :

$$T(t) = \frac{H(t)D'}{d} \exp(-c \kappa t) \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\pi m}{d} \sin\left(\frac{\pi m L}{d}\right) \exp\left(-\frac{\pi^2 m^2 D' t}{d^2}\right) \quad (\text{III.26})$$

où $H(t)$ est la fonction d'Heaviside, $d = L + 2z_0$ est la largeur effective, L est la largeur réelle du slab et z_0 est la distance d'extrapolation qui vaut : $z_0 = 0.71l_{tr}$. La relation (III.26) est la réponse impulsionnelle (fonction de Green) de l'équation de diffusion pour une géométrie plane. Nous présentons le flux transmis hémisphérique obtenu à partir de la résolution numérique de l'ETR et comparons au flux $T(t)$ obtenu par l'approximation de la diffusion.

Ainsi nous comparons le flux transmis diffus par un slab obtenu par la résolution de l'ETR qui est la solution de référence, par rapport à la solution analytique de l'équation de diffusion (Éq. (III.26)). l'ETR pour une géométrie plane s'écrit :

$$\frac{1}{c} \frac{\partial L(z, \mu, t)}{\partial t} + \mu \frac{\partial L(z, \mu, t)}{\partial z} = -(\kappa + \sigma) L(z, \mu, t) + \frac{\sigma}{2} \int_{-1}^{+1} p(\mu, \mu') L(z, \mu', t) d\mu' \quad (\text{III.27})$$

La méthode de résolution a été décrite au chapitre précédent. Dans les deux cas, nous calculons la réponse impulsionnelle pour la transmission diffuse. Autrement dit, l'impulsion incidente est décrite à la limite comme étant une fonction de Dirac. L'impulsion incidente doit avoir une largeur temporelle qui est négligeable devant tous les temps caractéristiques du système.

Nous présentons la solution analytique de l'équation de la théorie de la diffusion et la résolution numérique de l'ETR, pour des milieux à faible et grande épaisseur optique, ayant une faible ou une forte absorption. Nous montrons sur les figures ci-dessous, la réponse impulsionnelle obtenue par l'ETR et par l'approximation de diffusion en utilisant le coefficient de diffusion obtenu par la théorie asymptotique modale (Éq. (III.21)). Les figures III.8 correspondent à un slab mince d'épaisseur $L = 6\mu m$ et de longueur de transport $l_{tr} = 0.95\mu m$ et les figures III.9 à un slab épais d'épaisseur $L = 15\mu m$ et de longueur de transport $l_{tr} = 0.95\mu m$.

Les cas III.8(a) et III.8(b) correspondent respectivement à un milieu faiblement absorbant ($a = 0.995$) et un milieu fortement absorbant ($a = 0.85$). La fonction de phase utilisée est celle de Henyey-Greenstein dont le paramètre d'anisotropie a été fixé pour tous les cas à $g = 0.4$. La largeur à mi-hauteur de l'impulsion incidente est fixée : $30fs$. Pour les slabs fins (Fig. III.8(a) et III.8(b)), nous voyons clairement que la théorie de la diffusion ne décrit pas correctement le comportement aux temps courts et aux temps longs de l'impulsion transmise. En effet, l'approximation de la diffusion suppose que l'on est en régime diffusif et qui ne s'établit qu'aux grandes échelles de temps et d'espace. Ce résultat est conforme aux résultats expérimentaux [Kop *et al.* (1997)], et contredit l'affirmation de [Yoo *et al.*

(1990)] qui prétendait que la théorie de la diffusion pouvait prévoir le comportement aux temps longs des impulsions transmises sur des slabs fins.

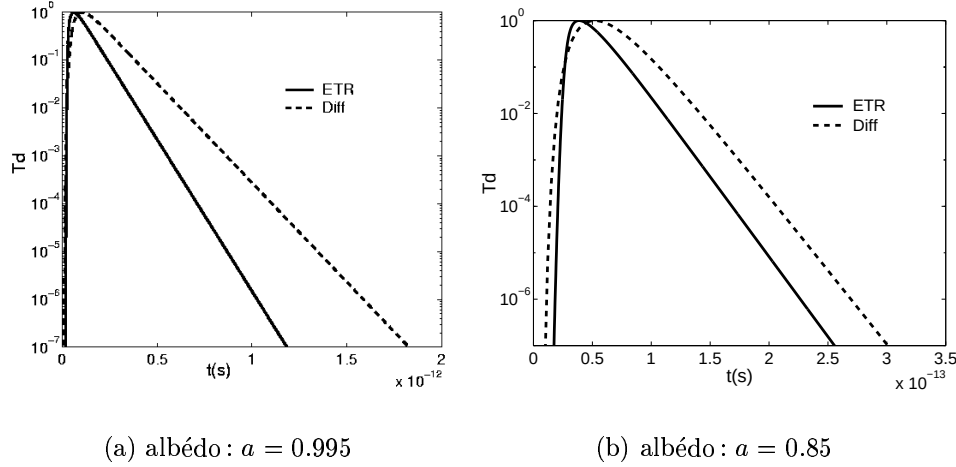


FIG. III.8 – Flux transmis hémisphérique pour un slab d'épaisseur $L = 6\mu\text{m}$, la fonction de phase utilisée est celle de *H.-G* dont le paramètre d'anisotropie vaut $g = 0.4$

Lorsque nous augmentons l'absorption (Fig . III.8(b)), la différence augmente entre les résultats de l'ETR et l'approximation de diffusion, aux temps courts. Il semble tout à fait clair que la théorie de la diffusion sous estime le temps d'arrivée des premiers photons tandis qu'elle sur estime le temps d'arrivée du maximum du flux ainsi que les photons qui sont restés longtemps dans le milieu.

Pour les milieux épais (Fig . III.9(a) et III.9(b)), la situation est essentiellement différente. Bien qu'on observe le même résultat que pour les slabs fins aux temps courts, la théorie de la diffusion prédit correctement le comportement exponentiel aux temps longs du flux transmis par des slabs épais même lorsqu'on rajoute de l'absorption et une diffusion anisotrope. Ce résultat est conforme aux expériences de Kop *et al* [Kop, de Vries, Sprik, et Lagendijk (1997)]. Dans les deux cas, la théorie de la diffusion est valide pour prédire le bon comportement de la transmission diffuse aux temps longs pour des slabs ayant une épaisseur optique suffisamment grande ($L^* > 8$).

III.5.2 Importance du choix du coefficient de diffusion

Nous présentons dans cette section des calculs de transmission d'impulsion à travers un slab effectués dans le cadre de l'approximation de la diffusion en utilisant les différents modèles disponibles. L'ETR (Éq. (III.27)) sera la solution de référence. Comme dans le cas précédent, nous comparons la réponse impulsionnelle du système.

Les figures III.10 et III.11 présentent une comparaison entre les deux méthodes (ETR et équation de diffusion) et ceci pour différentes définitions du coefficient de diffusion. Nous avons représenté le cas où le milieu est absorbant ($a = 0.85$) et la diffusion isotrope

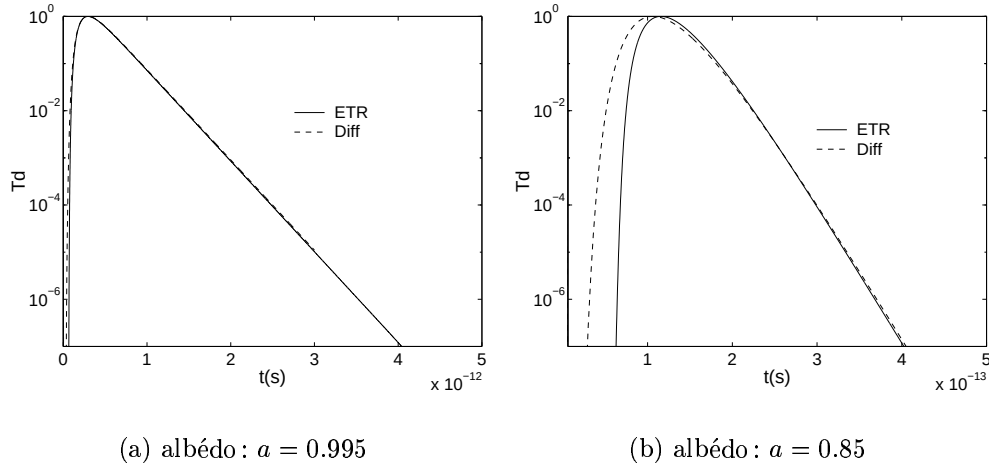


FIG. III.9 – Flux transmis hémisphérique pour un slab d'épaisseur $L = 15\mu\text{m}$, la fonction de phase utilisée est celle de H.-G. dont le paramètre d'anisotropie vaut $g = 0.4$

$g = 0$ et non isotrope $g = 0.5$. L'épaisseur optique du slab est de l'ordre de 15. Cette épaisseur a été choisie de manière à ce que l'approximation de diffusion (régime diffusif) soit valable aux longs temps [Elaloufi, Carminati, et Greffet (2002), Kop, de Vries, Sprik, et Lagendijk (1997)]. Les résultats de l'approximation de diffusion sont calculés en utilisant l'équation (III.26), avec trois expressions différentes du coefficient de diffusion : D_{as} , D_{P1} et D_{st} .

Pour la diffusion isotrope (Fig. III.10a), nous observons qu'aux temps courts, l'approximation de diffusion ne décrit pas le bon comportement et cela pour n'importe quelle définition du coefficient de diffusion. Par contre, l'approximation de diffusion décrit correctement aux temps longs, la décroissance exponentielle du flux transmis si l'on ne prend pas le coefficient D_{P1} . En effet, l'utilisation de D_{st} donne un meilleur résultat que D_{P1} qui est largement utilisé même si D_{st} ne dépend pas de l'absorption.

Pour la diffusion anisotrope (Fig. III.10b), le résultat est complètement différent. Le comportement aux temps courts décrit par l'équation de diffusion est complètement fausse, la position du maximum de l'impulsion transmise n'est pas correctement décrite. La décroissance aux temps longs n'est correctement décrite que si l'on utilise la définition du coefficient de diffusion généralisé D_{as} obtenu par la théorie asymptotique modale.

Ce résultat démontre clairement l'importance du choix d'une définition correcte du coefficient de diffusion notamment dans les milieux absorbants ayant une diffusion anisotrope. Les coefficients D_{P1} , D_{st} donnent également un résultat correct mais seulement dans le cas où l'on a un milieu non absorbant ou un milieu absorbant ayant une diffusion isotrope.

Par contre sur la figure III.11, nous observons clairement que les différents coefficient

de diffusion se valent dans le cas où il n'y a pas d'absorption.

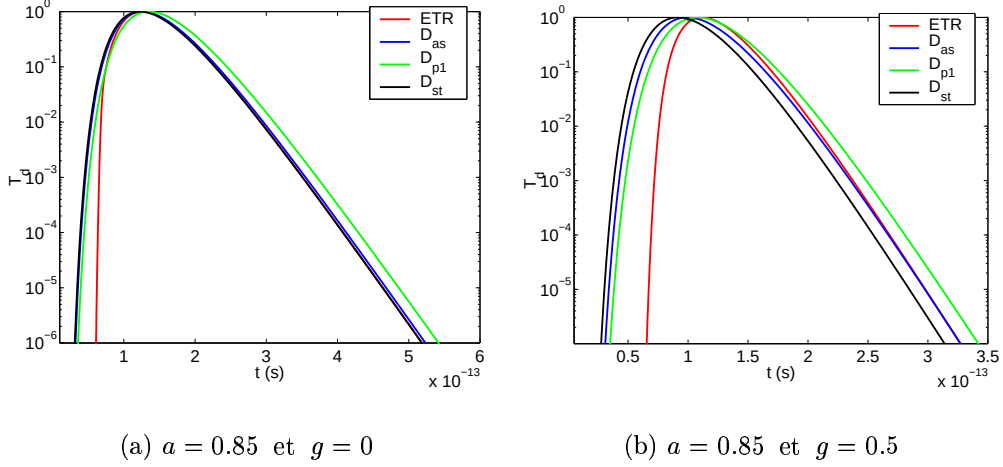


FIG. III.10 – Comparaison entre le flux transmis hémisphérique calculé en résolvant l'ETR et la réponse impulsionnelle de l'équation de diffusion dans un milieu épais ($L^* = 15$) absorbant

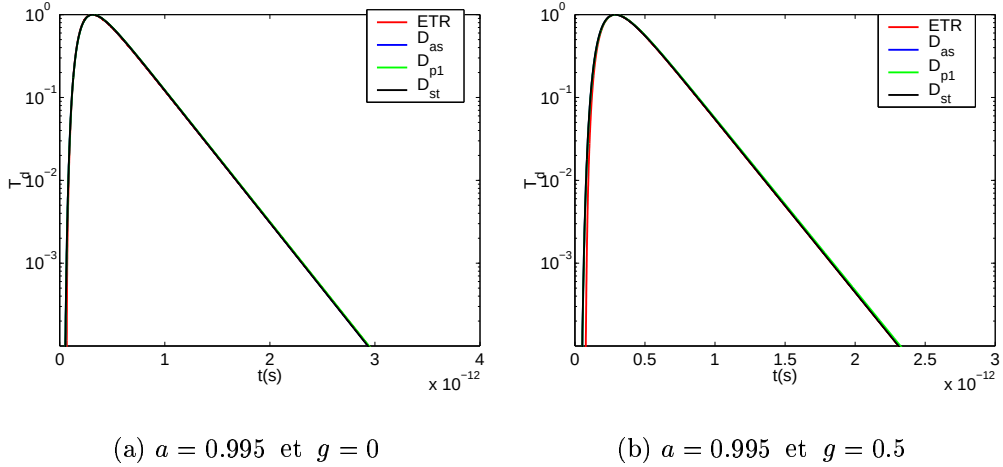


FIG. III.11 – Comparaison entre le flux transmis hémisphérique calculé en résolvant l'ETR et la réponse impulsionnelle de l'équation de diffusion dans un milieu épais $L^* = 15$ non absorbant

III.6 Conclusion

Nous avons présenté au cours de ce chapitre une nouvelle approche pour définir le coefficient de diffusion dans le cadre de l'approximation de la diffusion. Cette approche

est fondée sur une analyse du mode fondamental de l'équation de transfert radiatif. En effet, nous pouvons écrire la luminance comme la superposition des modes propres du système. Chaque mode est pondéré par une constante d'intégration qui sera fixée par les conditions aux limites et une exponentielle dont l'argument fait apparaître la valeur propre associée au mode correspondant. L'inverse de cette valeur propre correspond à la longueur de décroissance du mode associé.

Le mode qui correspond à la plus petite valeur propre en valeur absolue, est celui qui se propage le plus loin par rapport aux autres modes qui eux sont atténués. En se basant sur une analyse modale, on ne considère plus la luminance comme étant quasi isotrope, ce qui est le fondement même de l'approximation P_1 , mais on considère plutôt le développement asymptotique de la luminance. Ce développement ne prend en compte que le mode fondamental lorsque le régime diffusif est atteint.

Cette approche nous a permis de définir une relation entre le flux d'énergie et la densité d'énergie. Cette relation, qui est du même type que la loi de Fick, conduit à définir un coefficient de diffusion. Ce coefficient de diffusion est de la même forme que celui obtenu par l'approximation P_1 avec un facteur correctif qui correspond au moment d'ordre deux du mode fondamental [Elaloufi, Carminati, et Greffet (2003)]. Nous n'avons formulé aucune hypothèse concernant l'absorption ou la diffusion (isotrope ou anisotrope) pour aboutir à ce résultat.

Ce coefficient de diffusion obtenu est valable pour le transport de la lumière dans des milieux diffusants et absorbants. Les résultats nous montrent que le coefficient de diffusion dépend de l'absorption et de la fonction de phase via le moment d'ordre deux du comportement angulaire du mode fondamental. Ceci nous a permis de donner une nouvelle interprétation physique du coefficient de diffusion fondé sur une analyse rigoureuse.

En utilisant la résolution numérique de l'ETR en régime temporel dans une géométrie plane comme solution de référence, nous avons montré que l'utilisation d'une expression correcte du coefficient de diffusion qui apparaît dans la solution de l'équation parabolique obtenue via l'approximation de la diffusion est cruciale dans le transport radiatif en régime temporel.

Nous avons également étudié la transition vers le régime diffusif pour différentes épaisseur d'une couche plane, milieu légèrement ou fortement absorbant, ayant un facteur d'anisotropie faible ou élevé. Nous avons montré que la théorie de la diffusion nous fournissait des résultats éronnés pour la transmission à travers les slabs ayant une faible épaisseur optique ($L^* < 8$) même aux temps longs. Par contre, pour les slabs ayant une grande épaisseur optique, la théorie de la diffusion décrit assez bien le comportement du flux transmis hémisphérique.

Il nous faut maintenant clairement définir la transition entre le régime balistique (peu

d'événements de diffusion) et le régime diffusif pouvant être décrit par la théorie de diffusion. C'est l'objet de notre prochain chapitre.

Chapitre IV

Diffusive to ballistic transition in dynamic light transmission through thin scattering slabs: A radiative transfer approach

Ce chapitre est rédigé sous la forme d'un article, soumis récemment à *Phys. Rev. E*.

Rachid Elaloufi, Rémi Carminati and Jean-Jacques Greffet

Laboratoire d'Energétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion;

Ecole Centrale Paris, Centre National de la Recherche Scientifique,

92295 Châtenay-Malabry Cedex, France.

Table des matières

IV.1	Introduction	73
IV.2	Time-dependent Radiative Transfer Equation	74
IV.3	Decay time and effective diffusion coefficient	76
IV.4	Comparison to experimental results	78
IV.5	Dispersion relation for the RTE	80
IV.6	Conclusion	83

Résumé

Nous étudions la déviation de la théorie de la diffusion à partir du transport dynamique de la lumière à travers les milieux diffusants ayant une faible épaisseur optique. La résolution numérique de l'équation de transfert radiatif instationnaire permet d'obtenir la décroissance temporelle et le coefficient de diffusion effectif du flux transmis en fonction du temps à travers un milieu diffusant. Nous observons un comportement non diffusif pour des systèmes dont l'épaisseur est plus petite que $8l_{tr}$. Nous introduisons un modèle simple qui donne la position de la transition entre les régimes diffusif et non-diffusif. La dépendance de l'épaisseur du milieu pour le coefficient de diffusion est fortement affecté par les réflexions internes pour les régions non diffusifs. Nous montrons que la réduction d'environ 50% du coefficient de diffusion effectif expérimentale [Phys.Rev.Lett.**79**,4369 (1997)] peut être reproduite à partir de l'ETR. Cette étude démontre que l'ETR est un outil approprié pour l'étude du transport dynamique de la lumière à travers des milieux diffusants à faible épaisseur optique, lorsque les effets cohérents ne jouent pas un rôle prépondérant.

We study the deviation from diffusion theory which occurs for the dynamic transport of light in thin scattering slabs. Solving numerically the time-dependent Radiative Transfer Equation, we obtain the decay time and the effective diffusion coefficient D_{eff} for dynamic light transmission through scattering slabs. We observe a non-diffusive behavior for systems whose thickness L is smaller than $8l_{tr}$, where l_{tr} is the transport mean-free path. We introduce a simple model that yields the position of the transition between the diffusive and the non-diffusive regimes. The size dependence of D_{eff} in the non-diffusive region is strongly affected by internal reflections. We show that the reduction of about 50% of D_{eff} which was observed experimentally [Phys. Rev. Lett. **79**,4369 (1997)] can be reproduced by the radiative transfer approach. This study demonstrates that the Radiative Transfer Equation is an appropriate tool to study dynamic light transport in thin scattering systems, when coherent effects play no significant role. © 2003 Optical Society of America

IV.1 Introduction

The study of wave propagation through random media has been an active field of investigation in the past decades (2). Recently, it has attracted considerable interest through the development of mesoscopic physics (1; 3) and imaging techniques in strongly scattering biological tissues (4; 5). Time-resolved techniques using pulse reflection or transmission on short time scales (6), optical coherence tomography (7) and Diffusive Wave Spectroscopy (DWS) (8; 9) give promising results. In several other areas, diffusive waves - such as thermal, acoustic or elastic waves - form the basis of imaging and measurement techniques (10). With the rapid development of micro- and nano-technologies, understanding the propagation of such waves at short (time and length) scales has become a key issue. Another example is heat conduction at short scales in solids, which can be handled on the basis of a Boltzman transport equation for phonons, which undergo scattering, emission and absorption (11; 12). This problem is very similar to that encountered in optical-wave propagation through random media.

The study of dynamic wave transport through scattering and absorbing media is considerably simplified when using the diffusion approximation (2). It is widely used in the context of optical imaging through biological tissues (4; 5). Yet, limitations appear when the size of the system (or the time scale) becomes on the order of the mean-free path (or the collision time). Several experimental results have demonstrated strong deviations from diffusion theory in dynamic light scattering at short length scale, by measuring pulse transmission through thin slabs (13; 14; 15) or in DWS experiments (16; 17). The results in refs.(13; 14) show that the interplay between space and time scales on the validity of diffusion results is a difficult issue. On the one hand, experiments reported in ref.(13) seem to show that diffusion theory gives an accurate prediction for the long-time decay of transmitted pulses for both thin ($L < 10l_{tr}$) and thick systems, whereas it fails for the short-time behavior. On the other hand, experiments reported in ref.(14) show that diffusion theory fails for thin systems ($L < 8l_{tr}$), even for the determination of the long-time behavior.

The domain of validity of the diffusion approximation for time-dependent transport has been studied by comparison with the prediction of the Radiative Transfer Equation (18; 19; 20), or by using the telegrapher's equation (21). In particular, the results in ref.(20) have confirmed that the diffusion approximation is able to predict the long-time behavior of transmitted pulses through systems with size $L > 8l_{tr}$, where l_{tr} is the transport mean-free path, in agreement with experimental results (14). More recently, the transition from ballistic to diffusive transport was analyzed by solving the Bethe-Salpeter equation for a slab, in the lowest-order ladder approximation with isotropic scattering (22). A region of strong deviation from the diffusion approximation was found for $3l_{tr} < L < L_c$ where L_c is a critical length which depends on the amount of internal reflection at the slab boundaries. The region of non-diffusive transport agrees with experimental results (14). Nevertheless, as far as the transition from the ballistic to the diffusive regime is concerned, an overlook at the literature leads to the following remarks. (1) The transport model used in ref.(22) predicts an increase of the effective diffusion coefficient of the slab when

the thickness L decreases in the non-diffusive region (sometimes referred to as the “anomalous” region). This is the opposite of the behavior observed experimentally (14; 23), and no convincing argument has been proposed to explain this contradiction. (2) The samples used in practice are usually absorbing and anisotropically scattering. A transport theory able to account for arbitrary scattering and absorbing properties, and for rigorous boundary conditions at the slab boundaries is necessary. The Radiative Transfer Equation seems to be the adequate tool in this context. (3) Last but not least, a simple model explaining (at least qualitatively) the onset of the non-diffusive behavior at small length scales is still missing.

In this paper, we present a theoretical and numerical study of the transition from the ballistic to the diffusive regime in light transport through scattering media. Our approach is based on the Radiative Transfer Equation (RTE) (24; 25). By a numerical study of pulse transmission through scattering slabs, we study the size dependence of the decay time and the effective diffusion coefficient. Our approach allows to handle arbitrary scattering properties of the particles as well as absorption. Internal reflections at the slab boundaries are treated rigorously by means of reflection and transmission factors, for both the ballistic and the diffuse part of the light intensity. The results confirm the sensitivity of the effective diffusion coefficient D_{eff} to the level of internal reflection. They also show under which condition a reduction of D_{eff} at small scale is observed, and the experimental result in ref.(14) are retrieved quantitatively. Finally, a simple analysis based on the dispersion relation of the RTE (25) is used to describe the transition from the diffusive to the non-diffusive regime. This crude model allows to retrieve the critical size at which the transition occur.

The paper is organized as follows. In section 2, we briefly describe the numerical method used to solve the RTE in a slab geometry. In section 3, we present numerical calculations of the decay time and effective diffusion coefficient for systems of various sizes and mean (effective) indices of refraction. In section 4, we discuss the reduction of the effective diffusion coefficient in connection with experimental results. In section 5, we present the analytical model and use it to discuss the deviation from diffusion theory for small systems. In section 6, we summarize the main results and give our conclusions.

