Propagation de la lumière en milieu aléatoire. Rôle de l'absorption, de la diffusion dépendante et du couplage surface-volume

Stéphane Durant

▶ **To cite this version:**

Stéphane Durant. Propagation de la lumière en milieu aléatoire. Rôle de l'absorption, de la diffusion dépendante et du couplage surface-volume. Autre. Ecole Centrale Paris, 2003. Français. NNT : . tel-00004154

HAL Id: tel-00004154
https://theses.hal.science/tel-00004154

Submitted on 13 Jan 2004

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.

CENTRALE
PARIS

Ecole Centrale Paris

THESE

présentée par

Stéphane Durant

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 de la lumière en milieu aléatoire. Rôle de l'absorption, de la diffusion dépendante et du couplage surface-volume.

Soutenue le 24 février 2003

Composition du jury :

MM.	Calvo-Perez	O.	
	Carminati	R.	
	Greffet	J.-J.	
	Lafait	J.	
	Sáenz	J.-J.	Rapporteur
Mme.	Sentenac	A.	Rapporteur
MM.	Vukadinovic	N.	

Ecole Centrale des Arts et Manufactures
Grand Etablissement sous tutelle
du Ministère de l'Education Nationale
Grande Voie des Vignes
92295 CHATENAY MALABRY Cedex
Tél. : 33 (1) 41 13 10 00 (standard)
Télex : 634 991 F EC PARIS

Laboratoire d'Energétique Moléculaire
et Macroscopique, Combustion (E.M2.C.)
UPR 288, CNRS et Ecole Centrale Paris
Tél. : 33 (1) 41 13 10 31
Télécopie : 33 (1) 47 02 80 35

2003 -

A mon grand père Adriaan Punt.

A mes parents Sabine et Armand Durant.

A ma soeur Sylviane, ses enfants Léa et Yoann et son mari Lionel Bargain.

Ce présent document est le fruit d'un travail de trois années. J'ai consacré environ la moitié de mon temps au sein du service d'ElectroMagnétisme et InfraRouge (EMIR) de la société Dassault Aviation dirigé par Gérard Leflour et l'autre moitié au laboratoire d'Energétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion (EM2C) de l'Ecole Centrale Paris (ECP) et du CNRS dirigé par Nasser Darabiha. Tous mes remerciements pour leur accueil et les moyens qu'ils ont pu mettre à ma disposition.

Toute ma gratitude à Bernard Capbern qui m'a présenté il y a presque quatre ans pendant mon service militaire en tant que scientifique du contingent au CEA les principaux acteurs de ce projet : celui qui allait devenir mon directeur de thèse Jean-Jacques Greffet, professeur à l'ECP et mon co-directeur de thèse Nicolas Vukadinovic, ingénieur chez Dassault Aviation. Je voudrais remercier d'une part la direction scientifique de Dassault Aviation qui a accepté de financer cette thèse et d'autre part la direction de l'Ecole Centrale Paris pour m'avoir offert un poste d'assistant.

Je ne saurais exprimer à leurs justes valeurs mes remerciements et mon admiration à Jean-Jacques Greffet, pour ses qualités humaines, scientifiques et pédagogiques, sa mise en confiance, sa disponibilité, son enthousiasme pour la recherche, pour m'avoir transmis sa manière d'aborder un problème. Tout cela a rendu ce travail extrêmement agréable et m'a permis à fur et à mesure du temps d'acquérir de plus en plus d'indépendance.

Je remercie également Nicolas Vukadinovic, pour ses qualités scientifiques, ses encouragements, son écoute et ses conseils et aussi pour m'avoir laissé une grande liberté dans mes choix pour arriver au but recherché.

J'ai une pensée toute particulière pour Olivier Calvo-Perez qui a suivi de très prêt mon travail tout au long de cette thèse avec qui j'ai pu discuter autant que nécessaire de tous les problèmes physiques rencontrés. Je remercie également Hervé Stève pour ses nombreux conseils relatifs à la résolution numérique d'équations. Je voudrais aussi particulièrement remercier Rémi Carminati pour son enthousiasme inaltérable et sa façon de partager son savoir et ses interrogations.

Toute ma reconnaissance à Jacques Lafait pour avoir accepté de présider le jury, à Juan-José Sàenz et Anne Sentenac pour avoir accepté le très lourd travail de rapporteur.

Un grand merci à Thomas Michel et son père Jean-Claude pour la relecture d'une bonne partie du manuscrit et pour bien d'autres raisons encore.

Mille mercis à Marjorie Thomas, Rachid Elaloufi et Thierry Schuller qui ont fortement influencé mon état d'esprit.

En plus de ceux que j'ai déjà cité, je voudrais remercier ceux avec qui j'ai le plus échangé au quotidien ou ponctuellement : Alix Lemaire, Antoine Soubret, Annie Tarrats, Bich Ngoc Tran, Cédric Rey, Christine Deron, Christophe Calnibalosky, Estelle Lacona, Fabien Defransure, Ferry Tap, François Marquier, Geneviève Uny, Jean-Baptiste Thibaud, Jean-Marc Quadri, Jean-Philippe Mulet, Karine Cantele, Karl Joulain, Laurent Roux, Marie-Pierre Ben, Marine Laroche, Marta De La Cruz, Michaël Lecanu, Nathalie Dioc, Paul Soudais, Philippe Mareschal, Pierre-Marie Jacquart, Rémi Lévi Di Léon, Sébastian Voltz, Stéphane Jay, Stéphane Mainguy, Véronique Tirel, Wilfried Wintrebert.

En dehors du travail, il y a ma famille à qui je dois tout, et mes amis que j'aime tant : Alix, Anabela, Capucine, Eloixa, Inti, Jean, Karim, Maddalen, Marie, Marine, Marjorie, Mickaël, Nicolas, Nicolas, Olivier, Philippe, Rachid, Raphaël, Stéphane, Valérie, Thierry, Thomas, Xavier.

Je voudrais finir par un clin d'œil bien prononcé aux Ancriers, assoiffés de liberté et d'aventure.

Honte à moi si j'ai oublié l'Evidence.

Table des matières

Introduction **1**

I Théorie phénoménologique du transport de la lumière en milieu aléatoire **7**
I.1 Introduction . . . 7
I.2 Théorie du transfert radiatif phénoménologique . . . 7
I.2.1 Flux directionnel et Luminance . . . 7
I.2.2 Libre parcours moyen et fonction de phase . . . 8
I.2.3 Equation de Transfert radiatif (ETR) dans un milieu diffusant . . . 10
I.3 Paramètres de l'ETR en régime de diffusion indépendante . . . 13
I.3.1 Diffusion par une particule de forme arbitraire . . . 13
I.3.2 Cas d'une sphère . . . 16
I.3.3 Diffusion par une collection de petites particules et régime d'homogénéisation . . . 16
I.3.4 Validité de l'approximation de la diffusion indépendante . . . 17
I.4 Validité *a priori* de l'ETR . . . 18
I.4.1 Taille de l'élément de volume mésoscopique . . . 18
I.4.2 L'ETR: un modèle d'ondes incohérentes . . . 19
I.4.3 Localisation . . . 19
I.5 Propriétés radiatives d'une couche diffusante et absorbante . . . 21
I.5.1 Exemple d'une couche diffusante en volume