IV.2 Time-dependent Radiative Transfer Equation

We consider a slab of width L with the z -axis normal to the boundaries (the strip $0 < z < L$ is filled with the scattering medium). The slab is illuminated from the left at normal incidence by a plane-wave pulse. The specific intensity $I(z, \mu, t)$ inside the scattering medium obeys the RTE (24; 25):

$$\frac{1}{v} \frac{\partial I(z, \mu, t)}{\partial t} + \mu \frac{\partial I(z, \mu, t)}{\partial z} = -(\mu_s + \mu_a) I(z, \mu, t) + \frac{\mu_s}{2} \int_{-1}^{+1} p^{(0)}(\mu, \mu') I(z, \mu', t) d\mu' \quad (\text{IV.1})$$

where v is the energy velocity and $\mu = \cos \theta$, with θ the angle between the propagation direction and the z -axis. $p^{(0)}$ is the phase function integrated over the azimuthal angle

$p^{(0)}(\mu, \mu') = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} p(\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}') d\phi$ where $\mathbf{u}$ and $\mathbf{u}'$ are unit vectors corresponding to directions (θ, ϕ) and (θ', ϕ') . μ_s and μ_a are the scattering and absorption coefficients, respectively. The associated scattering and absorption mean-free paths are $l_a = \mu_a^{-1}$ and $l_s = \mu_s^{-1}$. The transport mean-free path $l_{tr} = l_s/(1 - g)$, where g is the anisotropy factor (average cosine of the scattering angle). The real part of the medium effective index, accounting both for the homogeneous background medium and the scattering particles, is denoted by n_2 . The half-spaces $z < 0$ and $z > L$ are filled with homogeneous and transparent materials of refractive indices n_1 and n_3 , respectively. In order to solve Eq. (IV.1), we use the space-frequency method described in ref.(20). We briefly recall its principle here.

A time-domain Fourier transform of Eq. (IV.1) leads to:

$$\mu \frac{\partial I(z, \mu, \omega)}{\partial z} = -(\mu_s + \mu_a - i\frac{\omega}{v}) I(z, \mu, \omega) + \frac{\mu_s}{2} \int_{-1}^{+1} p^{(0)}(\mu, \mu') I(z, \mu', \omega) d\mu', \quad (\text{IV.2})$$

where $I(z, \mu, \omega)$ is the time-domain Fourier transform of $I(z, \mu, t)$. This equation is similar to the static RTE, with an effective extinction coefficient $\alpha(\omega) = (\mu_s + \mu_a - i\omega/v)$. It can be solved numerically by standard methods developed for time-independent problems (26). Assuming an illumination by a plane wave (representing, for example, a collimated laser beam), it is useful to separate the ballistic and the diffuse components of the specific intensity inside the medium. One writes:

$$I(z, \mu, \omega) = I_b^+(z, \omega)\delta(\mu - 1) + I_b^-(z, \omega)\delta(\mu + 1) + I_d(z, \mu, \omega) \quad (\text{IV.3})$$

where $\delta(x)$ is the Dirac distribution. For the sake of clarity, the two components of the ballistic intensity, propagating towards $z > 0$ and $z < 0$, have been separated. Inserting Eq. (IV.3) into Eq. (IV.2) leads to

$$\frac{dI_b^\pm(z, \omega)}{dz} = -\alpha(\omega) I_b^\pm(z, \omega) \quad (\text{IV.4})$$

for the ballistic components and to

$$\mu \frac{\partial I_d(z, \mu, \omega)}{\partial z} = -\alpha(\omega) I_d(z, \mu, \omega) + \frac{\mu_s}{2} \int_{-1}^{+1} p^{(0)}(\mu, \mu') I_d(z, \mu', \omega) d\mu' + S(z, \mu, \omega) \quad (\text{IV.5})$$

for the diffuse component. In this last equation, $S(z, \mu, \omega)$ is a source term which describes the transfer of energy from the ballistic to the diffuse component by scattering. Its expression will be given below.

The RTE deals with the specific intensity which is a directional quantity. Therefore, the boundary conditions at the slab interfaces can be accounted for exactly, by using Fresnel reflection and transmission factors. Taking into account the internal reflections, the expressions of the ballistic components inside the slab are:

$$I_b^+(z, \omega) = T_{12}(\mu = 1) I_0(\omega) \exp[-\alpha(\omega)z]\Gamma \quad (\text{IV.6})$$

$$I_b^-(z, \omega) = T_{12}(\mu = 1) I_0(\omega) \exp[-\alpha(\omega)(2L - z)] R_{23}(\mu = 1) \Gamma \quad (\text{IV.7})$$

where $\Gamma = [1 - R_{12}(\mu = 1)R_{23}(\mu = 1)\exp(-2\alpha(\omega)L)]^{-1}$, and $R_{ij}(\mu)$ and $T_{ij}(\mu)$ are the Fresnel reflection and transmission factors in energy, at the interface between two media of refractive indices n_i and n_j . Their expression is given, for example, in ref.(20). $I_0(\omega)$ is the time-domain Fourier transform of the incident pulse, at the boundary $z = 0$.

The source term in equation (IV.5) is given by:

$$S(z, \mu, \omega) = \frac{\mu_s}{2} p^{(0)}(\mu, 1) I_b^+(z, \omega) + \frac{\mu_s}{2} p^{(0)}(\mu, -1) I_b^-(z, \omega) . \quad (\text{IV.8})$$

For the diffuse components of the specific intensity, the boundary conditions at the slab surfaces are:

$$I_d(z = 0, \mu, \omega) = R_{21}(\mu) I_d(z = 0, -\mu, \omega) \text{ for } \mu > 0 \quad (\text{IV.9})$$

$$I_d(z = L, \mu, \omega) = R_{23}(|\mu|) I_d(z = L, -\mu, \omega) \text{ for } \mu < 0 . \quad (\text{IV.10})$$

Solving Eq. (IV.5) with the above source term and boundary conditions allows a computation of the diffuse transmitted intensity. The ballistic components (in transmission and reflection) are directly obtained by Eqs. (IV.6) and (IV.7). The total transmitted intensity (ballistic + diffuse), either directional or angle-integrated (20), is the relevant quantity for the present study.

IV.3 Decay time and effective diffusion coefficient

In this section, we analyse the decay time of pulses transmitted through scattering slabs on the basis of numerical solutions of the time-dependent RTE. In all cases, the incident pulse width is $50fs$, which is negligible compared to all time scales of the problem. The total transmitted intensity $T(t)$, angle-integrated over the half-space $z > L$, is calculated numerically. From the long-time exponential behavior $\exp(-t/\tau)$ of $T(t)$, the decay time τ is extracted. We show in Fig. 1 the inverse decay time τ^{-1} versus the slab thickness L , for different values of the effective index n_2 of the slab. The exterior medium is assumed to be a vacuum ($n_1 = n_3 = 1$). In Fig. 1(a) (isotropic scattering), a size-dependence of τ^{-1} versus L is visible, which strongly depends on the slab refraction index n_2 . Moreover, the dependence on n_2 is higher for small L . This can be understood using a simple picture. A photon propagating through the slab will undergo both bulk scattering and wall reflections. The latter is very sensitive to the number of internal reflections, which increases with the refraction index n_2 . For thin slabs, wall reflections may dominate over bulk scattering, so that the influence of internal reflections on the decay time becomes predominant. This qualitatively explains the strong influence of the refraction index observed for small L . We shall come back to that point with more refined arguments below. The same results hold for anisotropic scattering in Fig.1 (b). In particular, the behavior for small systems is weakly affected by scattering anisotropy. This is consistent with the fact that the relevant mechanism in this case is surface reflection, more than bulk scattering.

In order to characterize more precisely the size dependence of the decay time, an effective diffusion coefficient D_{eff} can be introduced (14; 22). To proceed, we identify the

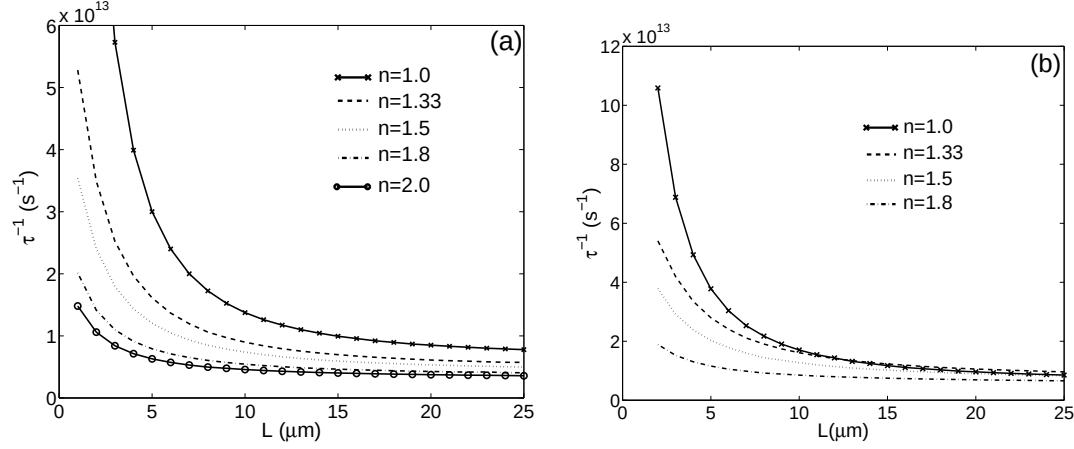


FIG. IV.1 – Decay time versus the slab thickness L , for different values of the medium effective refractive index n_2 ($n_1 = n_3 = 1$ for the half-spaces $z < 0$ and $z > L$). The medium parameters are: $l_s = 0.95\mu\text{m}$, $l_a = 46.5\mu\text{m}$ (albedo $\omega_0 = 0.98$). (a): $g = 0$. (b): $g = 0.4$. Phase function: Henyey-Greenstein.

long-time exponential behavior of the transmitted pulse $\exp(-t/\tau)$ with that obtained in the diffusion approximation $\exp(-\pi^2 D_{\text{eff}} t/L^2) \exp(-\mu_a vt)$ (see e.g. ref.(20)). This yields an effective diffusion coefficient

$$D_{\text{eff}} = \frac{L^2}{\pi^2} \left(\frac{1}{\tau} - \mu_a v \right). \quad (\text{IV.11})$$

Note that we have chosen to define D_{eff} using the real length L of the slab, instead of an effective length L_{eff} accounting for the boundary conditions used in diffusion theory, as in refs. (14; 22). Several reasons justify that choice. (1) The effective length L_{eff} is defined from approximate boundary conditions valid asymptotically for a semi-infinite medium (27). The relevance of such boundary conditions for a thin slab are questionable. (2) For thick systems ($L/l_{tr} \rightarrow \infty$), one always has $L \simeq L_{\text{eff}}$ so that our definition of D_{eff} coincides with that used in refs. (14; 22). (3) Finally, let us emphasize that the final purpose is to study the size dependence which appear in the decay time τ due to a non-diffusive behavior which appear for small systems. Therefore, one needs to introduce a quantity which (i) suppresses the direct dependence of τ^{-1} on absorption (through the exponential decay $\exp(-\mu_a vt)$) and (ii) suppresses the diffusion-type dependence proportional to L^{-2} which remains for infinitely large systems. This is precisely what one obtains by defining the effective diffusion coefficient as in Eq. (IV.11).

In Fig. 2(a), we plot D_{eff}/L^2 versus L . This quantity is similar to the inverse decay time τ^{-1} , but the influence of absorption has been substracted. It exhibits a similar behavior as the decay time in Fig. 1(a), except for thick systems ($L \gg l_{tr}$) where all curves tend to an asymptotic value which is independent on the refractive index of the scattering medium (i.e. on the level of internal reflection). For small systems ($L < 8\mu\text{m}$, which corresponds $7 - 8l_{tr}$), the strong dependence on the refractive index confirms the dominant role of internal reflections on the size dependence of the time decay τ . The

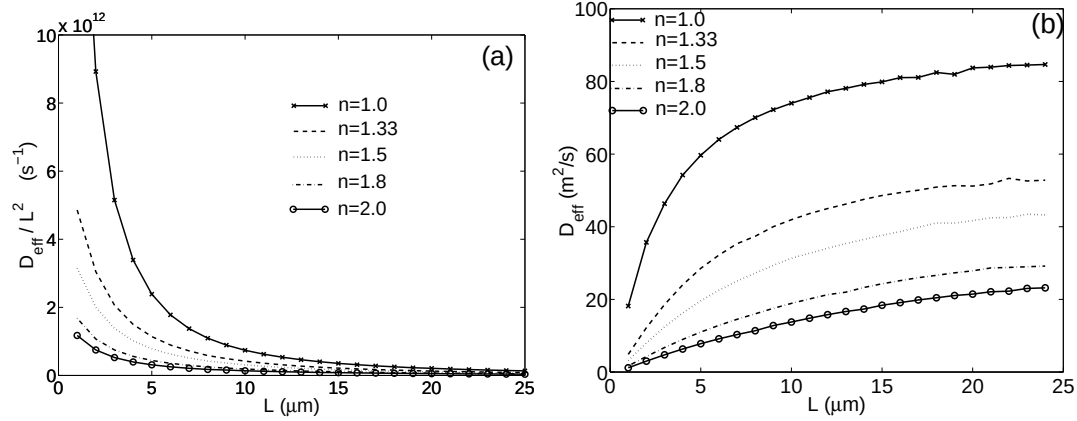


FIG. IV.2 – Effective diffusion coefficient D_{eff} versus the slab thickness L . The medium parameters are the same as in Fig. 1(a), with $g = 0$. (a): D_{eff}/L^2 versus L . This quantity becomes independent on L for large $L \gg l_{\text{tr}}$. (b): D_{eff} versus L .

variations of D_{eff} versus L are represented in Fig. 2(b). On the curve corresponding to $n_2 = 1$, two regimes can be identified. For $L < 7 - 8l_{\text{tr}}$, a strong dependence with L is visible, and D_{eff} increases with L . For $L > 7 - 8l_{\text{tr}}$, D_{eff} tends asymptotically to a constant value, which is expected to be the bulk value of the diffusion coefficient. If the effect of absorption on the diffusion coefficient is neglected (28; 29), the bulk value in this case is $D = vl_{\text{tr}}/3 = 95 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. For higher values of the refractive index n_2 , the general shape of the curves remain the same, but the transition is smoother and the value of D_{eff} is reduced for all values of L . Also note that the effective diffusion coefficient defined in Eq. (IV.11) always increases with L in the region of strong size dependence ($L < 7 - 8l_{\text{tr}}$). This was expected because internal reflections yield an increase of the decay time τ , and a decrease of D_{eff} (see Eq. IV.11).

The results in this section put forward the ability of the RTE to describe the transition from the diffusive regime to a non-diffusive (“anomalous”) regime of transport when the size of the systems becomes on the order of a few transport mean-free paths. In the next section, we show that experimental results can be reproduced by this approach.

IV.4 Comparison to experimental results

The size dependence of the effective diffusion coefficient of a slab was demonstrated experimentally in ref.(14). In this study, the authors chose to define the diffusion coefficient by comparing the long-time exponential decay of the diffuse transmission of short pulses to the solution of the diffusion equation, accounting for extrapolated boundary conditions. For an absorbing medium, this leads to a diffusion coefficient D given by

$$D = \frac{L_{\text{eff}}^2}{\pi^2} \left(\frac{1}{\tau} - \mu_a v \right). \quad (\text{IV.12})$$

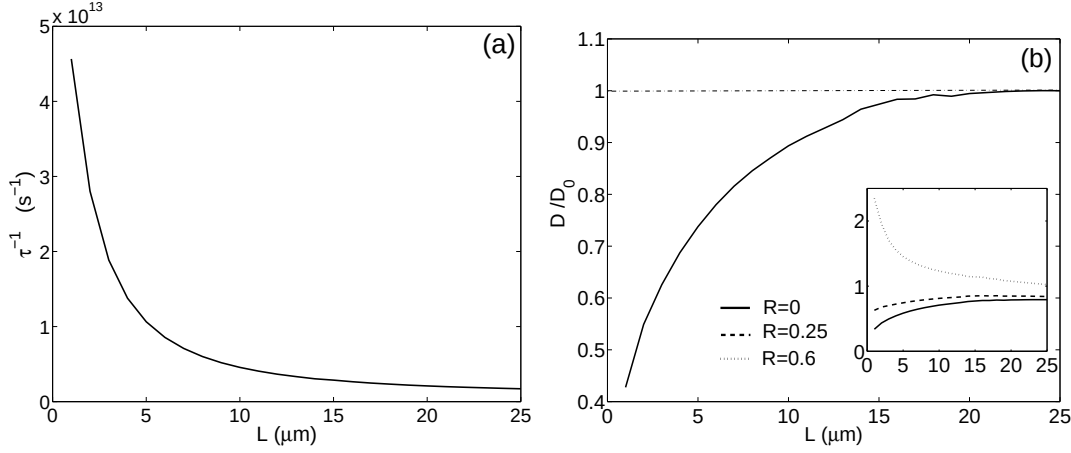


FIG. IV.3 – Decay time and diffusion coefficient for a slab with parameters similar to those in ref.(14). The slab contains TiO_2 particles illuminated at $\lambda = 780nm$. $g = 0.27$, $l_s = 0.65\mu m$ and $l_a = 200\mu m$ (albedo $\omega_0 = 0.997$). The effective index of the slab is $n = 1.39$. (a): τ^{-1} versus L . (b): Diffusion coefficient D as defined in ref.(14), normalized by its asymptotic value D_0 . Solid line: $\bar{R} = 0$. The inset shows the results obtained for different values $\bar{R}$. Phase function: Mie scattering.

The effective length of the slab which appears in Eq. (IV.12) is $L_{eff} = L + 2z$, where $z = z_0(1 + \bar{R})/(1 - \bar{R})$, $z_0 = 0.71l_{tr}$ being the extrapolation distance and $\bar{R}$ the mean reflection coefficient in the diffusion approximation (30).

For the numerical calculations of the pulse transmission, we have chosen a configuration which is very close to the experimental one (14). The only difference is that we do not consider a non-symmetric system (both half-spaces $z < 0$ and $z > L$ are filled with air, or a vacuum, so that $n_1 = n_3 = 1$). The scattering medium consists of TiO_2 particles of radius $r = 95nm$, with $g = 0.27$, $l_s = 0.65\mu m$, $l_a = 200\mu m$ (weak absorption, albedo $\omega_0 = 0.997$). The central wavelength of the illuminating pulse is $\lambda = 780nm$. The effective index of the scattering medium is $n_2 = 1.39$.

We show in Fig. 3(a) the inverse decay time τ^{-1} versus the (real) system size L . The shape of the curve is similar to that observed in Fig. 1(a), namely, a strong size dependence is observed for small systems. This regime appears for $L < 8l_{tr}$. The value of the transition ($L \simeq 8l_{tr}$) coincides with that observed experimentally (14). In Fig. 3(b), we represent the diffusion coefficient D , normalized by its asymptotic value for large L (taken here at $L = 25\mu m \simeq 27l_{tr}$). This figure should be compared to Fig. 3 in ref.(14). We see that the reduction of D at small scale, of about 50%, is reproduced by the calculation, when using Eq. (IV.12) to define D from the decay time τ , with an effective length $L_{eff} = L + 2z_0$ (i.e. with $\bar{R} = 0$). This is surprising because the result in ref.(14) is obtained with the value of $\bar{R}$ calculated from diffusion theory (30), which would be $\bar{R} = 0.49$ with our parameters. Nevertheless, as we already pointed out, the relevance of both the extrapolation distance z_0 and the diffusion-theory reflection factor $\bar{R}$ for thin slabs is far from obvious. Moreover, as shown in the inset in Fig. 3(b), changing the value of $\bar{R}$ [i.e. of L_{eff} in Eq. (IV.12)]

completely changes the shape of the curve. Although the existence of two regimes and the value of the critical distance ($L \simeq 8l_{tr}$) are not affected, one passes from an increase to a decrease of D in the non-diffusive region by changing $\bar{R}$. This extreme sensitivity to $\bar{R}$ prevents the diffusion coefficient D defined from the effective length $L_{\text{eff}}(\bar{R})$ from being a robust parameter. From the theoretical point of view, it relies on boundary conditions for diffusion theory which are not well controlled. From the practical point of view, it depends on the precision with which the effective index n_2 of the medium is known. Evaluating n_2 with precision for dense scattering media as that considered here remains a challenging issue.

In summary, the results in this section lead to the following important conclusions. (1) The RTE, which appropriately handles the intensity transport outside the diffusive regime as well as the boundary conditions at the slab surfaces, allows to describe the experimental result presented in ref.(14). (2) There is a high sensitivity of the diffusion coefficient D defined in Eq. (IV.12) to the effective length L_{eff} . Obtaining a D which increases or decreases with the system size L depends on the value of L_{eff} which is used (and no exact determination of L_{eff} can be done). This is in agreement with the fact that the variation of D with the system size in the non-diffusive region are strongly related to internal reflections. (3) The transition between the diffusive regime (D independent on L) and the non-diffusive regime is well described by the RTE. In particular, this means that the size dependence of D for small systems is not due to coherent effects, or to dependent scattering, which are not accounted for in the present RTE approach.

IV.5 Dispersion relation for the RTE

In this section, we introduce a simple model to discuss the transition between the diffusive and non-diffusive regime. We borrow analytical solutions of the RTE from neutron transport theory (25). In particular, for isotropic scattering, an analysis in terms of modes allows to calculate analytically the dispersion relation for the time-dependent RTE in an infinite medium. To proceed, we look for solutions of the form $I(z, \mu, t) = g(\mu) \exp(ikz) \exp(st)$, with k real and s complex. Because our interest is in the long-time decay of the intensity, we need to compute the s whose (negative) real part has the smallest absolute value. The associated decay time is given by $\tau = -s^{-1}$. The analysis in ref.(25) shows that:

$$s = -(\mu_a + \mu_s)v + \frac{k v}{\tan(k/\mu_s)} \quad \text{for } |k| < \pi\mu_s/2 \quad (\text{IV.13})$$

where $\omega_0 = \mu_s/(\mu_s + \mu_a)$ is the albedo for single scattering. For $|k| > \pi\mu_s/2$, there is a continuum of solutions s for each value of k . We only need the solution s having the smallest real part, which can be calculated numerically. The numerical calculation consists in solving an eigenvalue problem, which follows from the RTE when one uses the discrete ordinate approach (20; 26). In particular, this can be done with any type of phase function, allowing to obtain the results for anisotropic scattering.

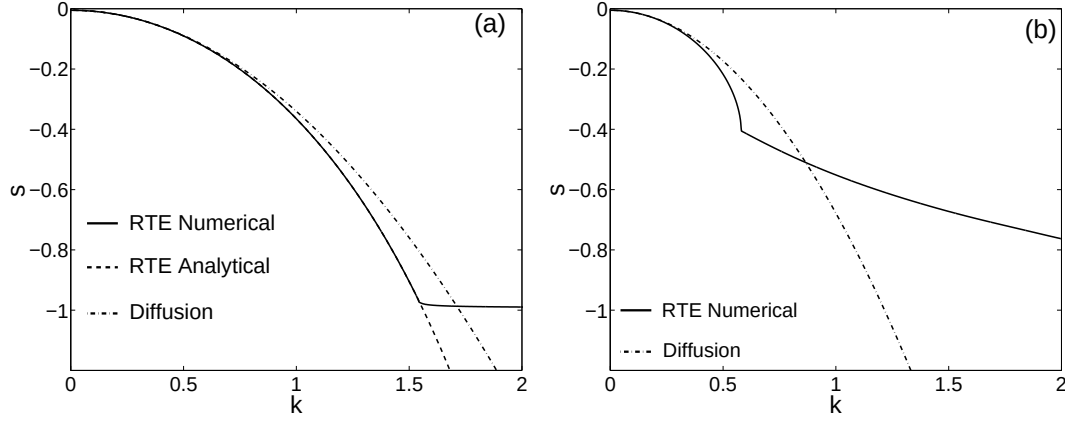


FIG. IV.4 – Dispersion relations $[Re(s) \text{ versus } k]$ in an infinite medium, for the solutions of the RTE and of the diffusion equation. s and k are in dimensionless units, the reference length scale being $L^* = (\mu_s + \mu_a)^{-1}$ and the reference time scale being $t^* = L^*/v$. The medium parameters are: $l_{tr} = 0.95\mu m$, $\omega_0 = 0.995$ (albedo). (a): s^* versus k^* for $g = 0$. The numerical solution obtained from the RTE is compared to an analytical result valid for isotropic scattering and $k < \pi\omega_0/2$, and to the solution obtained from the diffusion approximation. (b): s^* versus k^* for $g = 0.5$. No analytical solution can be found in this case. Phase function: Henyey-Greenstein.

The same analysis can be done for the diffusion equation (2):

$$\frac{\partial u(\mathbf{r}, t)}{\partial t} - D\nabla^2 u(\mathbf{r}, t) + \mu_a v u(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (\text{IV.14})$$

where $u(\mathbf{r}, t)$ is the energy density. Looking for solutions of the form $u(\mathbf{r}, t) = u_0 \exp(ikz) \exp(st)$, one obtains the dispersion relation for the diffusion equation:

$$s = -\mu_a v - k^2 D. \quad (\text{IV.15})$$

The dispersion relations of both the RTE [Eq. (IV.13)] and the diffusion equation [Eq. (IV.15)] are shown in Fig. 4. For isotropic scattering [Fig. 4(a)], we have represented the dispersion relation of the RTE calculated numerically and using the analytical formula, as well as the dispersion relation in the diffusion approximation. We see that both curves for the RTE are superimposed for $k < \pi\mu_s/2$. For larger values of k , the analytical result is no longer valid. The solution s with the smallest real part is computed numerically. We see an abrupt transition in the dependence of s on k .

The dispersion relations for the RTE and the diffusion equation coincides for small values of k ($k < 0.7\mu_s$ if we neglect absorption). For larger values of k , the difference increases and becomes significant. The spatial dependence of the modes being $\exp(ikz)$, large values of k corresponds to small systems. Qualitatively, this result shows that *the diffusion approximation is able to predict the long-time behavior of the intensity only for large systems*. More quantitatively, the transition at $k \simeq 0.7\mu_s$ corresponds to a system size

$L \simeq 2\pi/k \simeq 8l_s$, which is also $L \simeq 8l_{tr}$ for isotropic scattering. This is in agreement with the transition observed experimentally and numerically (14; 22). For anisotropic scattering [Fig. 4(b)], the same observations hold (note that the dispersion relation of the RTE can only be calculated numerically in this case). We still observe the abrupt transition between the domain where a single solution s is obtained for each k (for $k^* < 0.55$ in dimensionless units) and the domain of the continuum of solutions (for which only that corresponding to the smallest value or $\text{Re}(s)$ is represented). After the transition, s decays more slowly with k . If we compare the curves obtained for the RTE and for the diffusion equation, we see that they coincide for $k < 0.4\mu_s$. A substantial difference is observed for $k > 0.5\mu_s$, a region for which the diffusion approximation fails to describe intensity transport. The transition occurs in this case for system sizes on the order of $L = 2\pi/k \simeq 15l_s$, which, in terms of transport mean-free path gives $L \simeq 8l_{tr}$. Once again, this result is in remarkable agreement with that observed in refs.(14; 22).

The arguments based on the dispersion relation of the modes of an infinite system do not account for the boundary conditions at the system boundaries. Nevertheless, they allow to describe the position of the transition between the diffusive and the non-diffusive regimes. Therefore, it can be concluded from this analysis that the transition should always appear when the size of the system is reduced, whatever the boundary conditions (and the level of internal reflection). In the absence of absorption, the transition takes place for system sizes on the order of $8l_{tr}$.

The way the decay time, or the effective diffusion coefficient, depends on the system size L in the non-diffusive region strongly depends on the boundary conditions. This has been shown in section 2, as well as in the study in ref.(22). Although these effects are not accounted for in the analysis based on the dispersion relation, it is interesting to see which dependence on L is predicted in this approach. To proceed, we start from Eq. (IV.13), recalling that the decay time $\tau = -s^{-1}$. We now assume that the predominant mode for a slab of size L corresponds to $k = \pi/L$. Replacing k by this value in Eq. (IV.13) leads to :

$$\tau = [(\mu_a + \mu_s)v - \frac{k v}{\tan(k/\mu_s)}]^{-1} \quad (\text{IV.16})$$

From this expression of the decay time, an effective diffusion coefficient can be introduced using Eq. (IV.11). One obtains :

$$D_{\text{eff}} = \frac{L^2}{\pi^2} \mu_s v - \frac{L v}{\pi \tan(\pi/\mu_s L)} \quad (\text{IV.17})$$

Note that for large systems ($\mu_s L \rightarrow \infty$), one has $\tan(\pi/\mu_s L) \simeq (\pi/\mu_s L) + (\pi/\mu_s L)^3/3$, so that $D_{\text{eff}} \simeq v/(3\mu_s)$. One recovers the well-known result for the bulk diffusion coefficient in a non-absorbing medium (2).

We plot in Fig. 5(a) the variations of τ versus the system size L , as predicted in Eq. (IV.16). We see that the result is in good qualitative agreement with the curves obtained in Fig. 1(a), especially with that corresponding to $n_2 = 1$ (no internal reflections). In Fig. 5(b), we plot the effective diffusion coefficient given in Eq. (IV.17). We see that

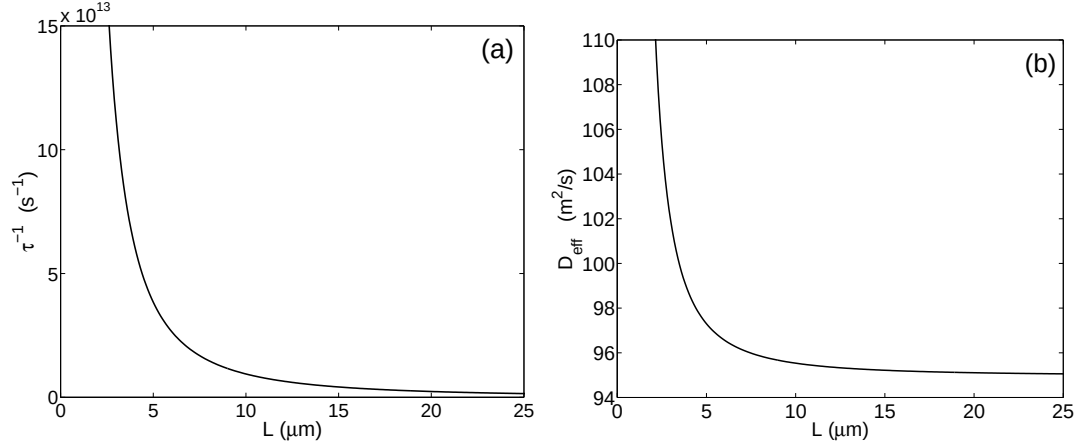


FIG. IV.5 – (a): Decay time versus the slab thickness L , obtained from the analytical model Eq. (IV.16). (b): Effective diffusion coefficient the slab thickness L , obtained from the analytical model Eq. (IV.17). The medium parameters are: $l_{tr} = 0.95\mu\text{m}$, $\omega_0 = 0.995$.

the transition between the diffusive regime (D_{eff} independent on L) and the non-diffusive regime is very well reproduced, the transition occurring at $L \simeq 8l_{tr}$. This confirms that the origin of the transition lies in the deviation from diffusion theory which is well-described by the mode analysis and the dispersion relation (and not on the boundary conditions). Concerning the variation of D_{eff} in the non-diffusive region, the increase that is observed when L decreases disagrees with the result of the full numerical calculations presented in Fig. 2(b), which always shows a decrease of D_{eff} in the non-diffusive region. This result confirms the important role of the boundary conditions at the slab surfaces on the variation of the effective diffusion coefficient in the non-diffusive region.

IV.6 Conclusion

We have presented a numerical and theoretical study of the transition from the diffusive to the non-diffusive (quasi-ballistic) regime in dynamic light transmission through thin scattering slabs. The analysis is based on the time-dependent RTE. A key feature of this approach is the possibility of writing exactly the boundary conditions at the system surfaces. Also, it allows to handle any scattering and absorbing properties of the medium. Using numerical calculations of transmitted pulses through slabs of varying thickness L , several results have been obtained. (1) We have shown that the decay time and effective diffusion coefficient display a transition between a diffusive and a non-diffusive regime, which occurs for $L \simeq 8l_{tr}$. In the non-diffusive region ($L < 8l_{tr}$), the effective diffusion coefficient exhibits a strong dependence on L . With this approach, we have reproduced quantitatively an experimental result, showing a reduction of about 50% of the effective diffusion coefficient in the non-diffusive region (14). This result demonstrates the relevance of the RTE for studying dynamic light transport through thin scattering systems, when coherent effects play no significant role. (2) The deviation from diffusion theory

for thin systems that we observe also supports the claims of ref.(14) that the diffusion approximation is able to describe the long-time behavior of transmitted pulses for thick systems *only* ($L > 8l_{tr}$). (3) The dependence of the effective diffusion coefficient on the slab thickness in the non-diffusive regime is strongly affected by the amount of internal reflection inside the slab. This conclusion is in agreement with a recent theoretical study reported in ref.(22). (4) Finally, we have presented a simple model based on the dispersion relation of the RTE and of the diffusion equation. This crude model gives an estimate of the critical size $L \simeq 8l_{tr}$ below which the transport is non-diffusive.

Références

- [1] P. Sheng, *Introduction to Wave Scattering, Localization and Mesoscopic Phenomena* (Academic Press, New York, 1995).
- [2] A. Ishimaru, *Wave Propagation and Scattering in Random Media* (IEEE Press, Piscataway, 1997).
- [3] P. Sebbah, ed., *Waves and Imaging through Complex Media* (Kluwer Academic, Dordrecht, 2001).
- [4] A. Yodh and B. Chance, *Phys. Today* **48**, 34 (1995).
- [5] S.K. Gayen and R.R. Alfano, *Opt. Photonics News* **7**, 17 (1996).
- [6] L. Wang, P.P. Ho, C. Liu, G. Zhang and R.R. Alfano, *Science* **253**, 769 (1991).
- [7] M.R. Hee, J.A. Izatt, J.M. Jacobson, J.G. Fujimoto and E.A. Swanson, *Opt. Lett.* **18**, 950 (1993).
- [8] G. Maret and P.E. Wolf, *Z. Phys. B* **65**, 409 (1987).
- [9] D.J. Pine, D.A. Weitz, P.M. Chaikin and E. Herbolzheimer, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1134 (1988).
- [10] A. Mandelis, *Phys. Today* **53**, 29 (2000).
- [11] A. Majumdar, *J. Heat Transfer* **115**, 7 (1993).
- [12] G. Chen, *J. Heat Transfer* **121**, 945 (1999).
- [13] K.M. Yoo, F. Liu and R.R. Alfano, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2647 (1990).
- [14] R.H.J. Kop, P. de Vries, R. Sprik and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4369 (1997).
- [15] Z.Q. Zhang, I.P. Jones, H.P. Schriemer, J.H. Page, D.A. Weitz and P. Sheng, *Phys. Rev. E* **60**, 4843 (1999).
- [16] I. Freund, M. Kaveh and M. Rosenbluh, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1130 (1988).
- [17] K.K. Bizheva, A.M. Siegel and D.A. Boas, *Phys. Rev. E* **58**, 7664 (1998).
- [18] A.D. Kim and A. Ishimaru, *Appl. Opt.* **37**, 5313 (1998).
- [19] K. Mitra and S. Kumar, *Appl. Opt.* **38**, 188 (1999).
- [20] R. Elaloufi, R. Carminati and J.-J. Greffet, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **4**, S103 (2002).
- [21] D.J. Durian and J. Rudnick, *J. Opt. Soc. Am. A* **14**, 235 (1997).

- [22] X. Zhang and Z.Q. Zhang, Phys. Rev. E **66**, 016612 (2002).
- [23] J. Gomez Rivas, R. Sprik, A. Lagendijk, L.D. Noordam and C.W. Rella, Phys. Rev. E **63**, 046613 (2001).
- [24] S. Chandrasekhar, *Radiative Transfer* (Dover, New York, 1960).
- [25] K.M. Case and P.F. Zweifel, *Linear Transport Theory* (Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, 1967).
- [26] G.E. Thomas and K. Stamnes, *Radiative Transfer in the Atmosphere and Ocean* (Cambridge University Press, Cambridge, 1999), Chap. 8.
- [27] R. Aronson, J. Opt. Soc. Am. A **12**, 2532 (1995).
- [28] R. Aronson and N. Corngold, J. Opt. Soc. Am. A **16**, 1066 (1999).
- [29] R. Elaloufi, R. Carminati and J.-J. Greffet, “Definition of the diffusion coefficient in scattering and absorbing media”, J. Opt. Soc. Am. A, in press (april 2003).
- [30] J.X. Zhu, D.J. Pine and D.A. Weitz, Phys. Rev. A **44**, 3948 (1991).

Chapitre V

Fluctuations temporelles : extension de la théorie de la spectroscopie par ondes diffusives.

Table des matières

V.1	Introduction	88
V.2	Théorie de la spectroscopie par ondes diffusives	89
V.2.1	Fonctions de corrélations du champ électromagnétique	89
V.2.2	Mesures homodynes et hétérodynes	92
V.2.3	Calcul de la fonction de corrélation en diffusion multiple	92
V.3	Mise en évidence expérimentale des transitions entre régimes	96
V.3.1	Interférométrie à faible longueur de cohérence	96
V.3.2	Mesures de fluctuations à longueur de chemin fixée en détection hétérodyne	98
V.4	Extension de la théorie DWS	105
V.4.1	Calcul de la fonction de corrélation du champ	106
V.4.2	Densité spectrale de puissance	107
V.4.3	Cas limite du régime diffusif	108
V.5	Comparaison du modèle aux résultats expérimentaux	109
V.5.1	Comparaison aux résultats de Bizheva <i>et al.</i>	110
V.5.2	Comparaison aux résultats de Wax <i>et al.</i>	112
V.6	Conclusion	114
V.7	Perspective	114

V.1 Introduction

L'étude de la diffusion de la lumière dans un milieu diffusant permet d'obtenir des informations sur la structure de ce même milieu. En effet, la **diffusion statique** ou élastique nous renseigne sur le facteur de structure des particules, leur taille, etc. Tandis que l'étude de la **diffusion dynamique** ou quasi-élastique permet d'obtenir des informations sur les propriétés dynamiques des particules comme par exemples le coefficient de diffusion associé au mouvement Brownien, le rayon hydrodynamique ainsi que la viscosité. Au cours de ce chapitre, nous nous intéresserons à la diffusion dynamique de la lumière.

L'étude de la **diffusion dynamique** est un très bon outil pour les mesures de translations, de rotations et des déplacements internes des particules en suspension dont le diamètre varie entre $1nm$ et $10\mu m$. Cet outil est fondé sur le fait que l'amplitude et la phase du champ diffusé sont modifiées par la dynamique des particules diffusantes. Cette modulation se traduit par une fluctuation de l'intensité diffusée. Ainsi des informations concernant les propriétés du milieu diffusant peuvent être déduites de la fonction de corrélation temporelle (ou de la densité spectrale de puissance **DSP**) de l'intensité diffusée.

Actuellement, il existe deux techniques de mesures ou d'imagerie utilisant les fluctuations du champ ou d'intensité. L'une d'elle est valable en régime de diffusion simple, l'autre en régime diffusif.

- Si un milieu possède une épaisseur optique très faible, les photons subiront très peu d'événements de diffusion dans le milieu. C'est le cas par exemple d'un milieu très dilué. Supposer qu'il n'y a qu'un seul événement de diffusion permet de déterminer l'angle de diffusion et même la polarisation d'une manière déterministe. Ainsi ce régime de diffusion simple, qui est bien décrit, est fortement utilisé notamment en spectroscopie. Cette théorie, qui est valable en régime de diffusion simple est appelée diffusion quasi-élastique de la lumière (*Quasi-Elastic Light Scattering* : **QELS** ou **QLS**). On trouvera un exposé détaillé de la théorie **QELS** dans l'article de Bloomfield et Lim [Bloomfield et Lim (1978)] ainsi que dans l'ouvrage de Berne et Pecora [Berne et Pecora (2000)]. Par contre cette théorie n'est pas utilisable en régime de diffusion multiple.

- C'est une toute autre théorie qui a été développée dans le cas où l'on est en régime diffusif. La technique de mesure des fluctuations d'intensité permet également d'obtenir des informations sur le milieu considéré. Elle permet par exemple de déterminer un coefficient de diffusion des particules diffusantes présentes dans le milieu, leur rayon hydrodynamique, etc. La théorie associée est appelée spectroscopie par ondes diffusives (*Diffusing Wave Spectroscopy* : **DWS**). Nous trouverons le détail de cette théorie dans les articles suivants : [Maret et Wolf (1987), Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)].

Les deux théories **QELS** et **DWS** s'appliquent respectivement dans le régime de diffusion simple et le régime diffusif. Récemment, des expériences ont été réalisées [Wax, Yang,

Dasari, et Feld (2001), Boas, Bizheva, et Siegel (1998)] permettant de faire des mesures dans le régime de diffusion multiple intermédiaire. Ces auteurs ont en effet mesuré, en détection hétérodyne, les fluctuations du champ diffusé, transmis ou réfléchis par un milieu diffusant pour une longueur de chemin donnée. Leur mesure permettant de sélectionner les photons parcourant une certaine longueur dans le milieu est fondée sur la technique de l'*interférométrie à faible longueur de cohérence* (Low Coherence Interferometry : LCI). Ils observent ainsi les régimes simple et diffusif mais aussi le régime de diffusion multiple intermédiaire. La mesure se fait en détection hétérodyne ou homodyne. Dans le premier cas, la mesure permet d'accéder directement à la fonction de corrélation du champ et dans le second à la fonction de corrélation d'intensité (sachant que ces deux fonctions de corrélations peuvent être reliées dans le cas où l'on a une distribution gaussienne du champ, par la relation de Siegert).

Actuellement, il n'existe pas de modèle qui puisse décrire le régime intermédiaire. Les deux théories existantes (QSL et DWS) décrivent uniquement les régimes extrêmes (diffusion simple et régime diffusif). Nous présentons dans ce chapitre un modèle fondé sur théorie de la DWS standard (approche de type *marche au hasard*) et d'un calcul de l'ETR en régime instationnaire. Ainsi, à partir de notre modèle, nous calculons les fonctions de corrélation du champ et de l'intensité rétrodiffusée par un milieu diffusant en régime de diffusion simple et multiple. Nous montrons également quelles sont les hypothèses qui permettent de retrouver à partir de notre modèle le résultat de la théorie de la DWS classique.

Nous introduisons ce chapitre par les notions des fonctions de corrélations du premier et du second ordre pour les champs stochastiques issus des milieux diffusants. Nous décrivons brièvement les techniques de mesures en détection homodyne et hétérodyne ainsi que le principe de base de l'interférométrie à faible longueur de cohérence. La théorie de la DWS [Maret et Wolf (1987), Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)] y est exposée dans ses grandes lignes. Nous montrons par la suite des mesures expérimentales obtenues en détection hétérodyne [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001), Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]. Les mesures effectuées permettant de déterminer l'amplitude et la largeur à mi-hauteur de la densité spectrale de puissance (DSP) des fluctuations détectées en fonction de la distance des chemins parcourus par les photons dans le milieu.

Nous exposons ensuite notre modèle décrivant l'amplitude et la largeur à mi-hauteur de la DSP du champ et de l'intensité rétrodiffusés. Nous montrons que ce modèle décrit aussi bien les comportements des régimes de diffusion simple et multiple ainsi que le régime diffusif. Les résultats du modèle sont comparés aux mesures, montrant un excellent accord. La fin de ce chapitre présente la conclusion et les perspectives à venir dans le domaine de la spectroscopie par ondes diffusives.

V.2 Théorie de la spectroscopie par ondes diffusives

V.2.1 Fonctions de corrélations du champ électromagnétique

Lors de la diffusion de la lumière dans des milieux diffusants, les photons qui sortent du milieu en transmission et/ou en réflexion ont parcouru des chemins de diffusion qui peuvent être différents les uns des autres. Plus le photon restera dans le milieu, plus sa phase à la sortie sera décorrélée par rapport aux premiers photons sortant. Les interférences de phase de ces chemins de diffusion génèrent des fluctuations spatiales et/ou temporelles (*speckle*) de l'intensité diffuse. Ces fluctuations témoignent ainsi du caractère indéterminé de la différence de phase et donc du caractère stochastique du champ électromagnétique issu du milieu diffusant. Seule une théorie statistique du champ devient possible afin de caractériser le comportement de celui-ci dans les milieux diffusants. On est amené à caractériser au cours de ce chapitre les propriétés statistiques du champ pour deux instants t_1 et t_2 quelconques, séparés de τ avec $t_2 = t_1 + \tau$ et en un point donné. Nous définissons ainsi la fonction de corrélation du champ E qui en notation complexe s'écrit dans un cadre tout à fait général, comme suit :

$$G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \langle E(\mathbf{r}_1, t_1) E^*(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle \quad (\text{V.1})$$

où les chevrons $\langle \dots \rangle$ indiquent la moyenne statistique sur l'ensemble des réalisations effectuées. Cette fonction de corrélation nous donne une information sur la *ressemblance* du champ $E(\mathbf{r}_1, t_1)$ pris au point $\mathbf{r}_1$ à l'instant t_1 et du champ $E(\mathbf{r}_2, t_1 + \tau)$ pris au point $\mathbf{r}_2$ à l'instant $t_1 + \tau$. Dans la plupart des cas, nous supposons que le champ E est un signal aléatoire **stationnaire** du second ordre. Autrement dit, la fonction de corrélation ne dépend pas de l'origine du temps mais seulement de la différence $t_2 - t_1 = \tau$. La deuxième hypothèse, que l'on fait souvent en pratique, est que le signal est **ergodique**. Cette hypothèse nous permet d'identifier la moyenne sur l'ensemble des réalisations et la moyenne temporelle (qui est celle qui est en général réalisée expérimentalement). Suivant ces deux hypothèses, la relation (V.1) peut s'écrire aussi :

$$G^{(1)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; \tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T E(\mathbf{r}_1, t_1) E^*(\mathbf{r}_2, t_1 + \tau) dt_1 \quad (\text{V.2})$$

Nous nous intéressons dans ce chapitre à l'évolution temporelle du signal pris au même point $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 = \mathbf{r}_2$. Ainsi la fonction de corrélation s'écrit $G^{(1)}(\mathbf{r}, \tau) = G^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}; \tau)$. Nous pouvons normer la fonction de corrélation et définir ainsi le degré de cohérence complexe :

$$g^{(1)}(\mathbf{r}, \tau) = \frac{G^{(1)}(\mathbf{r}, \tau)}{G^{(1)}(\mathbf{r}, 0)} \quad (\text{V.3})$$

Lorsque le module du degré de cohérence vaut l'unité, le champ est totalement cohérent. Dans l'autre cas limite, le degré de cohérence vaut 0 et le champ est totalement incohérent.

Une autre grandeur mesurable et qui nous intéresse est la fonction de corrélation d'ordre 2 que l'on définit de manière tout à fait générale comme suit :

$$G^{(2)}(\mathbf{r}_1 \mathbf{r}_2, t_1 t_2; \mathbf{r}'_1 \mathbf{r}'_2, t'_1 t'_2) = \langle E(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_2) E^*(\mathbf{r}'_1, t'_1) E^*(\mathbf{r}'_2, t'_2) \rangle \quad (\text{V.4})$$

Dans le cas, où l'on a une statistique stationnaire et que l'on se place au même point $\mathbf{r}$, au temps $t_1 = t'_1$ et $t_2 = t'_2 = t_1 + \tau$, la définition précédente devient :

$$G^{(2)}(\mathbf{r}, \tau) = \langle E(\mathbf{r}, t_1) E(\mathbf{r}, t_1 + \tau) E^*(\mathbf{r}, t_1) E^*(\mathbf{r}, t_1 + \tau) \rangle \quad (\text{V.5})$$

Cette grandeur est en fait la fonction de corrélation de l'intensité et s'écrit :

$$G^{(2)}(\mathbf{r}, \tau) = \langle I(\mathbf{r}, t_1) I^*(\mathbf{r}, t_1 + \tau) \rangle \quad (\text{V.6})$$

Nous introduisons également le degré de cohérence d'ordre 2 qui est défini comme suit :

$$g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau) = \frac{G^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)}{G^{(1)}(\mathbf{r}, 0) G^{(1)}(\mathbf{r}, \tau)} \quad (\text{V.7})$$

Si cette quantité est égale en module à l'unité, on dit que le rayonnement possède une cohérence d'ordre 2.

Dans le cas général, les fonctions de corrélation du premier et du second ordre sont indépendantes. Ceci n'est plus vrai dans le cas particulier, mais important, où la densité de probabilité du champ suit un processus gaussien. Dans ce cas, nous avons une propriété remarquable qui permet de décomposer la fonction de corrélation du second ordre en fonction de la fonction de corrélation du premier d'ordre¹ [Ventsel (1973)]. Dans le cas général², la relation entre ces deux moments s'écrit de la manière suivante :

$$G^{(2)}(t_1 t_2; t'_1 t'_2) = G^{(1)}(t_1 t'_1) G^{(1)}(t_2 t'_2) + G^{(1)}(t_1 t'_2) G^{(1)}(t'_1 t_2) \quad (\text{V.8})$$

Dans notre cas, on a posé $t = t_1 = t'_1 = 0$ et $t_2 = t'_2 = t_1 + \tau = \tau$, et l'expression (V.8) devient :

$$G^{(2)}(\tau) = G^{(1)}(0) G^{(1)}(\tau) + |G^{(1)}(\tau)|^2 \quad (\text{V.9})$$

En normalisant et utilisant la relation (V.7), nous obtenons une relation entre les degrés de cohérence du premier et du second ordre. Cette relation est appelée relation de Siegert :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (\text{V.10})$$

1. Ceci est également valable pour n'importe quel ordre de fonction de corrélation. En effet, toutes les fonctions de corrélations d'un champ qui suit un processus gaussien, peuvent se décomposer moyennant la fonction de corrélation du premier ordre

2. Par soucis de clarté, nous omettons la variable spatiale $\mathbf{r}$ de la fonction de corrélation

Nous avons introduit les fonctions de corrélation du champ et de l'intensité $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ car nous nous intéresserons dans ce chapitre aux techniques consistant à analyser les fluctuations temporelles de l'énergie diffuse qui émerge d'un milieu diffusant.

Les fonctions de corrélations $G^{(1)}$ et $G^{(2)}$ se mesurent respectivement par détection *hétérodyne* et *homodyne*.

V.2.2 Mesures homodynes et hétérodynes

La figure V.1 nous montre le schéma de principe de la mesure homodyne. Ce type de mesure consiste tout simplement à détecter directement le signal diffusé à l'aide d'un photomultiplicateur [Berne et Pecora (2000)]. Le signal détecté par le photomultiplicateur est envoyé soit à un autocorrélateur soit à un analyseur spectral. Dans le premier cas, l'étude de la corrélation se fait dans le domaine temporel. Tandis que dans le deuxième cas, l'étude se fait dans le domaine spectral. Ce type de mesure permet ainsi de déterminer la fonction de corrélation de l'intensité diffuse autrement dit la fonction :

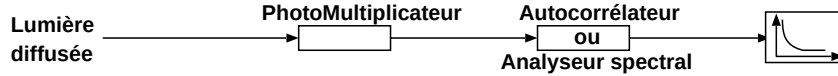
$$G^{(2)}(\tau) = \langle I(0)I(\tau) \rangle.$$


FIG. V.1 – Schéma de principe de la détection homodyne

Le deuxième type de détection est illustré sur la figure V.2. Il consiste à détecter le signal d'interférence entre la lumière diffusée et un signal de référence. Ce signal de référence est en fait une partie du signal incident qui n'a pas été diffusé. On le nomme également l'*oscillateur local*. Ainsi en choisissant une amplitude du signal de référence plus grande que l'amplitude du signal diffusé, la théorie de la détection hétérodyne qui est détaillé dans l'ouvrage suivant [(Berne et Pecora 2000)] montre que le signal détecté est proportionnel à la fonction de corrélation du champ $G^{(1)}(\tau) = \langle E(0)E(\tau) \rangle$.

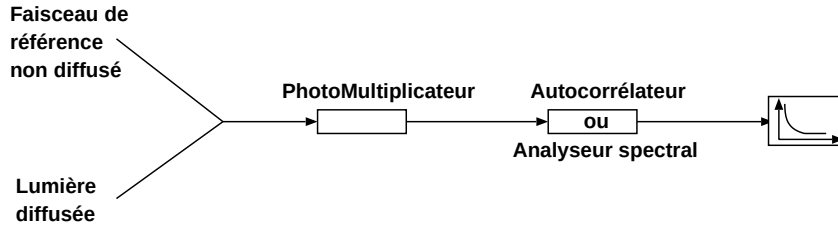


FIG. V.2 – Schéma de principe de la détection hétérodyne

Notons que grâce à la relation de Siegert (Éq. V.10), la mesure de la fonction de corrélation d'ordre 1 (*détection hétérodyne*) permet de déterminer celle d'ordre 2. Inversement la mesure de la fonction de corrélation d'ordre 2 (*détection homodyne*) permet de déterminer le module de la fonction de corrélation d'ordre 1.

V.2.3 Calcul de la fonction de corrélation en diffusion multiple

Les fluctuations temporelles de l'intensité diffusée dépendent de la cohérence de la source lumineuse, du processus de diffusion (position aléatoire des diffuseurs) ainsi que du mouvement de ces diffuseurs qui donne un aspect dynamique à la diffusion de la lumière. La diffusion dynamique de la lumière³ dans des milieux complexes est un outil quantitatif qui permet l'étude même du processus dynamique des particules dans le milieu. Nous présentons ici la théorie associée, dans le cas où le milieu est assez épais pour que le transport soit diffusif (domaine de validité de la DWS). On trouvera la théorie détaillée de la DWS dans l'article suivant [Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)]. Nous rappelons ici les étapes et les passages clés du développement théorique.

Soit un ensemble de particules diffusantes. Considérons au temps $t = 0$ une particule de coordonnée $\mathbf{r}(0)$ qui diffuse une onde incidente de vecteur d'onde $\mathbf{k}_i$. L'onde diffusée dans la direction $\mathbf{k}_d$ aura une phase qui vaudra :

$$\Phi = \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}(0) + \Phi_0 \quad \text{avec} \quad \mathbf{q} = \mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i \quad (\text{V.11})$$

Le vecteur $\mathbf{q}$ est appelé vecteur de diffusion. Si après un temps t , la particule diffusante s'est déplacée sur une nouvelle position $\mathbf{r}(t)$, la phase d'une onde incidente diffusée par la même particule sera $\Phi = \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}(t) + \Phi_0$. La différence de phase entre l'onde diffusée par la particule à $t = 0$ et celle diffusée à l'instant t Par rapport au temps $t = 0$ sera de $\Delta\Phi = \mathbf{q} \cdot [\mathbf{r}(t) - \mathbf{r}(0)]$. Ainsi à chaque déplacement de la particule diffusante correspond un changement de phase.

Pour une séquence de n événements de diffusion situés aux points $\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n$ et ayant chacun comme vecteur de diffusion $\mathbf{q}_i = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_{i-1}$, au temps τ le champ diffusé aura subi une différence de phase totale par rapport à la phase du champ au temps $t = 0$ donnée par :

$$\Delta\Phi_n(\tau) = \sum_{i=1}^n \mathbf{q}_i \cdot \Delta\mathbf{r}_i(\tau) \quad (\text{V.12})$$

$$\Delta\mathbf{r}_i(\tau) = \mathbf{r}_i(\tau) - \mathbf{r}_i(0) \quad (\text{V.13})$$

Le lien entre le champ diffusé qui aura subi n événements de diffusion au temps τ et le champ qui aura subi n diffusions à $t = 0$ est donc :

$$E^{(n)}(\tau) = E^{(n)}(0) \exp(i\Delta\Phi_n(\tau)) \quad (\text{V.14})$$

Le déplacement des particules diffusantes n'est pas connu avec exactitude mais peut être modélisé par un processus aléatoire. On introduit alors la fonction de corrélation du

3. en anglais : Dynamic Light Scattering (DLS)

premier ordre du champ ayant effectué n événements de diffusion :

$$\begin{aligned}
 G_1^{(n)}(\tau) &= \langle E^{(n)}(\tau) E^{(n)*}(0) \rangle \\
 &= \langle E^{(n)}(0) E^{(n)*}(0) \exp(i \sum_{i=1}^n \mathbf{q}_i \cdot \Delta \mathbf{r}_i(\tau)) \rangle \\
 &= \langle I^{(n)}(0) \exp(i \Delta \Phi_n(\tau)) \rangle
 \end{aligned} \tag{V.15}$$

Si l'on suppose que les champs issus des différents chemins sont incohérents entre eux, alors on peut additionner leurs intensités. Le facteur $I^{(n)}(0)$ peut être remplacé par $I_0 P(n)$ où $P(n)$ est la fraction de l'intensité diffuse totale I_0 correspondant à n événements de diffusion. La fonction de corrélation devient :

$$G_1^{(n)}(\tau) = I_0 P(n) \langle \exp(i \Delta \Phi_n(\tau)) \rangle \tag{V.16}$$

Si la différence de phase totale suit un processus gaussien alors nous pouvons remplacer l'expression (V.16) par :

$$G_1^{(n)}(\tau) = I_0 P(n) \exp(-\langle \Delta \Phi_n^2(\tau) / 6 \rangle) \tag{V.17}$$

L'expression (V.17) est valable pour n'importe quel nombre d'événements de diffusion. Elle pourrait être calculée par simulation numérique. Mais il est plus intéressant d'avoir une expression analytique pour $G_1^{(n)}(\tau)$. Plus le nombre d'événements de diffusion est important, plus l'évaluation de la moyenne est facile à calculer ainsi que l'expression de $P(n)$. La théorie sur laquelle est fondée la DWS suppose que non seulement l'on est en présence d'un grand nombre d'événements de diffusion mais aussi que ces événements sont décorrélés entre eux. Dans ce cas, l'expression (V.17) s'écrit :

$$G_1^{(n)}(\tau) = I_0 P(n) \exp(-n \langle \mathbf{q}^2 \langle \Delta \mathbf{r}^2(\tau) \rangle / 6 \rangle) \tag{V.18}$$

où $\mathbf{q}$ désigne le vecteur de diffusion d'une particule. L'évaluation de la moyenne de l'expression (V.18) revient à calculer la moyenne de $\mathbf{q}^2$ sur l'ensemble des particules ainsi que la moyenne de $\Delta \mathbf{r}(t)^2$ (moyenne sur les déplacements des particules). Si Θ est l'angle de diffusion autrement dit l'angle entre les vecteurs $\mathbf{k}_d$ (diffusé) et $\mathbf{k}_0$ (incident), la valeur de la quantité q (moyenne sur le vecteur $\mathbf{q}$) vaut :

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\Theta}{2} = 2k_0 \sin \frac{\Theta}{2} \tag{V.19}$$

où k_0 est le nombre d'onde de l'onde incidente. La moyenne de cette quantité au carré s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \langle q^2 \rangle &= \langle [2 k_0 \sin \frac{\Theta}{2}]^2 \rangle = 2 k_0^2 \langle 1 - \cos \Theta \rangle = 2 k_0^2 (1 - \langle \cos \Theta \rangle) \\
 &= 2 k_0^2 (1 - g)
 \end{aligned} \tag{V.20}$$

où l'on a fait apparaître le facteur d'anisotropie $g = \langle \cos \Theta \rangle$. Les longueurs de diffusion et de transport sont liées par ce facteur d'anisotropie par la relation suivante :

$$l_{tr} = \frac{l_s}{1 - g} \quad (\text{V.21})$$

Ainsi l'équation (V.20) devient :

$$\langle q^2 \rangle = 2 k_0^2 \frac{l_s}{l_{tr}} \quad (\text{V.22})$$

La fonction de corrélation s'écrit en fonction de ces différents paramètres :

$$G_1^{(n)}(\tau) = I_0 P(n) \exp(-2 k_0^2 \frac{l_s}{l_{tr}} \frac{\langle \Delta \mathbf{r}^2(\tau) \rangle}{6} n) \quad (\text{V.23})$$

Dans le cas où les particules diffusantes suivent un mouvement Brownien, la moyenne de l'écart du déplacement au carré est proportionnelle au temps :

$$\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle = 6 D_B t \quad (\text{V.24})$$

où D_B est le coefficient de diffusion de la particule (m^2/s). La théorie du mouvement Brownien montre que D_B est de la forme suivante :

$$D_B = \frac{kT}{\beta m} = \frac{kT}{6\pi\eta a} \quad (\text{V.25})$$

Les différents paramètres sont la constante de Boltzmann k , la température en Kelvin T , le coefficient de friction β (qui dépend notamment de la viscosité η et du rayon a de la particule) et la masse de la particule m . En injectant la relation (V.24) dans (V.23), nous obtenons le résultat fondamental de la théorie de la DWS [Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)] :

$$G_1^{(n)}(\tau) = I_0 P(n) \exp(-2 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n) \quad (\text{V.26})$$

où l'on a défini un temps caractéristique τ_0 qui vaut :

$$\tau_0 = \frac{1}{D_B k_0^2} \quad (\text{V.27})$$

La fonction de corrélation du champ total est obtenue en sommant sur l'ensemble des événements de diffusion dans le milieu.

$$G_1(\tau) = I_0 \sum_{n=1}^{\infty} P(n) \exp(-2 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n) \quad (\text{V.28})$$

Il est habituel à ce stade de faire un changement de variable de manière à faire apparaître non pas le nombre de diffusions mais plutôt la distance moyenne parcourue

par le photon⁴ : $s = n l_s$. La fonction $P(n)$ qui décrit la fraction de l'intensité qui a diffusé n fois, devient $P(s)$, la fraction de l'intensité qui a suivi un chemin de longueur s :

$$G_1(\tau) = I_0 \sum_{s=l_s}^{\infty} P(s) \exp\left(-2\frac{\tau}{\tau_0} \frac{s}{l_{tr}}\right) \quad (\text{V.29})$$

Dans les milieux ayant une grande épaisseur optique, le nombre de chemins dont la longueur est supérieure à la longueur de diffusion devient suffisamment grand pour pouvoir remplacer la somme par une intégrale :

$$G_1(\tau) = I_0 \int_0^{\infty} P(s) \exp\left(-2\frac{\tau}{\tau_0} \frac{s}{l_{tr}}\right) ds \quad (\text{V.30})$$

L'équation (V.30) est le résultat final de la théorie DWS. Elle représente la fonction de corrélation du champ. Si des photons parcourent une distance s dans le milieu diffusant, ce qui correspond à s/l_{tr} étapes, alors G_1 décroît en moyenne d'un facteur $\exp(-2\tau/\tau_0)$ après chaque étape. Tout le problème consiste donc à déterminer la fonction $P(s)$.

Cette fonction $P(s)$ dépend des propriétés physiques du milieu ainsi que de sa géométrie. Sa valeur peut être déterminée dans quelques cas limites tels qu'un milieu diffusant semi-infini ou une couche (*slab* en anglais) dans le cadre de l'approximation de la diffusion [Maret et Wolf (1987), Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)]. Nous verrons au cours de ce chapitre que nous pouvons déterminer cette fonction à partir de l'ETR instationnaire.

V.3 Mise en évidence expérimentale des transitions entre régimes

Les deux techniques que sont la DWS et la QELS décrivent deux cas limites de la diffusion. En effet, la DWS est utilisable en régime de diffusion multiple tandis que la QELS est appliquée en régime de diffusion simple. Bien que ces deux techniques produisent des informations sur les propriétés dynamiques du milieu, elles ne sont valables que dans les deux régimes. Par contre la transition entre les deux régimes n'a pas été étudiée théoriquement et on ne connaît pas avec précision le domaine de validité de la DWS. Le régime intermédiaire n'est décrit par aucune théorie à l'heure actuelle. Cependant Bizheva *et al.* [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)] et Wax *et al.* [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)] ont présenté récemment des expériences qui mesurent la fonction de corrélation de l'intensité diffusée ***pour une longueur de chemin fixée***. Leur montage expérimental permet de sélectionner les photons ayant parcouru un chemin d'une certaine longueur dans le milieu diffusant, et de mesurer le signal diffusé dans le domaine temporel (fonction de corrélation du champ ou d'intensité) ou dans le domaine spectral (densité spectrale de puissance DSP). Ces expériences montrent que les techniques de QELS et DWS peuvent être étendues au régime de diffusion multiple intermédiaire.

4. En fait, l'égalité $s = n l_s$ n'est vraie qu'en moyenne. On a $s = \langle n \rangle l_s$. Nous verrons que les fluctuations autour de cette valeur jouent un rôle non négligeable.

V.3.1 Interférométrie à faible longueur de cohérence

Le montage expérimental utilisée est fondé sur l'interférométrie à faible longueur de cohérence temporelle ("Low Coherence Interferometry" : LCI) qui consiste à sélectionner grâce à un montage de Michelson, les photons qui ont parcouru une certaine distance s dans un milieu diffusant (Fig. V.3). Les techniques de mesure dites LCI, la réflectométrie à basse cohérence ou la technique de mesure basée sur l'OCT (Optical Coherence Tomography) se rapportent toutes à un schéma de base commun.

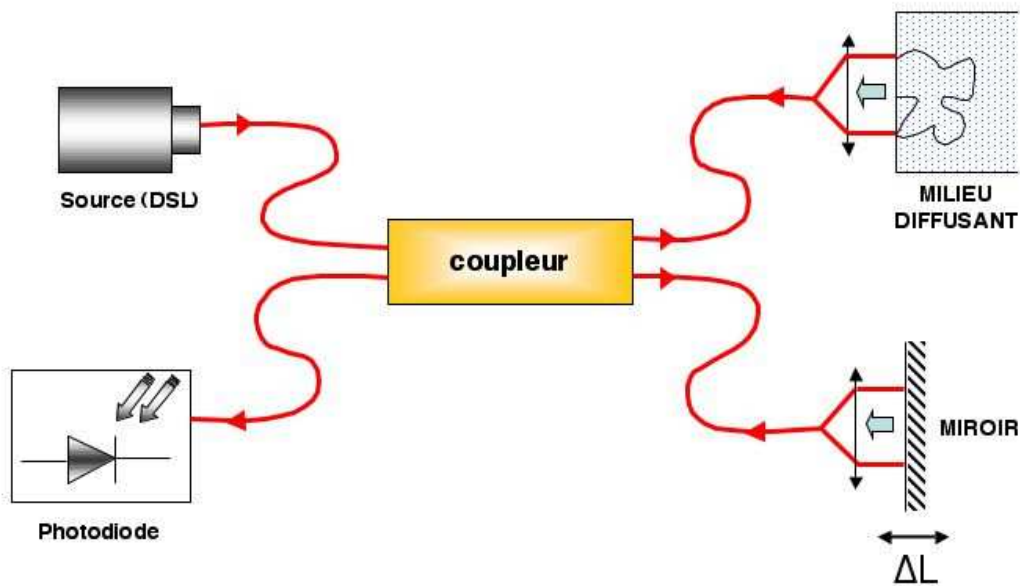


FIG. V.3 – Montage expérimental du LCI

Le montage principal est un interféromètre de Michelson. La source lumineuse (par exemple une diode laser) a une certaine largeur de bande spectrale $\Delta\nu$ centrée autour de la fréquence optique ν_0 . Le signal incident est divisé en deux via une séparatrice fibrée. Une partie du signal est envoyée sur un bras constitué d'un miroir de référence et l'autre partie est envoyée directement sur le milieu diffusant. Le miroir peut être déplacé selon une certaine distance, avec une grande précision. Cette distance a pour effet d'introduire une différence de chemin optique ΔL entre les deux signaux. Le signal rétrodiffusé par le milieu qui a parcouru une certaine distance dans le milieu et le signal réfléchi par le miroir interfèrent et le signal d'interférence est enregistré par le photodétecteur. Si le signal incident est gaussien en fréquence alors le signal d'interférence enregistré $I(\Delta L)$ est

de la forme :

$$I(\Delta L) = I_1 + I_2 + 2 \sqrt{I_1 I_2} \exp \left(- \frac{\pi^2}{\ln 2} \left(\frac{\Delta \nu}{c} \right)^2 (\Delta L)^2 \right) \cos \left(4\pi \frac{\nu_0}{c} \Delta L \right) \quad (\text{V.31})$$

où ΔL est la différence de chemin optique entre les deux bras, c la vitesse de propagation dans le milieu. Nous pouvons réécrire la relation précédente en introduisant la longueur de cohérence $L_c = c/\Delta \nu$:

$$I(\Delta L) = I_1 + I_2 + 2 \sqrt{I_1 I_2} \exp \left(- \frac{\pi^2}{\ln 2} \left(\frac{\Delta L}{L_c} \right)^2 \right) \cos \left(4\pi \frac{\nu_0}{c} \Delta L \right) \quad (\text{V.32})$$

La représentation graphique de cette relation pour un exemple concret est indiquée sur la figure V.4.

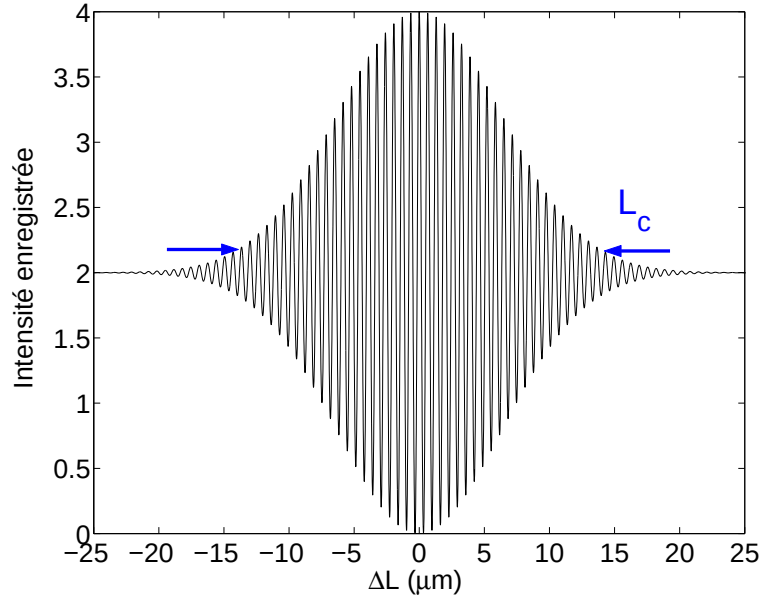


FIG. V.4 – Signal enregistré sur un montage de type LCI. La source incidente possède une longueur d'onde de $1.3\mu\text{m}$ (infrarouge), de largeur spectrale 50nm . La longueur de cohérence de la source est $L_c = 33.8\mu\text{m}$.

Nous pouvons voir que, dans la technique de mesure LCI, le signal d'interférence apparaît sur le détecteur uniquement si la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre est plus petite que la longueur de cohérence L_c de la source. Ainsi, pour détecter les photons ayant parcouru une longueur de chemin dans le milieu diffusant, il faut déplacer le miroir de référence d'une certaine distance qui correspond à la distance du chemin parcouru par les photons dans le milieu. La résolution de cette mesure est de l'ordre de la longueur de cohérence de la source.

V.3.2 Mesures de fluctuations à longueur de chemin fixée en détection hétérodyne

V.3.2.1 Description du montage expérimental de Bizheva *et al.*

Le montage expérimental utilisé (Fig. V.5) par Bizheva *et al.* [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)] est fondé sur la technique de LCI. Pour leur expérience, une diode laser est utilisée comme source lumineuse. La longueur d'onde et la largeur spectrale de cette source valent respectivement 850nm et 25nm . La longueur de cohérence de cette source est de l'ordre de $30\mu\text{m}$, et détermine la résolution spatiale axiale (profondeur). La résolution latérale est, elle, liée à l'optique de focalisation [Boas, Bizheva, et Siegel (1998), Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]. Ce dispositif expérimental permet de mesurer en détection hétérodyne la fluctuation de l'intensité rétrodiffusée par un milieu diffusant. La fluctuation de l'intensité rétrodiffusée est la conséquence directe du mouvement Brownien des particules diffusantes qui sont en suspension dans le milieu hôte. Pour chaque déplacement du miroir de référence (le déplacement se fait par pas de $33\mu\text{m}$) le contenu spectral du signal détecté par le photodétecteur (PD) est analysé.

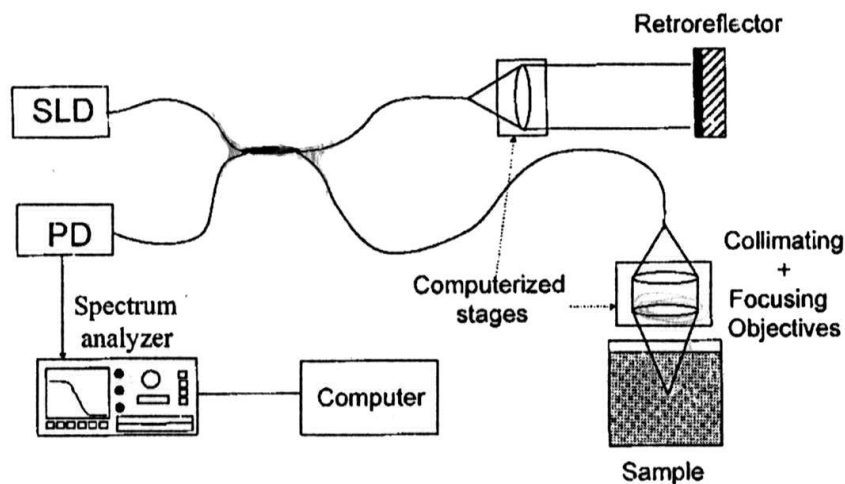


FIG. V.5 – Schéma de montage en détection hétérodyne utilisé par les auteurs de l'article suivant [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)] basé sur la technique LCI

La densité spectrale de puissance (DSP) détectée et enregistrée est une lorentzienne [Berne et Pecora (2000)]. Elle est caractérisée par son amplitude et sa largeur à mi-hauteur.

V.3.2.2 Résultats expérimentaux

Les particules diffusantes sont des microsphères de polystyrène diluées dans de l'eau. Le diamètre moyen de ces particules est de $0.22\mu\text{m}$ et leur concentration est de 4%. Le libre parcours moyen de diffusion est de l'ordre de $100\mu\text{m}$. La figure V.6 montre la mesure de la densité spectrale de puissance normalisée de l'intensité rétrodiffusée pour deux positions spécifiques du miroir de référence. Autrement dit, elle représente la DSP pour

des photons ayant parcourus dans le premier cas une distance de $66\mu m$ et dans le second cas une distance de $2mm$ dans le milieu diffusant. Nous pouvons observer sur ces deux courbes que :

- on peut ajuster une lorentzienne. En effet, la densité spectrale de puissance $P(f)$ est la transformée de Fourier de la fonction d'auto-corrélation de l'intensité (signal aléatoire) qui est une exponentielle décroissante pour les temps positifs. Par conséquent, sa transformée de Fourier est une lorentzienne :

$$P(f) = \frac{1}{\Omega} \frac{A}{1 + \left(\frac{2\pi f}{\Omega}\right)^2} \quad (V.33)$$

où f est la fréquence.

- la largeur à mi-hauteur de la densité spectrale de puissance du signal rétrodiffusé est d'autant plus grande que la longueur de chemin parcouru par les photons est grande.

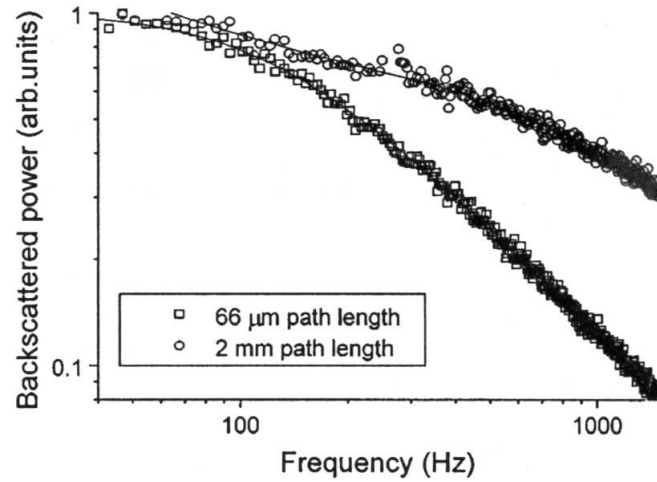


FIG. V.6 – Densité spectrale de puissance mesurée pour deux longueurs de chemin parcouru par les photons dans le milieu diffusant différents qui sont $66\mu m$ et de $2mm$ [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]

Les auteurs de cette expérience ont mesuré la DSP pour chaque position du miroir de référence. La largeur à mi-hauteur et l'amplitude sont reportées pour chaque position du miroir respectivement sur les figures V.7 et V.8.

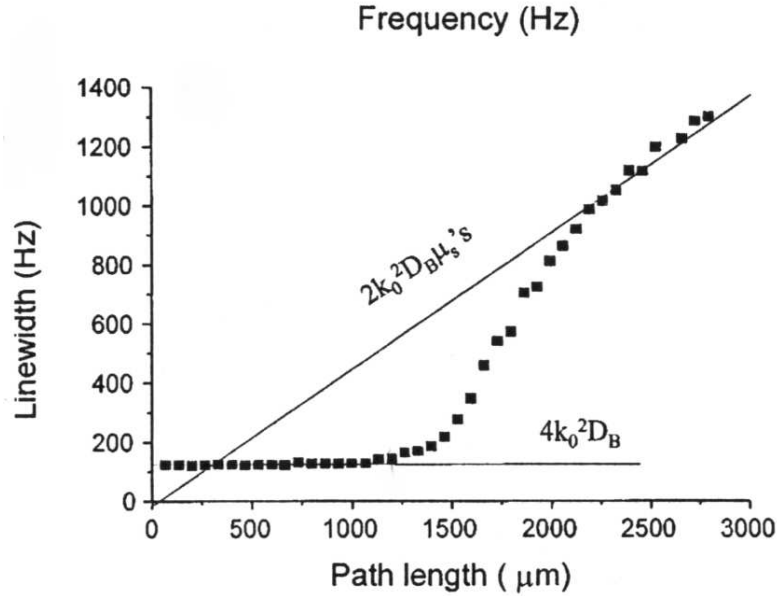


FIG. V.7 – Largeur à mi-hauteur de la lorentzienne ajustée sur la densité spectrale de puissance mesurée pour chaque position du miroir de référence qui correspond à la longueur du chemin des photons diffusés [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]

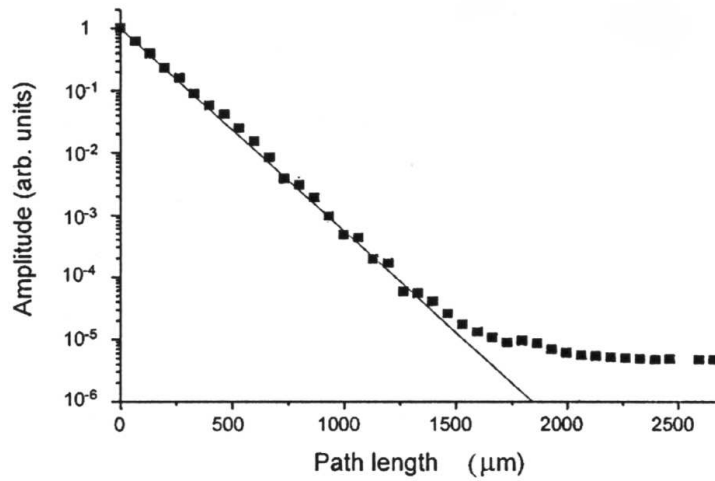


FIG. V.8 – Amplitude de la densité spectrale de puissance mesurée pour chaque position du miroir de référence qui correspond à la longueur du chemin des photons diffusés [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]

Les photons qui ont parcouru de petites distances dans le milieu ont subi très peu d'événements de diffusion. On est en régime de diffusion simple. Dans ce cas, l'angle de diffusion et la polarisation sont bien définis. La largeur à mi-hauteur Ω de la densité spectrale de puissance est directement proportionnelle au coefficient de diffusion D_B des

particules en mouvement Brownien. La relation est donnée par [Bloomfield et Lim (1978)] :

$$\Omega = q^2 D_B \quad (\text{V.34})$$

La quantité q est la norme du vecteur de diffusion. Sa valeur est donnée par l'équation (V.19) :

$$q = 2k \sin \frac{\Theta}{2}$$

La largeur à mi-hauteur est indépendante de la longueur du chemin parcouru par les photons en régime de diffusion simple. L'expression (V.34) est valable si la mesure se fait en détection hétérodyne. Par contre, si l'on utilise la détection homodyne, il faut multiplier cette expression par un facteur 2.

Dans le cas de la diffusion multiple, l'angle de diffusion et la polarisation ne sont pas définis mais suivent un processus aléatoire. La DSP de l'intensité rétrodiffusée *en régime diffusif* suit également un comportement lorentzien. La théorie de la DWS permet de déterminer la largeur à mi-hauteur de la DSP pour une longueur de chemin fixée. En effet, d'après la relation (V.29), la largeur à mi-hauteur de la DSP est donnée par la relation suivante :

$$\Omega = 2k^2 D_B \frac{s}{l_{tr}} \quad (\text{V.35})$$

Cette relation est linéaire en fonction de s , longueur du chemin parcouru par les photons.

Les relations (V.34) et (V.35) sont représentées sur la figure V.7, avec la courbe expérimentale. Il y a une bonne correspondance entre la théorie et les résultats expérimentaux dans les deux cas extrêmes de diffusion simple et du régime diffusif.

Un régime intermédiaire (transition) est mis en évidence. Il n'existe cependant pas de modèle approprié pour ce régime intermédiaire. Ce régime est pourtant fréquemment rencontré en pratique, notamment dans le domaine de l'imagerie médicale [Sebbah (2001)]. Récemment, d'autres expériences du même type ont été réalisées également en détection hétérodyne. Cela permet en effet, d'obtenir la fonction de corrélation du champ tout comme l'expérience décrite à la section précédente. Nous décrivons dans cette section le montage expérimental réalisé par Wax *et al.*

V.3.2.3 Description du montage expérimental de Wax *et al.*

La figure V.9 représente le montage expérimental en détection hétérodyne utilisée par Wax *et al.* [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)]. La source incidente est une diode superluminescente qui émet un rayonnement centré sur la longueur d'onde $\lambda_0 = 845nm$, de largeur spectrale $\Delta\lambda = 22nm$. La longueur de cohérence de la source vaut dans ce

cas $L_c = \lambda^2 / \Delta\lambda_0 = 14.3\mu m$. Tout comme le montage de Bizheva *et al.* (Fig. V.5), le miroir de référence se déplace d'une distance Δl par rapport à sa position initiale. Le signal détecté est issu de l'interférence du signal venant du miroir et du signal qui émerge du milieu diffusant. Un deuxième détecteur enregistre le signal venant directement de la source (SLD). Ce signal venant de la source, présente lui-même des fluctuations. On retranche ainsi ce signal du signal d'interférences réalisé à l'aide du montage de Michelson. Par conséquent, le signal mesuré finalement est directement proportionnel à la fonction de corrélation du champ sans composantes continues. La mesure est réalisée grâce à un analyseur de spectre qui fournit la densité spectrale de puissance (DSP) des fluctuations du champ.

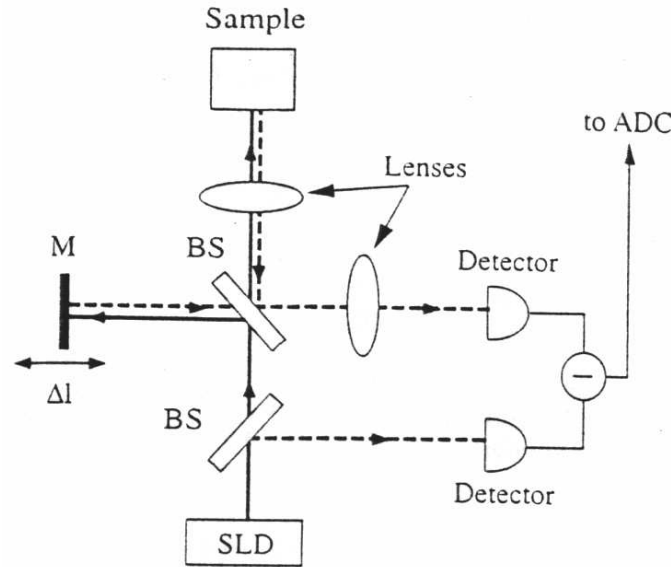


FIG. V.9 – Schéma de montage en détection hétérodyne utilisé par Wax *et al.* [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)] fondé sur la technique LCI

V.3.2.4 Résultats expérimentaux

Tout comme l'expérience de Bizheva *et al.*, la mesure de la DSP pour une longueur de chemin parcourue dans le milieu diffusant est ajustée par une courbe théorique de forme lorentzienne, comme celle donnée par l'équation (V.33). Les courbes expérimentales de la DSP ainsi que les ajustements sont représentés sur la figure V.10 pour deux longueurs de chemin différentes. Le comportement de la DSP est différent selon qu'on sélectionne une longueur de chemin ou une autre. La première courbe correspond à une longueur inférieure au libre parcours moyen de diffusion l_s . La deuxième est obtenue pour une longueur de chemin égale à $15 l_s$. Les équations (V.34) et (V.35) décrivant les deux cas limites qui sont le régime de la diffusion simple et celui de la diffusion multiple sont applicables dans ces deux cas. En ajustant les points expérimentaux de la DSP par une lorentzienne, la largeur à mi-hauteur est déterminée pour une position bien définie du miroir de référence. La

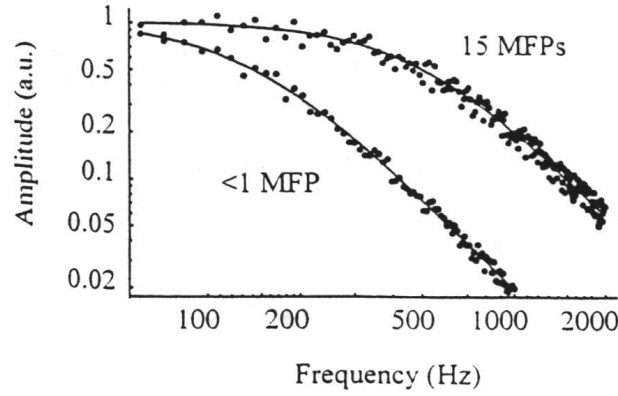


FIG. V.10 – Densité spectrale de puissance enregistré par une technique de mesure LCI en détection hétérodyne. Deux mesures sont représentées pour deux longueurs de chemins parcourus par les photons dans le milieu diffusant. MFP=Mean Free Path qui correspond à l_s

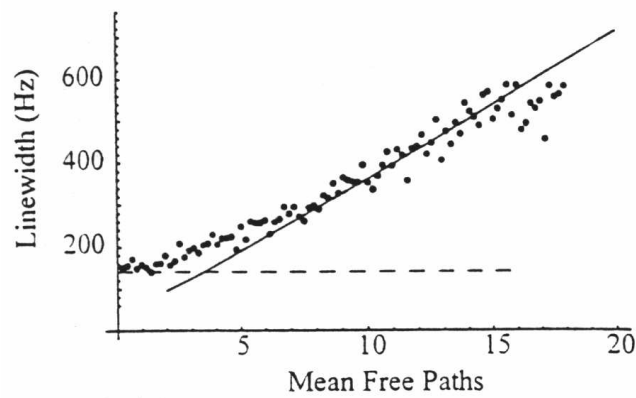


FIG. V.11 – Largeur à mi-hauteur en fonction de la longueur du chemin parcouru dans le milieu diffusant. Les courbes théoriques en diffusion simple et en régime diffusif y sont indiquées.

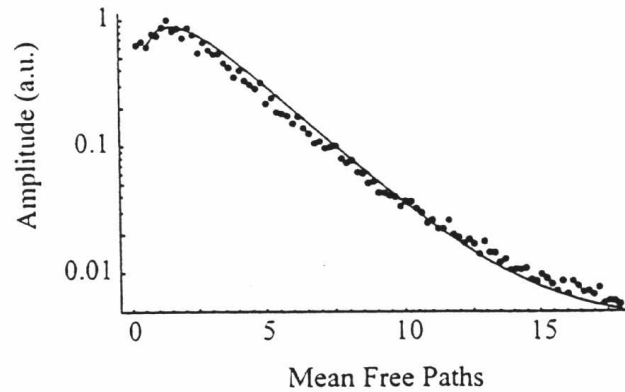


FIG. V.12 – *Amplitude de la DSP en fonction de la longueur des chemins parcourus par les photons dans un milieu diffusant.*[Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)]

figure V.11 présente la largeur à mi-hauteur $\Omega/2\pi$ de la DSP du signal détecté en fonction de la longueur du chemin parcouru dans le milieu diffusant. Les auteurs de ces expériences ont superposé sur leur courbe les deux courbes théoriques représentées par les équations (V.34) et (V.35). Nous observons que les deux cas limites (diffusion simple et régime diffusif) sont de nouveau bien décrits. À l'inverse, le régime de transition n'est décrit par aucunes des deux théories. De plus, sur la courbe expérimentale de la figure V.11, il semble qu'un palier apparaisse pour les derniers points (saturation). La largeur spectrale cesse de croître ce qui revient à dire que le temps de cohérence cesse de décroître. Nous reviendrons sur ce point dans la suite.

Les auteurs de l'article [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)] présentent un modèle permettant de décrire la DSP en fonction de la longueur du chemin parcouru par les photons dans le milieu diffusant. Toutefois celui-ci fait intervenir deux paramètres empiriques que les auteurs déterminent en minimisant l'écart entre les points expérimentaux et leur fonction théorique. Il s'agit donc plus d'un ajustement que d'un réel modèle. Dans ce qui suit, nous allons introduire un modèle qui permet de calculer la DSP en fonction de la longueur parcourue par les photons dans le milieu diffusant en détection homodyne et hétérodyne. Ce modèle permettra de décrire complètement la transition du régime de diffusion simple au régime diffusif. Nous le comparerons aux résultats expérimentaux que nous venons de présenter.

V.4 Extension de la théorie DWS

La théorie DWS classique ne permet pas d'obtenir la fonction de corrélation pour une longueur de chemin fixée dans le milieu diffusant. Le but de ce paragraphe est de proposer un modèle pour la fonction de corrélation du champ valable en particulier dans le régime intermédiaire de la diffusion multiple. Pour aboutir à ce résultat, nous devons calculer $G_1^{(n)}(\tau, s)$ c'est-à-dire la fonction de corrélation du champ diffusé correspondant

à un chemin de longueur s et comprenant n événements de diffusion.

V.4.1 Calcul de la fonction de corrélation du champ

Partons de la fonction de corrélation du champ pour n événements de diffusion. C'est l'équation (V.26) que l'on réécrit ici :

$$G_1^{(n)}(\tau) = I_0 P(n) \exp(-2 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n)$$

Rappelons que cette expression suppose $n \gg 1$ afin que les approximations utilisées pour évaluer la moyenne du terme exponentiel aient un sens (voir section 2.3). Nous voulons ajouter une variable spatiale s à cette fonction de manière à aboutir à une fonction de corrélation du champ diffusé par des photons qui ont parcouru une distance s en ayant subi n événements de diffusion. On notera cette fonction $G_1^{(n)}(\tau, s)$. Pour une distance parcourue s fixée, cette fonction est proportionnelle à la densité de probabilité $P(s)$ d'avoir un chemin de longueur s . Il nous faut de surcroît introduire la densité de probabilité $P(n, s)$ d'avoir n événements de diffusion pour un chemin de longueur s ⁵. Au final, nous écrivons la relation suivante :

$$G_1^{(n)}(\tau, s) = P(s) P(n, s) \exp(-2 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n) \quad (\text{V.36})$$

Cette expression est valable *a priori* pour $n \gg 1$ et marche en fait remarquablement bien dès que $n > 1$. Par contre, pour $n = 1$ (diffusion simple) nous avons pour un calcul en rétrodiffusion :

$$G_1^{(1)}(\tau, s) = P(s) P(1, s) \exp(-4 \frac{\tau}{\tau_0}) \quad (\text{V.37})$$

Pour avoir l'ensemble de tous les événements de diffusion pour un chemin de longueur s fixé, nous sommes sur tous les nombres d'événements de diffusion possibles :

$$G_1(\tau, s) = P(s) P(1, s) \exp(-4 \frac{\tau}{\tau_0}) + P(s) \sum_{n>1}^{\infty} P(n, s) \exp(-2 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n) \quad (\text{V.38})$$

Nous montrons dans la suite comment l'on peut déterminer les deux densités de probabilité $P(s)$ et $P(n, s)$. Ce sont les deux éléments qui distinguent cette approche du modèle DWS standard et en particulier la possibilité de calculer $P(s)$ en utilisant l'équation de transfert radiatif (ETR) instationnaire.

5. Nous verrons que cela est indispensable car si les chemins les plus nombreux correspondent à un nombre $n = s/l_s$ d'événements de diffusion, les rares chemins avec $n < s/l_s$ ont une contribution non négligeable à la fonction de corrélation.

V.4.1.1 Calcul de $P(s)$

La densité de probabilité d'avoir un chemin de diffusion de longueur s peut être obtenue par une résolution de l'ETR instationnaire. En effet, en utilisant comme source extérieure une impulsion lumineuse ultra-courte, nous obtenons le flux diffusé réfléchi et transmis en fonction du temps t et pour chaque direction $\Phi(t, \mu)$, que l'on peut intégrer sur les angles afin d'obtenir le flux total transmis ou réfléchi $\Phi(t)$. Ce flux peut être vu comme la probabilité *non normalisée* pour qu'un photon reste un temps t dans le milieu diffusant. Le passage de la variable temporelle à la variable spatiale se fait aisément par la relation $s = c t$ où c est la vitesse de propagation de l'énergie dans le milieu. Il est important de noter que l'ETR prédit tout aussi bien le comportement des régimes de diffusion simple que de diffusion multiple ainsi que le régime intermédiaire. La résolution de l'ETR tient compte de l'absorption (albédo), des conditions aux limites exactes (réflexion aux interfaces) et de la fonction de phase du milieu diffusant (propriétés de diffusion réalistes). En faisant un changement d'échelle du flux diffusé et en normalisant par l'énergie de l'impulsion incidente U_{inc} , nous obtenons la densité de probabilité pour qu'un photon sorte du milieu après un chemin de longueur s :

$$P(s) = \frac{1}{c} \frac{\Phi(t = s/c)}{U_{inc}} \quad (V.39)$$

Notons qu'il est possible de calculer cette probabilité pour une direction de sortie μ donnée, que nous noterons $P(s, \mu)$.

V.4.1.2 Calcul de $P(n, s)$

L'expression de la densité de probabilité d'avoir n événements de diffusion sur un chemin de longueur s fixé est démontrée en annexe G. Ainsi nous montrons que ce type de processus est une distribution de Poisson, qui s'écrit sous forme suivante :

$$P(n, s) = \frac{1}{n!} \left(\frac{s}{l_s}\right)^n \exp\left(-\frac{s}{l_s}\right) \quad (V.40)$$

où l_s est le libre parcours moyen de diffusion des photons dans le milieu diffusant. La distribution de Poisson est caractérisée par un seul paramètre qui dans notre cas vaut s/l_s . Ce paramètre n'est rien d'autre que la valeur moyenne $\langle n \rangle$ du nombre d'événements de diffusion sur un chemin de longueur s .

V.4.2 Densité spectrale de puissance

Pour pouvoir comparer le modèle développé ci-dessus aux expériences, il nous faut calculer la DSP. Celle-ci est donnée par la transformée de Fourier de la fonction corrélation

du champ :

$$\begin{aligned}
DSP_{G_1}(f, s) &= \int_{-\infty}^{+\infty} G_1(\tau, s) \exp(-i2\pi f\tau) d\tau \\
&= P(s) P(1, s) \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-4\frac{\tau}{\tau_0}) \exp(-i2\pi f\tau) d\tau \\
&\quad + P(s) \sum_{n>1}^{+\infty} P(n, s) \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-2\frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n) \exp(-i2\pi f\tau) d\tau \\
&= P(s) P(1, s) \frac{\tau_0}{2} \frac{1}{1 + (\frac{\tau_0\pi}{2})^2 f^2} \\
&\quad + P(s) \sum_{n>1}^{+\infty} P(n, s) \frac{2}{n\gamma} \frac{1}{1 + (\frac{2\pi}{n\gamma})^2 f^2}
\end{aligned} \tag{V.41}$$

où l'on a posé

$$\gamma = \frac{2l_s}{\tau_0 l_{tr}}$$

Nous devons également calculer la DSP associée à la fonction de corrélation de l'intensité G_2 . Elle se calcule à l'aide de la relation [Pine, Weitz, Chaikin, et Herbolzheimer (1988)] :

$$DSP_{G_2}(f, s) = \mathcal{TF}\{|G_1(\tau, s)|^2\} \tag{V.42}$$

À partir de la relation (V.38) et en calculant au préalable la fonction $P(s)$ via l'ETR, nous pouvons calculer l'amplitude et la largeur à mi-hauteur de la DSP de $G_1(\tau, s)$ et de $G_2(\tau, s)$. Leur représentation en fonction de la longueur des chemins permettra une comparaison directe aux résultats expérimentaux.

V.4.3 Cas limite du régime diffusif

• Il est intéressant de savoir sous quelles conditions on retrouve le résultat de la théorie de la DWS *standard*. Autrement dit, comment à partir de la relation (Éq. V.38) peut-on obtenir le résultat de la DWS identifié par l'équation (V.30) qui est valable en régime diffusif.

Nous sommions la fonction de corrélation (Éq. V.38) sur l'ensemble des chemins de longueur s :

$$\begin{aligned}
G_1(\tau) &= \int_0^{+\infty} G_1(\tau, s) ds \\
&= \int_0^{+\infty} P(s) \sum_{n=1}^{+\infty} P(n, s) \exp(-2\frac{\tau}{\tau_0} \frac{l_s}{l_{tr}} n) ds
\end{aligned} \tag{V.43}$$

Dans la théorie de la DWS standard, nous supposons que pour s grand, le nombre d'événements de diffusion sur un chemin de longueur s vaut exactement :

$$n = \frac{s}{l_s}$$

Sous cette hypothèse, la fonction $P(n, s)$ devient alors une fonction delta de Dirac :

$$P(n, s) = \delta\left(n - \frac{s}{l_s}\right)$$

En insérant cette expression de $P(n, s)$ dans l'équation (V.43), on obtient :

$$G_1(\tau) = I_0 \int_0^\infty P(s) \exp\left(-2\frac{\tau}{\tau_0} \frac{s}{l_{tr}}\right) ds \quad (\text{V.44})$$

qu'est bien identique à l'équation (V.30) de la DWS standard.

- La théorie DWS utilise ainsi l'hypothèse $n = s/l_s$ pour le nombre d'événements de diffusion n le long du parcours d'un photon. Cette hypothèse néglige en particulier l'existence des photons qui ont parcouru un long chemin mais avec peu d'événements de diffusion. Pour palier ce problème, nous pouvons prendre la limite exacte de la fonction de corrélation $G_1(\tau, s)$ pour les chemins de grande distance. Pour cela, il faut prendre la limite de la distribution de Poisson $P(n, s)$ lorsque l'on fait tendre s vers l'infini. Nous montrons en annexe G que dans cette limite, $P(n, s)$ tend vers une distribution de Gauss :

$$\lim_{s \rightarrow \infty} P(n, s) = \frac{1}{\sqrt{2\pi s/l_s}} \exp\left(-\frac{(n - s/l_s)^2}{2s/l_s}\right) \quad (\text{V.45})$$

Ce résultat montre qu'il subsiste des chemins dont la longueur n'est pas $n l_s$, mais dont la probabilité est faible. Physiquement, ceci montre que même pour une longueur de chemin très grande, il existera toujours des chemins pour lesquels les photons auront subi peu d'événements de diffusion et qui contribueront à la corrélation de l'intensité rétrodiffusée.

Nous verrons dans la suite ce que ceci implique pour l'évolution de la largeur de la DSP aux grandes valeurs de s .

V.5 Comparaison du modèle aux résultats expérimentaux

La démarche utilisée pour calculer les grandeurs mesurées expérimentalement est la suivante :

- calcul de $P(s)$ par résolution de l'ETR instationnaire (selon la procédure exposée au chapitre 2)

- calcul de $G_1(\tau, s)$ par l'équation (V.38), puis de sa DSP ou de celle de $G_2(\tau, s) = |G_1(\tau, s)|^2$
- calcul de l'amplitude et de la largeur à mi-hauteur de la DSP, pour différentes longueur de chemin s .

V.5.1 Comparaison aux résultats de Bizheva *et al.*

Nous présentons dans ce paragraphe un calcul de la fonction de corrélation du champ, qui permet une comparaison aux résultats expérimentaux présentés par Bizheva *et al.* [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]. Nous avons considéré une configuration et des paramètres physiques similaires à ceux de leur système. Nous calculons dans un premier temps, le flux total rétrodiffusé par un milieu d'épaisseur $L = 5\text{ mm}$ contenant des particules sphériques ayant un rayon moyen de 110 nm . L'indice des ces particules est 1.56 et elles sont placées dans de l'eau (indice = 1.33) avec une fraction volumique de 4%. L'indice effectif du milieu dans ce cas est $n_{eff} = 1.339$. Le milieu est éclairé dans la direction normale par une impulsion lumineuse de largeur temporelle 10 fs , de longueur d'onde centrale $\lambda = 850\text{ nm}$. La fonction de phase calculée par la théorie de Mie et la fraction volumique sont utilisées pour déterminer les différentes longueurs caractéristiques du milieu diffusant. Les longueurs de diffusion et d'absorption valent respectivement $l_{sca} = 111.4\mu\text{m}$ et $l_{abs} = 15.9\text{ mm}$. L'albédo, le facteur d'anisotropie et la longueur de transport sont évalués à $a = 0.993$, $g = 0.2$ et $l_{tr} = 140.2\mu\text{m}$. Pour calculer le coefficient de diffusion des particules browniennes, nous avons besoin de la viscosité $\eta = 1\text{ cps}$, de la température $T = 300\text{ K}$ et du rayon des particules. Dans ce cas, le coefficient de diffusion vaut $D_B = 1.9976 \cdot 10^{-12}\text{ m}^2/\text{s}$.

Une fois la probabilité $P(s)$ calculée par résolution de l'ETR instationnaire, $G_1(\tau, s)$ peut être évaluée. On calcule ensuite la DSP des fluctuations du champ numériquement, par transformée de Fourier de $G_1(\tau, s)$ par rapport à τ . On extrait alors du résultat l'amplitude et la largeur à mi-hauteur de la DSP, qui peuvent être comparés aux résultats expérimentaux.

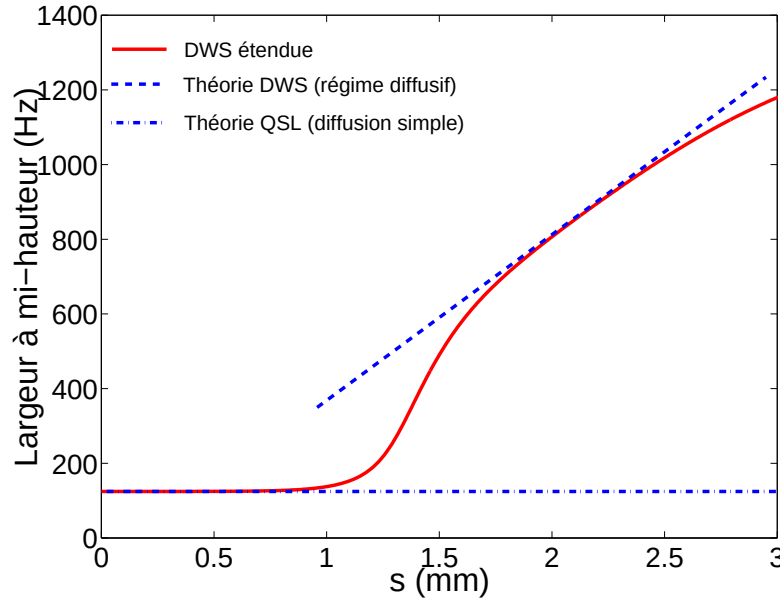


FIG. V.13 – *Largeur à mi-hauteur de la DSP des fluctuations du champ en fonction de la distance du chemin parcouru par les photons dans le milieu diffusant. Cette figure est à comparer aux résultats expérimentaux de la figure V.7*

Nous représentons sur la figure V.13 la largeur à mi-hauteur de la DSP de la fluctuation temporelle de l'intensité rétrodiffusée en fonction de s la longueur du chemin parcouru par les photons dans le milieu diffusant. Nous avons également indiqué sur le même graphique les résultats de la QELS et de la DWS standard qui sont valables dans les régimes extrêmes.

Notre modèle prend en compte les résultats de la QELS (diffusion simple) et de la DWS (régime diffusif). En effet, nous reproduisons ces deux comportements mais aussi la transition entre les deux régimes. Notre modèle est le premier à pouvoir reproduire ce comportement. Ce résultat est très important notamment pour l'imagerie médicale où les techniques utilisées peuvent fonctionner dans le régime intermédiaire [Boas, Bizheva, et Siegel (1998)].

Nous observons sur la figure V.13 qu'il y a un décrochage de la diffusion simple à partir de $s \simeq 8 - 10 l_{tr}$. Nous obtenons le résultat de la théorie de la DWS à partir de $s \simeq 15 - 20 l_{tr}$. Ceci permet de préciser le domaine de validité des deux théories QELS et DWS standard.

Nous pouvons observer également sur cette figure théorique obtenue à partir de notre modèle, une saturation pour les longs chemins de diffusion. En effet, la saturation apparaît pour $s \simeq 2.5 \text{ mm}$ sur la figure V.13. Nous comparons au prochain paragraphe un calcul aux résultats de l'expérience réalisée par Wax *et al.* où la saturation est au moins partiellement mise en évidence (Fig. V.11).

V.5.2 Comparaison aux résultats de Wax *et al.*

Pour pouvoir nous comparer aux résultats expérimentaux, nous avons choisi un système similaire à celui utilisé par Wax *et al.* [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)]. Les paramètres introduits dans le calcul de l'ETR sont les suivants : particules sphériques de rayon $129nm$ et d'indice optique 1.58 en suspension dans de l'eau. La concentration volumique des particules est 1.5 et la fonction de phase est calculée par la théorie de Mie. L'intensité incidente est une impulsion ultra courte de longueur d'onde centrale $845nm$. Dans ces conditions, le libre parcours moyen de diffusion est $l_{sca} = 175\mu m$, l'albédo 0.995 et le facteur d'anisotropie $g = 0.292$. L'épaisseur du milieu est fixée à $5mm$ (milieu optiquement épais). Le coefficient de diffusion des particules (mouvement brownien) est évalué à partir de la relation (V.25) et est de $D_B = 1.7 \cdot 10^{-12} m^2/s$. La figure V.14 représente

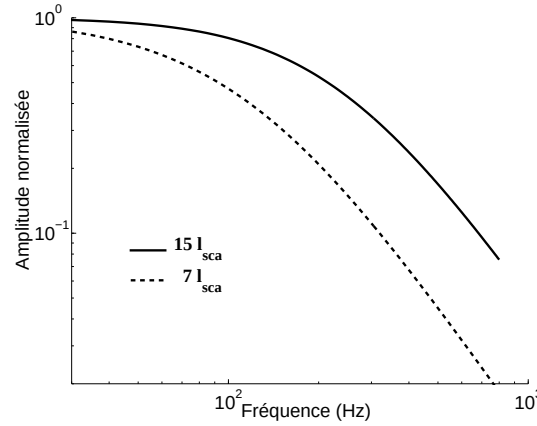


FIG. V.14 – Amplitude de la *DSP* des fluctuations du champ pour deux longueurs de chemin en fonction de la fréquence. Cette figure est à comparer aux résultats expérimentaux de la figure V.10

la densité spectrale de puissance pour deux longueurs de chemin différents ($s = 15 l_s$ et $s = 7 l_s$), obtenue à partir du modèle. Ces courbes ont un comportement lorentzien. Nous retrouvons le même comportement que dans l'expérience (Fig. V.10). L'amplitude maximale et la largeur à mi-hauteur de la *DSP* en fonction de la longueur du chemin dans le milieu sont représentées sur les figures V.15.

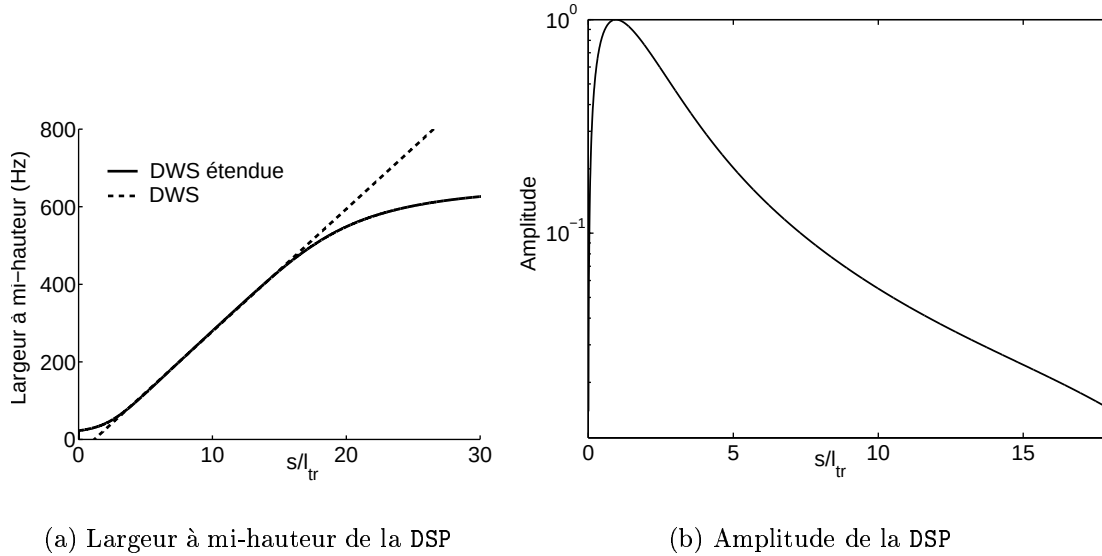


FIG. V.15 – Largeur à mi-hauteur et amplitude de la *DSP* des fluctuations du champ en fonction de la longueur (normalisée par la longueur de transport) des chemins parcourus par les photons dans un milieu diffusant, obtenues à partir du modèle. Ces courbes sont à comparer aux résultats expérimentaux des figures V.11 et V.12.

Nous avons ajouté sur la figure V.15(a) le résultat théorique (ligne pointillée) de la DWS standard qui prédit un comportement linéaire de la largeur à mi-hauteur de la DSP en fonction de s et le résultat du modèle développé dans le paragraphe précédent que nous avons appelé la *DWS étendue*. En comparant à la courbe expérimentale (Fig. V.12), nous observons que notre modèle prédit le bon comportement qui s'écarte de la DWS standard aux très courts chemins.

Un autre point important, visible sur la figure V.15(a), est l'apparition d'un palier (saturation) aux grandes valeurs de s . Le fait que la largeur à mi-hauteur tende vers une valeur finie Ω_∞ lorsque $s \rightarrow \infty$ signifie que la fonction de corrélation $G_1(\tau, s)$ tend vers une fonction en $\exp(-t/\tau_\infty)$ avec $\tau_\infty = 1/\Omega_\infty$ (et non pas vers une fonction $\delta(t)$ qui signifierait que toute corrélation aurait disparu). L'existence de cette corrélation résiduelle aux grands s est due au fait que même dans ce cas, des chemins à petit nombre d'événements de diffusion subsistent. Pour ces chemins, la perte de corrélation temporelle n'est pas totale.

Il est important de noter que cet effet de saturation prédit par le modèle est partiellement visible sur les résultats expérimentaux de la figure V.11. Au-delà de $s \simeq 12l_{sca}$, l'amorce de la saturation est visible sur les points expérimentaux.

Comme nous l'avons vu au paragraphe V.4.3, par rapport à la DWS standard, la prédiction de cet effet par notre modèle repose sur l'utilisation correcte de la probabilité $P(n, s)$,

qui lève l'hypothèse selon laquelle aux s grands, les chemins ont tous un grand nombre d'événements de diffusion donnée par $n = s/l_{sca}$.

V.6 Conclusion

Nous avons décrit au cours de ce chapitre la théorie standard de la DWS et nous l'avons étendue. Cette technique permet de caractériser le mouvement des particules diffusantes ainsi que leurs propriétés physiques comme la constante de diffusion D_B et le rayon a de ces particules à partir de mesures de fluctuations de champ ou d'intensité. Récemment, des techniques de mesures basées sur l'interférométrie à faible longueur de cohérence ont permis de mesurer la corrélation temporelle des photons qui ont parcouru un chemin de longueur fixé dans le milieu diffusant [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001), Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]. La détection hétérodyne permet de mesurer la fonction de corrélation du champ.

L'étude expérimentale de la largeur à mi-hauteur Ω de la DSP associée à ces fluctuations pour une longueur de chemin fixée s permet de distinguer clairement les régimes de diffusion simple et multiple. La théorie de la DWS standard prédit un comportement linéaire de Ω en fonction de s en régime diffusif. Il n'existait pas de théorie permettant de décrire la transition entre les régimes de diffusion simple et le régime diffusif. De plus, certaines expériences semblent montrer que pour les longs chemins de diffusion $> 15 l_{tr}$, il y a un début de palier pour Ω . Cela n'est pas prédit par la DWS standard.

Nous avons développé un modèle permettant de décrire la fonction de corrélation du champ ou de l'intensité à longueur de chemin de diffusion fixé et pour un nombre quelconque d'événements de diffusion. Ce modèle fait intervenir la distribution du nombre d'événements de diffusion pour une longueur de chemin fixé. C'est une distribution de Poisson de moyenne égale à s/l_s . Il fait également intervenir la distribution des longueurs de chemins de diffusion. Cette distribution est calculée à partir de l'ETR en régime instationnaire.

Nous avons comparé les résultats théoriques de notre modèle aux courbes expérimentales effectuées par Wax *et al.* [Wax, Yang, Dasari, et Feld (2001)] et Bizheva *et al.* [Bizheva, Siegel, et Boas (1998)]. Nous reproduisons sans introduire de paramètres ajustables l'allure de la DSP, son amplitude, sa largeur à mi-hauteur en fonction de s . La transition entre les régimes de diffusion simple et le régime diffusif est décrite quantitativement, ainsi que la saturation qui apparaît quand $s \rightarrow \infty$.

V.7 Perspective

Des études expérimentales [Boas, Bizheva, et Siegel (1998)] ont été réalisées afin de déterminer l'influence de l'ouverture numérique et du paramètre d'anisotropie sur la mesure de la DSP des fluctuations temporelles et donc de la largeur à mi-hauteur. Les auteurs de ces expériences mesurent en détection hétérodyne la fonction de corrélation du champ (ordre 1) pour différentes ouvertures numériques et pour différents paramètres d'anisotropie. Nous travaillons dans ce sens afin d'améliorer le modèle qui tiendrait compte de l'influence de l'ouverture numérique sur la DSP des fluctuations temporelles du champ diffusé.

Conclusion

Nous avons étudié dans le cadre de la thèse de doctorat l'aspect temporel de la propagation du rayonnement dans des milieux diffusants. Cette étude peut être décrite selon deux approches. La première approche prend comme point de départ les équations de **Maxwell** tandis que la seconde approche part de la théorie de transport des photons. Nous avons choisi d'étudier le problème à partir de la seconde approche qui est fondée à partir de l'équation transfert radiatif instationnaire : **ETR**.

Nous avons résolu numériquement l'**ETR** instationnaire dans une configuration où une impulsion lumineuse éclaire dans la direction normale, une tranche d'un milieu diffusant (slab en géométrie plane). La résolution consiste à utiliser la méthode des ordonnées discrètes dans le domaine fréquentiel de l'**ETR**. Cela revient à résoudre une équation de même type que l'**ETR** stationnaire mais dans le domaine complexe. Nous pouvons calculer le flux hémisphérique ou directionnel, transmis ou rétrodiffusé dans le cas stationnaire ou instationnaire. Nous avons validé notre méthode de calcul en la comparant à des résultats expérimentaux et à d'autres méthodes de résolution de l'**ETR**.

Parmi les méthodes de calcul existant, il y a l'approximation de la diffusion qui permet de décrire le transport photonique dans des milieux diffusants. L'équation de base de l'approximation de la diffusion est une équation différentielle de type parabolique pour la densité d'énergie lumineuse qui est plus simple à résoudre que l'**ETR**. Le seul paramètre dans cette équation, qui décrit les propriétés du milieu est le coefficient de diffusion D .

Il existe différentes approches pour pouvoir établir l'équation de la diffusion. Cependant, la définition du coefficient de diffusion varie selon l'approche adoptée. Nous avons développé une nouvelle approche qui est fondée sur l'analyse du mode fondamental (un mode propre) de l'**ETR**. Sans faire aucune hypothèse concernant l'absorption ou la diffusion (isotrope ou anisotrope), nous obtenons une nouvelle définition et interprétation du coefficient de diffusion D . Nous avons étudié la dépendance de ce coefficient de diffusion en fonction de l'absorption et également du facteur d'anisotropie.

En utilisant la résolution numérique de l'**ETR** comme solution de référence, nous avons étudié la transition vers le régime diffusif. Nous avons montré que l'approximation de la diffusion n'est plus valable pour des milieux ayant une faible épaisseur optique ($L < 8l_{tr}$) même aux temps longs.

Pour caractériser la transition entre le régime balistique et le régime diffusif, nous avons présenté une étude théorique et numérique à partir de l'ETR instationnaire qui prend en compte exactement les conditions aux limites. Nous avons montré que les réflexions internes jouent un rôle considérable pour les systèmes à faible épaisseur optique. Nous avons également présenté un modèle fondé sur la relation de dispersion de l'ETR. Pour toutes les approches, nous montrons que le régime diffusif est atteint à partir de $8l_{tr}$.

L'étude de la diffusion dynamique par des particules animées d'un mouvement brownien, permet d'obtenir des informations sur la structures et des propriétés physiques de ce même milieu. Deux théories (la QELS et la DWS) permettent de modéliser respectivement le signal en diffusion simple et en régime diffusif. Nous avons développé un modèle permettant de décrire les deux régimes (diffusion simple et multiple) ainsi que le régime intermédiaire. Le modèle se base sur une approche de type *marche au hasard* et sur la résolution de l'équation de transfert radiatif instationnaire. Il a permis de décrire des expériences récentes de mesures de fluctuations temporelles de champ et d'intensité dans le régime de diffusion multiple intermédiaire. Ces résultats sont prometteurs car ce régime est celui qui est souvent rencontré en imagerie médicale.

Annexe A

Coefficients de Fresnel

A.1 Coefficients de réflexion et de transmission en amplitude

Soit une interface séparant deux milieux d'indice n_i et n_j (Fig. A.1). On considère une onde plane monochromatique se propageant dans le milieu d'indice n_i . La direction de propagation de cette onde plane fait angle θ_i avec la normale de l'interface. Les relations de Snell-Descartes déterminent la direction de propagation de l'onde réfléchie et transmise. Tandis que les relations de Fresnel nous permettent de déterminer l'amplitude de l'onde réfléchie et transmise et de surcroît la répartition de l'énergie réfléchie et transmise.

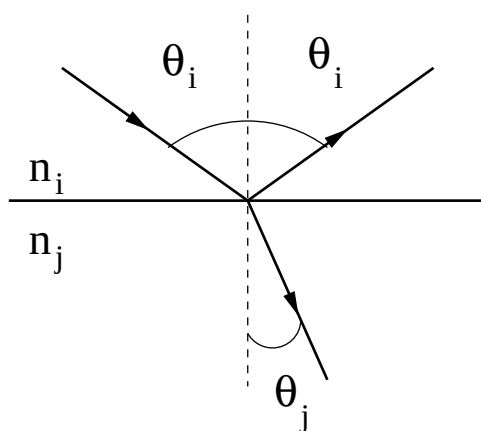


FIG. A.1 – Réflexion et transmission d'une onde électromagnétique sur une interface plane

Nous ne développerons pas ici le détail des calculs des relations de Fresnel que l'on trouvera dans la référence suivante [Born et Wolf (1999)]. Ces coefficients de Fresnel seront

juste présentés par les relations suivantes :

$$r_{ij}^{\perp} = \frac{n_i \cos \theta_i - n_j \cos \theta_j}{n_i \cos \theta_i + n_j \cos \theta_j} \quad (\text{A.1})$$

$$r_{ij}^{\parallel} = \frac{n_j \cos \theta_i - n_i \cos \theta_j}{n_j \cos \theta_i + n_i \cos \theta_j} \quad (\text{A.2})$$

$$t_{ij}^{\perp} = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_i \cos \theta_i + n_j \cos \theta_j} \quad (\text{A.3})$$

$$t_{ij}^{\parallel} = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_j \cos \theta_i + n_i \cos \theta_j} \quad (\text{A.4})$$

La relation (A.1) (*resp.*(A.2)) représente le rapport de la composante perpendiculaire (parallèle) de l'onde **réfléchi**e et de l'onde incidente se propageant du milieu i vers le milieu j .

La relation (A.3) (*resp.*(A.4)) représente le rapport des composantes perpendiculaires (parallèle) de l'onde **transmise** et de l'onde incidente se propageant du milieu i vers le milieu j .

Les angles θ_i et θ_j sont reliées par la relation de Snell-Descartes :

$$n_i \sin \theta_i = n_j \sin \theta_j \quad \Rightarrow \quad \cos \theta_j = \sqrt{1 - \left(\frac{n_i}{n_j}\right)^2 (1 - \cos^2 \theta_i)} \quad (\text{A.5})$$

A.2 Coefficients de réflexion et de transmission en énergie

- Cas polarisé :

Le rapport de l'énergie réfléchi (*resp.*transmise) à l'énergie incidente est appelé *coefficient de réflexion* (*coefficient de transmission*). Ces coefficients sont donnés par les relations suivantes :

$$R_{ij}^{\perp} = |r_{ij}^{\perp}|^2 \quad (\text{A.6})$$

$$R_{ij}^{\parallel} = |r_{ij}^{\parallel}|^2 \quad (\text{A.7})$$

$$T_{ij}^{\perp} = \frac{n_j \cos \theta_j}{n_i \cos \theta_i} |t_{ij}^{\perp}|^2 \quad (\text{A.8})$$

$$T_{ij}^{\parallel} = \frac{n_j \cos \theta_j}{n_i \cos \theta_i} |t_{ij}^{\parallel}|^2 \quad (\text{A.9})$$

Il est facile de s'assurer que la conservation de l'énergie est bien établie :

$$R_{ij}^{\perp} + T_{ij}^{\perp} = R_{ij}^{\parallel} + T_{ij}^{\parallel} = 1$$

- Cas non polarisé :

Les coefficients de réflexion et de transmission d'une lumière non polarisée s'obtiennent en faisant la moyenne des coefficients dans le cas polarisé. Par conséquent, nous avons les relations suivantes :

$$R_{ij} = \frac{|r_{ij}^{\perp}|^2 + |r_{ij}^{\parallel}|^2}{2} \quad (\text{A.10})$$

$$T_{ij} = \frac{n_j \cos \theta_j}{n_i \cos \theta_i} \frac{|t_{ij}^{\perp}|^2 + |t_{ij}^{\parallel}|^2}{2} \quad (\text{A.11})$$

et la conservation d'énergie est bien assurée :

$$R_{ij} + T_{ij} = 1$$

- cas particulier : en incidence normale :

Les coefficients de réflexion et de transmission s'écrivent dans le cas où l'on est en incidence normale ($\theta_i = 0$) de la manière suivante :

$$R_{ij}^0 = R_{ij}(\cos \theta_i = 1) = \left(\frac{n_i - n_j}{n_i + n_j} \right)^2 \quad (\text{A.12})$$

$$T_{ij}^0 = T_{ij}(\cos \theta_i = 1) = \frac{4n_i n_j}{(n_i + n_j)^2} \quad (\text{A.13})$$

Annexe B

Quadrature de Gauss

B.1 Définition

Nous voulons calculer l'intégrale

$$\int_{-1}^1 f(x) dx$$

selon une méthode numérique qui consiste à l'évaluer par une somme de n termes et ceci en minimisant l'erreur commise par la quadrature.

$$\int_{-1}^1 f(x) dx = \sum_{i=1}^n a_i f(x_i) \quad (\text{B.1})$$

Les coefficients a_i et x_i sont respectivement les poids et abscisses de la quadrature considérée.

Le problème consiste à sélectionner les couples de points a_i et x_i pour que la formule de quadrature (Éq. (B.1)) soit **exacte** pour tout polynôme $f(x)$ de degré N le plus grand possible.

Puisque nous avons $2n$ constantes a_i et x_i à déterminer et qu'un polynôme de degré $2n - 1$ est défini par $2n$ coefficients, alors le degré maximal d'un polynôme pour lequel la quadrature est exacte vaut :

$$N = 2n - 1 \quad (\text{B.2})$$

Le calcul détaillé [Démidovitch et Maron (1979)] nous permet de déterminer les abscisses x_i et les poids a_i . En effet, les abscisses sont les racines du polynôme de Legendre $P_n(x)$ d'ordre n et les poids sont évalués par un calcul d'intégrale de polynômes élémentaires.

$$P_n(x_i) = 0 \quad (\text{B.3})$$

$$a_i = \frac{1}{\frac{dP_n(x)}{dx} \big|_{x=x_i}} \int_{-1}^{+1} \frac{P_n(x)}{(x - x_i)} dx \quad (\text{B.4})$$

B.2 Propriétés

Les abscisses et les poids possèdent des propriétés de symétries. En effet, supposons que le nombre de discrétisation est pair¹ $n = 2k$, si l'on range les abscisses x_i par ordre croissant :

$$x_1 < x_2 < \dots x_k < 0 < x_{k+1} \dots < x_{2k}$$

alors nous avons les propriétés de symétries suivantes :

$$\begin{cases} x_{2k+1-i} = |x_i| & i = 1 \dots k \\ a_{2k+1-i} = a_i & i = 1 \dots k \end{cases} \quad (\text{B.5})$$

Le tableau B.1 nous indique quelques valeurs de poids et d'abscisses de la quadrature de Gauss.

n	i	x_i	a_i
1	1	0	2
2	1; 2	∓ 0.57735027	1
3	1; 3	∓ 0.77459667	0.55555556
	2	0	0.88888889
4	1; 4	∓ 0.86113631	0.34785484
	2; 3	∓ 0.33998104	0.65214516
5	1; 5	∓ 0.90617985	0.23692688
	2; 4	∓ 0.53846931	0.47862868
	3	0	0.56888889
6	1; 6	∓ 0.93246951	0.17132450
	2; 5	∓ 0.66120939	0.36076158
	3; 4	∓ 0.23861919	0.46791394

TAB. B.1 – Poids et abscisses de la quadrature de Gauss

B.3 Cas général

Dans le cas où les bornes d'intégration valent dans le cas générale $[a, b]$, l'intégrale s'écrit :

$$\int_a^b f(x) dx \quad (\text{B.6})$$

Un changement de variable d'intégration x par :

$$x = \frac{b+a}{2} + \frac{b-a}{2}t \quad (\text{B.7})$$

1. Nous pouvons raisonner également sur un nombre impair de discrétisation

permet d'écrire la relation :

$$\int_a^b f(x)dx = \frac{b-a}{2} \int_{-1}^{+1} f\left(\frac{b+a}{2} + \frac{b-a}{2}t\right)dt \quad (\text{B.8})$$

et en appliquant la quadrature de Gauss à la nouvelle intégrale, nous avons finalement :

$$\int_a^b f(x)dx = \frac{b-a}{2} \sum_{i=1}^n a_i f(x_i) \quad (\text{B.9})$$

où

$$x_i = \frac{b+a}{2} + \frac{b-a}{2}t_i \quad (i = 1, 2, \dots, n) \quad (\text{B.10})$$

les facteurs t_i et a_i sont respectivement les abscisses les poids de la quadrature de Gauss.

B.4 Exemple

Nous voulons calculer à l'aide du tableau (B.1) l'intégrale suivante selon la quadrature de Gauss mais avec une discrétisation de 2, 3 et 4 points.

$$S = \int_{-1}^1 e^{-\frac{x^2}{2}} dx$$

• Deux points :

$$S \approx a_1 e^{-\frac{x_1^2}{2}} + a_2 e^{-\frac{x_2^2}{2}} = 1.69296344$$

• Trois points :

$$S \approx a_1 e^{-\frac{x_1^2}{2}} + a_2 e^{-\frac{x_2^2}{2}} + a_3 e^{-\frac{x_3^2}{2}} = 1.71202024$$

• Quatre points :

$$S \approx a_1 e^{-\frac{x_1^2}{2}} + a_2 e^{-\frac{x_2^2}{2}} + a_3 e^{-\frac{x_3^2}{2}} + a_4 e^{-\frac{x_4^2}{2}} = 1.71122450$$

Or la solution exacte du calcul de S vaut :

$$S = \sqrt{2\pi} \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\right) \approx 1.71124878$$

Avec une faible discrétisation, la quadrature de Gauss nous permet d'avoir une très bonne approximation de la solution exacte.

B.5 Quadrature de deux milieux séparés par une interface

Nous appliquons la quadrature de Gauss à l'intégrale qui se trouve dans l'ETR. Nous avons une discrétisation angulaire dans le milieu en question. Par contre, lorsqu'on est en présence d'interfaces physiques, nous n'avons pas les mêmes directions de discrétisation. En effet, la figure B.5 nous indique une interface physique séparant deux milieux d'indice n_1 et n_2 . Nous supposons ici que $n_2 > n_1$. Nous choisissons comme nombre de discrétisation : $2N_1$ pour le milieu d'indice n_1 , la quadrature de Gauss nous fournit les abscisses μ_i^a et les poids a_i^a ($i = 1 \cdots 2N_1$)²[Thomas et Stamnes (1999)].

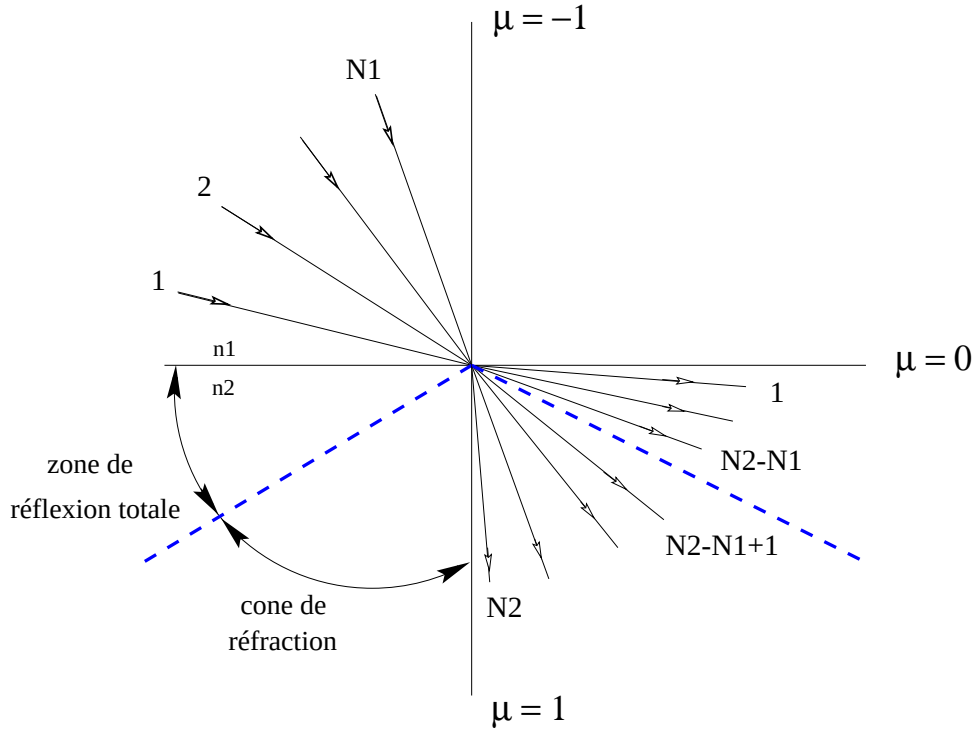
$$\int_{-1}^{+1} f(\mu^a) d\mu^a = \sum_{i=1}^{2N_1} a_i^a f(\mu_i^a) \quad (\text{B.11})$$

On désire avoir dans le milieu 2, une discrétisation selon $2N_2 > 2N_1$ directions (Fig. B.5). Parmi les N_2 directions, il y a N_1 directions qui sont déterminées à partir de la loi de Snell-Descartes. Ces N_1 directions sont inscrites dans le cône de réfraction limité par l'angle limite μ_L^s :

$$\mu_L^s = \sqrt{1 - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2} \quad (\text{B.12})$$

Tandis que les $N_2 - N_1$ autres directions se trouvent dans la zone de réflexion totale. Ces directions seront déterminées par la quadrature de Gauss.

2. Nous avons placé un indice a pour le milieu d'indice n_1 et un indice s pour le milieu d'indice n_2 .



En décomposant l'intégrale dans le milieu 2, nous avons :

$$\int_{-1}^{+1} f(\mu^s) d\mu^s = \left(\int_{-1}^{-\mu_L^s} + \int_{-\mu_L^s}^{+\mu_L^s} + \int_{+\mu_L^s}^{+1} \right) f(\mu^s) d\mu^s$$

- La deuxième intégrale peut être calculée par la relation (B.9). Nous avons ainsi :

$$\int_{-\mu_L^s}^{+\mu_L^s} f(\mu^s) d\mu^s = \sum_{j=1}^{2(N_2-N_1)} \mu_L^s a_j f(\mu_L \mu_j)$$

où les a_j et μ_j sont les éléments de la quadrature de Gauss selon $2(N_2 - N_1)$ discrétisations. Ceci nous permet de définir les poids et les abscisses équivalents dans le deuxième milieu.

$$\begin{cases} \mu_j^s &= \mu_L \mu_j \\ a_j^s &= \mu_L^s a_j \end{cases} \quad j = 1 \dots (N_2 - N_1) \quad (\text{B.13})$$

- La première et la troisième intégrale s'écrivent :

$$\left(\int_{-1}^{-\mu_L^s} + \int_{+\mu_L^s}^{+1} \right) f(\mu^s) d\mu^s \quad (\text{B.14})$$

On exprime ces deux intégrales en fonction des directions se trouvant dans le milieu d'indice n_1 . À l'aide de la relation de Snell-Descartes, nous effectuons un changement de

variable :

$$\mu^s = g(\mu^a) = \sqrt{1 - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 (1 - (\mu^a)^2)} \quad (\text{B.15})$$

Suite à ce changement de variable, la relation (B.14) devient :

$$\left(\int_{-1}^0 + \int_0^{+1} \right) f(g(\mu^a)) \frac{dg}{d\mu^a} d\mu^a = \int_{-1}^{+1} f(g(\mu^a)) \frac{dg}{d\mu^a} d\mu^a \quad (\text{B.16})$$

On discétise l'intégrale selon les $2N_1$ directions

$$\int_{-1}^{+1} f(g(\mu^a)) \frac{dg}{d\mu^a} d\mu^a = \sum_{i=1}^{2N_1} f(g(\mu_i^a)) \frac{dg}{d\mu^a} \Big|_{\mu_i^a} a_i^a \quad (\text{B.17})$$

et l'on peut définir ainsi les poids et les abscisses de Gauss dans le milieu d'indice n_2

$$\begin{cases} \mu_{N_2-N_1+i}^s &= \sqrt{1 - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 (1 - \mu_i^{a^2})} & i = 1 \cdots N_1 \\ a_{N_2-N_1+i}^s &= \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 \frac{\mu_i^a}{\mu_{N_2-N_1+i}^s} a_i^a \end{cases} \quad (\text{B.18})$$

Les relations (B.13) et (B.18) nous permettent de définir les abscisses et les poids de Gauss dans le milieu d'indice n_2 à partir des directions de discrétisation dans le milieu d'indice n_1 .

Annexe C

Résolution du système d'équations homogènes

Nous présentons dans cette annexe, une méthode de résolution du système d'équations (C.1) qui est issu de la discrétisation l'équation de transfert radiatif pour la luminance diffuse. Nous rappelons que le système d'équations obtenu s'écrit de la manière suivante :

$$d_\tau \begin{bmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{M}^+ & \mathbf{M}^- \\ -\mathbf{M}^- & -\mathbf{M}^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \Sigma^+ \\ \Sigma^- \end{bmatrix} \quad (\text{C.1})$$

C.1 Solution homogène

Une solution de l'équation homogène est du type:

$$\mathbf{L}_{hom} = \begin{bmatrix} \mathbf{L}^+ \\ \mathbf{L}^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{G}^+ \\ \mathbf{G}^- \end{bmatrix} e^{k\tau} \quad (\text{C.2})$$

En injectant cette solution, dans le système d'équation homogène, nous obtenons

$$\begin{cases} k\mathbf{G}^+ = \mathbf{M}^+\mathbf{G}^+ + \mathbf{M}^-\mathbf{G}^- & (1) \\ k\mathbf{G}^- = -\mathbf{M}^-\mathbf{G}^+ - \mathbf{M}^+\mathbf{G}^- & (2) \end{cases}$$

C'est un système ($2N \times 2N$) aux valeurs propres k et de vecteurs propres $\mathbf{G}^\pm$. La matrice possède une symétrie particulière qui fait que les valeurs propres apparaissent par paires $\pm k$ (voir annexe E). Ainsi l'ordre du problème peut être réduit à l'ordre N . En effet, en additionnant et en soustrayant les équations (1) et (2), nous obtenons les équations (3) et (4).

$$\begin{cases} k(\mathbf{G}^+ + \mathbf{G}^-) = (\mathbf{M}^+ - \mathbf{M}^-)(\mathbf{G}^+ - \mathbf{G}^-) & (3) \\ k(\mathbf{G}^+ - \mathbf{G}^-) = (\mathbf{M}^+ + \mathbf{M}^-)(\mathbf{G}^+ + \mathbf{G}^-) & (4) \end{cases}$$

En multipliant ces deux équations, nous obtenons:

$$k^2(\mathbf{G}^+ + \mathbf{G}^-) = (\mathbf{M}^+ - \mathbf{M}^-) (\mathbf{M}^+ + \mathbf{M}^-) (\mathbf{G}^+ + \mathbf{G}^-)$$

Nous résolvons ce problème aux valeurs propres de dimension $(N \times N)$, on aura les valeurs propres k_q^2 et les vecteurs propres $\mathbf{G}_q^+ + \mathbf{G}_q^-$. On utilise ensuite l'équation (3) pour déterminer les vecteurs propres $\mathbf{G}_q^+ - \mathbf{G}_q^-$ associés aux valeurs k_q et $-k_q$.

$$\begin{cases} (\mathbf{M}^+ - \mathbf{M}^-) (\mathbf{G}_q^+ - \mathbf{G}_q^-) = +k_q(\mathbf{G}_q^+ + \mathbf{G}_q^-) \\ (\mathbf{M}^+ - \mathbf{M}^-) (\mathbf{G}_q^+ + \mathbf{G}_q^-) = -k_q(\mathbf{G}_q^+ - \mathbf{G}_q^-) \end{cases}$$

Posons:

$$\begin{aligned} \mathbf{X}_q &= (\mathbf{G}_q^+ + \mathbf{G}_q^-) \\ \mathbf{Y}_q^+ &= (\mathbf{G}_q^+ - \mathbf{G}_q^-) \quad \text{pour} \quad +k_q \\ \mathbf{Y}_q^- &= (\mathbf{G}_q^+ + \mathbf{G}_q^-) \quad \text{pour} \quad -k_q \end{aligned}$$

$$\begin{cases} \mathbf{G}_q^+ &= \frac{\mathbf{X}_q + \mathbf{Y}_q^+}{2} \\ \mathbf{G}_q^- &= \frac{\mathbf{X}_q - \mathbf{Y}_q^+}{2} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \overline{\mathbf{G}}_q^+ &= \frac{\mathbf{X}_q + \mathbf{Y}_q^-}{2} \\ \overline{\mathbf{G}}_q^- &= \frac{\mathbf{X}_q - \mathbf{Y}_q^-}{2} \end{cases}$$

Ainsi les vecteurs propres associés aux valeurs propres $+k_q$ et $-k_q$ valent respectivement :

$$\mathbf{G}_q = \begin{bmatrix} \mathbf{G}_q^+ \\ \mathbf{G}_q^- \end{bmatrix} \quad \overline{\mathbf{G}}_q = \begin{bmatrix} \overline{\mathbf{G}}_q^+ \\ \overline{\mathbf{G}}_q^- \end{bmatrix} \quad \text{de taille: } (2N)$$

La solution du système d'équations homogènes est une combinaison linéaire de la relation (C.2), qu'on écrira comme suit :

$$\mathbf{L}_{hom} = \sum_{i=1}^N C_i \mathbf{G}_i e^{k_i \tau} + \sum_{i=1}^N C_i \overline{\mathbf{G}}_i e^{-k_i \tau}$$

Ou sous forme compact:

$$\mathbf{L}_{hom} = \sum_{i=1}^{2N} C_i \mathbf{G}_i e^{k_i \tau}$$

Annexe D

Calcul du flux transmis en approximation de la diffusion

Nous voulons calculer le flux transmis par une tranche de matériau en géométrie plane (Fig. D.1) pour une impulsion. Nous supposons que l'on est en régime diffusif et où l'approximation de diffusion est applicable. Le calcul du flux passe par la recherche de la densité d'énergie $U(\mathbf{r}, t)$ dont elle satisfait l'équation de diffusion : Soit un milieu d'épais-

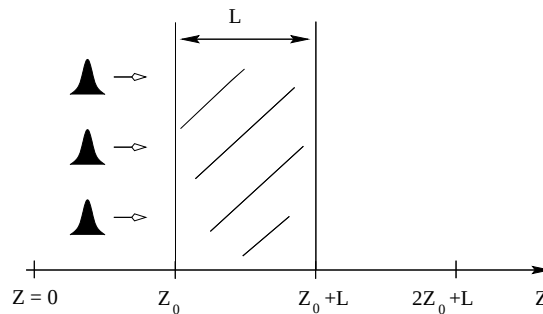


FIG. D.1 – *Schéma d'une tranche d'un matériau de largeur L*

seur réelle L pour lequel nous définissons un milieu effectif d'épaisseur $d = L + 2z_0$. Les propriétés sont décrites par le coefficient de diffusion D . Dans le cadre de l'approximation de la diffusion, le régime diffusif est décrit par une équation parabolique. Le problème revient donc à déterminer la fonction de Green de l'équation de diffusion :

$$\frac{\partial G}{\partial t} - D \Delta G = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t) \quad (\text{D.1})$$

Les conditions aux limites pour la densité d'énergie sont les suivantes :

$$\begin{aligned} U(z=0) &= 0 \\ U(z=d) &= 0 \end{aligned}$$

La recherche de la fonction de Green de ce problème se fait par la méthode des images. Nous rappelons que la fonction de Green pour un milieu infini est donnée par la relation suivante [Smirnov (1981)] :

$$G(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t) = \frac{H(t)}{\sqrt{(4\pi Dt)^3}} \exp\left(-\frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}{4Dt}\right) \quad (\text{D.2})$$

où $H(t)$ est la fonction de Heavyside. Si le milieu présente de l'absorption, le facteur $\exp(-\kappa ct)$ sera multiplié à la relation (D.2).

La méthode des images consiste à placer virtuellement une sources s_1 au point z' . Les conditions aux limites nous oblige à rajouter une autre source s_2 de charge contraire à s_1 et placée à l'opposé par rapport aux deux faces du slab, et ainsi de suite. Cela nous permet d'écrire sans trop de difficulté la relation suivante :

$$G(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t) = \frac{H(t)}{\sqrt{(4\pi Dt)^3}} \exp\left(-\frac{R^2}{4Dt}\right) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{(z - 2nd - z')^2}{4Dt}\right) - \exp\left(-\frac{(z - 2nd + z')^2}{4Dt}\right)$$

où $R^2 = (x - x')^2 + (y - y')^2$. Nous pouvons réécrire la somme en utilisant la règle de sommation de Poisson [Morse et Feshbach (1983), Tome 1, p.467] :

$$G(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t) = \frac{H(t)}{4\pi Dtd} \exp\left(-\frac{R^2}{4Dt}\right) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sin\left(\frac{\pi n z'}{d}\right) \sin\left(\frac{\pi n z}{d}\right) \exp\left(-\frac{\pi^2 n^2 Dt}{d^2}\right) \quad (\text{D.3})$$

Le calcul du flux transmis à travers un slab en éclairant celui-ci par un point source que l'on place au point $(x', y', z') = (0, 0, z_0)$ est donné dans la référence suivante [Lax, Nayaranamurti, et Fulton (1988)]. Le flux transmis est calculé à partir de la relation $q_z = -D\partial U/\partial z$ au point $z = L + Z_0$.

Dans notre cas, nous devons calculer le flux transmis à travers un slab lorsque nous éclairons par une onde plane. L'intégrale sur les variables x' et y' de la fonction de Green est évaluée et vaut :

$$G(z - z', t) = \frac{H(t)}{d} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \sin\left(\frac{\pi n z'}{d}\right) \sin\left(\frac{\pi n z}{d}\right) \exp\left(-\frac{\pi^2 n^2 Dt}{d^2}\right) \quad (\text{D.4})$$

C'est la solution de l'équation (D.1) pour un slab. Finalement, le flux transmis :

$$q_z = -D \frac{\partial U}{\partial z} \quad (\text{D.5})$$

est explicitement évalué par la relation précédente et vaut :

$$q_z = \frac{H(t)D}{d} \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{n\pi}{d} \sin\left(\frac{n\pi L}{d}\right) \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 Dt}{d^2}\right)$$

Annexe E

Valeurs et vecteurs propres de $\mathcal{M}$

Nous montrons dans cette annexe que les valeurs propres de la matrice $\mathcal{M}$ de dimension $2n$ qui s'écrit de la manière suivante :

$$\mathcal{M} = \begin{pmatrix} \mathbf{M}^+ & \mathbf{M}^- \\ -\mathbf{M}^- & -\mathbf{M}^+ \end{pmatrix}$$

possède un spectre de valeurs propres qui est symétrique par rapport à zéro. Autrement dit les valeurs propres vont par paires.

Le spectre de la matrice $\mathcal{M}$ se détermine en calculant l'ensemble des racines du polynôme caractéristique $P(k)$:

$$P(k) = \det(\mathcal{M} - k\mathcal{I}) = 0$$

où les quantités k et $\mathcal{I}$ sont respectivement la valeur propre et la matrice identité. Supposons que k_i est une valeur propre de la matrice $\mathcal{M}$ donc elle vérifie la relation suivante :

$$\begin{aligned} P(k_i) &= \det(\mathcal{M} - k_i\mathcal{I}) \\ &= \det(\mathbf{M}^+ - k_i) \det(-\mathbf{M}^+ - k_i) - \det(\mathbf{M}^-) \det(-\mathbf{M}^-) \end{aligned} \quad (\text{E.1})$$

Vérifions que la quantité $-k_i$ est également une valeur propre de la matrice $\mathcal{M}$. Celle valeur est une solution du polynôme caractéristique.

$$\begin{aligned} P(-k_i) &= \det(\mathcal{M} + k_i\mathcal{I}) \\ &= \det(\mathbf{M}^+ + k_i) \det(-\mathbf{M}^+ + k_i) - \det(\mathbf{M}^-) \det(-\mathbf{M}^-) \\ &= \det(\mathbf{M}^+ + k_i)(-)^n \det(\mathbf{M}^+ - k_i) - \det(\mathbf{M}^-) \det(-\mathbf{M}^-) \\ &= \det(-\mathbf{M}^+ - k_i) \det(\mathbf{M}^+ - k_i) - \det(\mathbf{M}^-) \det(-\mathbf{M}^-) \\ &= P(k_i) = 0 \end{aligned} \quad (\text{E.2})$$

Ainsi nous avons montré que si k_i est valeur propre de la matrice $\mathcal{M}$ alors la quantité $-k_i$ est également valeur propre. Le problème revient à calculer n valeurs propres au lieu des $2n$ valeurs propres.

Annexe F

Calcul du moment d'ordre 1 de la fonction de phase

Nous devons calculer l'intégrale suivante :

$$\int_{-1}^{+1} \mu p(\mu', \mu) d\mu \quad (\text{F.1})$$

où $p(\mu', \mu)$ est la fonction de phase intégrée sur l'angle azimutal :

$$p(\mu', \mu) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} p(\cos \Theta) d\phi \quad (\text{F.2})$$

Pour cela, nous partons du développement de la fonction de phase sur les polynômes de Legendre :

$$p(\cos \Theta) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n P_n(\cos \Theta) \quad (\text{F.3})$$

Si l'on utilise la normalisation de la fonction de phase suivante :

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} p_\nu(\mathbf{u}', \mathbf{u}) d\Omega' = 1$$

alors les premiers coefficients du développement (Éq. (F.3)) valent :

$$a_0 = 1 \quad (\text{F.4})$$

$$a_1 = 3g \quad (\text{F.5})$$

Le théorème d'addition des harmoniques sphériques [Jackson (2001)] nous permet d'expliciter le polynôme de Legendre comme suit :

$$P_n(\cos \Theta) = P_n(\mu)P_n(\mu') + 2 \sum_{m=1}^n \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(\mu)P_n^m(\mu') \cos(\phi - \phi') \quad (\text{F.6})$$

où P_n^m sont les fonctions de Legendre associées.

En injectant la relation (F.6) dans l'équation (F.3) et ensuite en calculant l'intégrale de la relation (F.2), nous obtenons le développement de $p(\mu', \mu)$ sur les polynômes de Legendre :

$$p(\mu', \mu) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n P_n(\mu) P_n(\mu') \quad (\text{F.7})$$

Ainsi l'intégrale à calculer devient :

$$\begin{aligned} \int_{-1}^{+1} \mu p(\mu', \mu) d\mu &= \sum_{n=0}^{\infty} a_n P_n(\mu') \int_{-1}^{+1} \mu P_n(\mu) d\mu \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} a_n P_n(\mu') \int_{-1}^{+1} \mu P_n(\mu) P_0(\mu) d\mu \end{aligned}$$

où nous avons introduit $P_0(\mu) = 1$ à l'intérieur de l'intégrale. L'orthogonalité des polynôme de Legendre permet de déterminer la valeur de cette intégrale. Elle vaut zéro pour tout entier n sauf dans le cas où $n = 1$.

$$\begin{aligned} \int_{-1}^{+1} \mu p(\mu, \mu') d\mu &= a_1 P_1(\mu') \int_{-1}^{+1} \mu P_1(\mu) P_0(\mu) d\mu \\ &= a_1 \mu' \int_{-1}^{+1} \mu \mu d\mu \\ &= a_1 \mu' \frac{2}{3} \end{aligned}$$

Finalement, La valeur l'intégrale (Éq. F.1) vaut :

$$\int_{-1}^{+1} \mu p(\mu', \mu) d\mu = 2g\mu'$$

Annexe G

Calcul de la densité de probabilité $P(n, s)$

G.1 La distribution de Poisson

Nous voulons calculer la densité de probabilité $P(n, s)$ d'avoir n événements de diffusion sur un chemin de longueur s fixé, parcouru par les photons dans le milieu diffusant. Nous montrons dans cette annexe que ce processus est décrit par une distribution de Poisson.

En effet ce processus qui est discret possède les propriétés [Goodman (1985)] suivantes :

- *le processus est sans mémoire* : autrement dit, les occurrences de ces événements sont indépendantes les une des autres. Le nombre d'événements de diffusion subi par les photons qui ont parcouru un chemin de longueur s n'influe en rien sur le nombre d'événements de diffusion subi par les photons qui ont parcouru un chemin de longueur $> s$.

- *le processus est statistiquement homogène* : c'est-à-dire que l'accroissement $P(n, s + \Delta s) - P(n, s)$ ne dépend que de Δs et pas de s .

- *événement rare* :

- La probabilité d'avoir un seul événement de diffusion dans l'intervalle Δs est proportionnelle justement à Δs .

$$P(1, s, s + \Delta s) = \lambda \Delta s \quad (\text{G.1})$$

- La probabilité d'observer plus d'un événement dans l'intervalle Δs tend vers 0 lorsque Δs tend également vers 0.

$$P(0, s, s + \Delta s) = 1 - \lambda \Delta s \quad (\text{G.2})$$

En conclusion, durant l'intervalle Δs , il peut y avoir 0 ou 1 événement de diffusion. Ceci peut être écrit par la relation suivante :

$$P(1, s, s + \Delta s) + P(0, s, s + \Delta s) = 1 \quad (\text{G.3})$$

On cherche à déterminer la probabilité d'avoir n événements de diffusion dans l'intervalle $[s, s + \sigma + \Delta s]$. Si Δs est très petit, alors il y aura 0 ou 1 événement de diffusion dans l'intervalle suivant : $[s + \sigma, s + \sigma + \Delta s]$. Au total, nous obtenons :

$$P(n, s, s + \sigma + \Delta s) = P(n, s, s + \sigma) P(0, s + \sigma, s + \sigma + \Delta s) \\ + P(n - 1, s, s + \sigma) P(1, s + \sigma, s + \sigma + \Delta s)$$

En utilisant les relations (G.1) et (G.2), nous avons :

$$P(n, s, s + \sigma + \Delta s) = P(n, s, s + \sigma)(1 - \lambda \Delta s) + P(n - 1, s, s + \sigma) \lambda \Delta s \quad (\text{G.4})$$

En divisant par Δs et faisant tendre cette valeur vers 0, nous obtenons l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dP(n, s, s + \sigma)}{ds} = \lambda [P(n - 1, s, s + \sigma) - P(n, s, s + \sigma)] \quad (\text{G.5})$$

avec la condition initiale :

$$P(0, s, s) = 1 \quad (\text{G.6})$$

La résolution se fait par récurrence. Ainsi la densité de probabilité recherchée vaut :

$$P(n, s) = \frac{(\lambda s)^n}{n!} e^{-\lambda s} \quad (\text{G.7})$$

qui est une distribution de Poisson de paramètre λs . La moyenne de cette distribution est donnée directement par :

$$E[P(n, s)] = \lambda s$$

Dans notre cas précis, le nombre moyen d'événements de diffusion pour un photon qui parcourt un chemin de longueur s dans un milieu diffusant vaut en moyenne s/l_{sca} . Par conséquent le paramètre $\lambda = 1/l_{sca}$. Ce qui donne finalement :

$$P(n, s) = \frac{(s/l_{sca})^n}{n!} e^{-s/l_{sca}}$$

G.2 Convergence de la loi de Poisson vers la loi de Gauss

Il est possible de montrer [Goodman (1985)] que si une variable aléatoire x suit une loi de Poisson P caractérisée par la valeur λ alors la distribution de Poisson réduite $\frac{P-\lambda}{\sqrt{\lambda}}$ tend vers une distribution de Gauss de moyenne = 0 et d'écart-type = 1.

$$\frac{P_\lambda - \lambda}{\sqrt{\lambda}} \rightarrow_{\lambda \rightarrow \infty} N(0, 1) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right)$$

Références

- Akkermans E., Wolf P. E., et Maynard R. (1986). Coherent Backscattering of Light by Disordered Media: Analysis of the Peak Line Shape. *Phys. Rev. Lett.* 56, 1471–1474.
- Anderson P. W. (1958). Absence of Diffusion in Certain Random Lattices. *Phys. Rev.* 109, 1492–1505.
- Apresyan L. A. et Kravtsov Y. A. (1996). *Radiation Transfer: Statistical and Wave Aspects*. Gordon and Breach Publishers.
- Aronson R. et Corngold N. (1999, 5). Photon diffusion coefficient in an absorbing medium. *J. Opt. Soc. Am. A* 16(5), 1066.
- Barabanenkov Y. N. et Finkel'berg V. M. (1967). Radiation transport equation for correlated scatterers. *Zh. Eksp. Teo Fiz* 53, 978.
- Bartelt H., Brenner K.-H., et Lohmann A. (1980, 1). The Wigner distribution function and its optical production. *Opt. Comm.* 32(1), 32.
- Bassani M., Martelli F., et Zaccanti G. (1997, 6). Independence of the diffusion coefficient from absorption: experimental and numerical evidence. *Opt. Lett.* 22(12), 853.
- Berne B. J. et Pecora R. (2000). *Dynamic Light Scattering, with applications to Chemistry, Biology and Physics*. Dover Publications, inc.
- Bizheva K. K., Siegel A. M., et Boas D. A. (1998, 12). Path-length-resolved dynamic light scattering in highly scattering random media: The transition to diffusing wave spectroscopy. *Phys. Rev. E* 58(6), 7664.
- Bloomfield V. A. et Lim T. K. (1978). Quasi-elastic light scattering. *Meth. Enzymology XLVIII*, 415–494.
- Boas D. A., Bizheva K. K., et Siegel A. M. (1998, 3). Using dynamic low-coherence inteferometry to image Brownian motion within highly scattering media. *Opt. Lett.* 23(5), 319.
- Bohren C. F. et Huffman D. R. (1983). *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley.
- Born M. et Wolf E. (1999). *Principles of Optics* (7ème ed.). Cambridge University Press.

- Bowden R. et Williams C. (1964, 11). Solutions of the initial-value transport problem for monoenergetic neutrons in slab geometry. *Journal of Mathematical Physics* 5(11), 1527.
- Bussac J. et Reuss P. (1986). *Traité de neutronique. Troisième cycle*. Hermann.
- Case K. M. et Zweifel P. F. (1967). *Linear Transport Theory*. Addison-Wiley, Reading, Massachusetts, 1967.
- Chandrasekhar S. (1960). *Radiative Transfer*. New-York: Dover.
- Chen G. (1999). Phonon Wave Heat Conduction in Thin Films and Superlattices. *J. Heat Transfer* 121, 945.
- Chen G. (2001, 3). Ballistic-Diffusive heat-conduction equations. *Phys. Rev. Lett.* 86(11), 2297.
- Das B., Yoo K., et R.R. A. (1993, 7). Ultrafast time-gated imaging in thick tissues: a step toward optical mammography. *Opt. Lett.* 18(13), 1092.
- Démidovitch B. et Maron I. (1979). *Eléments de calcul numérique*. Mir Moscou.
- Durant S. (2003). *Propagation de la lumière en milieu aléatoire. Rôle de l'absorption, de la diffusion dépendante et du couplage surface-volume*. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale Paris.
- Durduran T., Yodh A. G., Chance B., et Boas D. A. (1997, 12). Does the photon-diffusion coefficient depend on absorption? *J. Opt. Soc. Am.* 14(12), 3358.
- Durian D. et Rudnick J. (1997, 1). Photon migration at short times and distances and in cases of strong absorption. *J. Opt. Soc. Am.* 14(1), 235.
- Durian D. J. (1994). Influence of boundary reflection and refraction on diffusive photon transport. *Phys. Rev. E* 50, 857–866.
- Durian D. J. (1998). The diffusion coefficient depends on absorption. *Opt. Lett.* 23, 1502–1504.
- Elaloufi R., Carminati R., et Greffet J.-J. (2002). Time-dependent transport through scattering media: from radiative transfer to diffusion. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt* 4, S103–S108.
- Elaloufi R., Carminati R., et Greffet J.-J. (2003, 4). Definition of the diffusion coefficient in scattering and absorbing media. *J. Opt. Soc. Am. A* 20(4).
- Frisch U. (1966). La propagation des ondes en milieu aléatoire et les équation stochastiques. *Ann. Astrophys* 29, 645.
- Frisch U. (1967). La propagation des ondes en milieu aléatoire et les équation stochastiques. *Ann. Astrophys* 30, 565–601.
- Furutsu K. et Yamada Y. (1994). Diffusion approximation for a dissipative random medium and the applications. *Phys. Rev. E* (50), 3634–3640.
- Gandjbakhche A. et Weiss G. (1995). Random walk and diffusion-like models of photon migration in turbid media. *Progress in Optics XXXIV*, 333.

- Gao F., Zhao H., et Yamada Y. (2002, 2). Improvement of image quality in diffuse optical tomography by use of full time-resolved data. *Appl. Opt.* 41(4), 778.
- Gayen S. et Alfano R. (1996, 3). Emerging optical biomedical imaging techniques. *Opt. Photonics News* 7, 17.
- Goodman J. W. (1985). *Statistical Optics*. Wiley.
- Graaff R. et Ten Bosch J. (2000). Diffusion coefficient in photon diffusion theory. *Opt. Lett.* 25(1), 43.
- Hespel L. (1999). *Etude expérimentale et numérique de la diffusion multiple du transfert radiatif dans les milieux diffusants. Détermination expérimentale des propriétés radiatives aux fort taux de charge*. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale Paris.
- Ishimaru A. (1978). *Wave Propagation and Scattering in Random Media, Single Scattering and Transport Theory*, Volume 1. Academic Press.
- Ishimaru A. et Kuga Y. (1982). Attenuation constant of a coherent field in a dense distribution of particles. *J. Opt. Soc. Am* 72, 1317–1320.
- Jackson J. D. (2001). *électrodynamique classique*. Paris: Dunod.
- Kim A. et Ishimaru A. (1998, 8). Optical diffusion of continuous-waves, pulsed, and density waves in scattering media and comparisons with radiative transfer. *Appl. Opt.* 37(22), 5313.
- Kissilev, V. B. R. L. et Perona G. (1994). An application of the finite element method to the solution of the radiative transfer equation. *jqsrt* 51(4), 603–614.
- Kop R., de Vries P., Sprik R., et Lagendijk A. (1997, 12). Observation of anomalous transport of strongly multiple scattered light in thin disordered slabs. *Phys. Rev. Lett.* 79(22), 4369.
- Kumar S., Majumdar A., et Tien C. (1990). The differential-discrete ordinate method for solutions of the equation of radiative transfer. *J. Heat Transfer* 112, 424–429.
- Lagendijk A. et van Tiggelen B. A. (1996). Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.* 270, 143.
- Lax M., Nayaranamurti V., et Fulton R. (1988). Classical diffuse photon transport in a slab. In N.-Y. plenum (Ed.), *Laser Optics Condensed Matter Proceedings Third USA USSR Symposium*, Volume 3, pp. 229–235.
- Liu F., Yoo K., et Alfano R. (1994, 5). Transmitted photon intensity through biological tissues within time windows. *Opt. Lett.* 19(10), 740.
- Majumdar A. (1993). Microscale Heat Conduction in Dielectric Thin Film. *J. Heat Transfer* 115, 7.
- Mandel L. et Wolf E. (1995). *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press.
- Mandelis A. (2000, 8). Diffusion waves and their uses. *Phys. Today* 53, 29.

- Marchand E. W. et Wolf E. (1974). Walther's definition of generalized radiance. *J. Opt. Soc. Am.* 64, 1273–1274.
- Maret G. et Wolf P. E. (1987). Multiple light scattering from disordered media. The effect of Brownian motion of scatterers. *Zeitschrift fur Physik B* 65, 409–413.
- Morse P. et Feshbach H. (1983). *Methods of Theoretical Physics*. Mc Graw Hill.
- Ogilvy J. (1991). *Theory of wave scattering from random rough surfaces*. Adam Hilger.
- Pine D. J., Weitz D. A., Chaikin P. M., et Herbolzheimer E. (1988, 3). Diffusing-wave spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.* 60(12), 1134.
- Reif F. (1972). *Physique Statistique, Berkeley: cours de physique*, Volume 5. McGraw-Hill.
- Roux L. (1996). *Etude Numérique de la diffusion multiple dans des milieux aléatoires. Modèles de transfert radiatif et électromagnétique*. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale Paris.
- Ryzhik L., Papanicolaou G., et Keller J. B. (1996). Transport equations for elastic and other waves in random media. *Wave Motion* 24, 327.
- Schuster A. (1905). Radiation through a foggy atmosphere. *J. Astrophys.* 21, 1.
- Schwarzschild K. (1906). *Mathematisch-physikalische Klasse*, 41.
- Sebbah P. (2001). *Waves and Imaging through Complex Media*. Kluwer Academic.
- Sheng P. (1995). *Introduction of Wave Scattering, Localization and Mesoscopic Phenomena*. Academic, San Diego.
- Smirnov V. (1981). *Cours de Mathématiques Supérieures, 5 volumes*. Mir Moscou.
- Thomas G. E. et Stamnes K. (1999). *Radiative Transfer in the Atmosphere and Ocean*. Cambridge University Press.
- Tien C. et Chen G. (1994). Challenges in Microscale Conductive and Radiative Heat Transfer. *J. Heat Transfer* 116, 799–807.
- Tsang L. et Kong J. A. (2000). *Scattering of Electromagnetic Waves: Advanced Topics*. Wiley.
- Tsang L., Kong J. A., et Ding K.-H. (2000). *Scattering of Electromagnetic Waves: Theories and Applications*. Wiley.
- Tsang L., Mandt C., et Ding K. (1992). Monte Carlo simulations of the extinction rate of dense media with randomly distributed dielectric spheres based on solution of Maxwell's equations. *Optics letters* 17, 314–316.
- Tualle J.-M. (1996). *Réflectance résolue dans le temps et dans l'espace appliquée à l'étude des propriétés optiques de milieux diffusants*. Thèse de Doctorat, Université Paris-Nord.
- van de Hulst H. C. (1981). *Light Scattering by Small Particles*. Dover.
- Ventsel H. (1973). *Théorie des probabilité*. Mir Moscou.

- Walther A. (1968). Radiometry and coherence. *J. Opt. Soc. Am.* 58, 1256–1259.
- Walther A. (1973). Radiometry and coherence. *J. Opt. Soc. Am.* 63, 1622–1623.
- Wang L., Ho P. P., Liu C., Zhang G., et Alfano R. R. (1991). Ballistic 2-D imaging through scattering wall using an ultrafast Kerr gate. *Science* 253, 769–771.
- Wax A., Yang C., Dasari R., et Feld M. (2001, 8). Path-length-resolved dynamic light scattering: modeling the transition from single to diffusive scattering. *Appl. Opt.* 40(24), 4222.
- Wiersma D. S., van Albada M. P., van Tiggelen B. A., et Lagendijk A. (1995). Experimental Evidence for Recurrent Multiple Scattering Events of Light in Disordered Media. *Phys. Rev. Lett.* 74, 4193–4196.
- Wolf E. (1978). Coherence and radiometry. *J. Opt. Soc. Am.* 68, 6–17.
- Wolf P. E. et Maret G. (1985). Weak Localization and Coherent Backscattering of Photons in Disordered Media. *Phys. Rev. Lett.* 55, 2696–2699.
- Yodh A. et Chance B. (1995, 3). Spectroscopy and imaging with diffusing light. *Phys. Today* 48, 34.
- Yoo K., Liu F., et Alfano R. (1990, 5). When does the diffusion approximation fail to describe photon transport in random media? *Phys. Rev. Lett.* 64(22), 2647.
- Zhu J., Pine D., et Weitz D. (1991, 9). Internal reflection of diffuse light in random media. *Phys. Rev. A* 44(6), 3948.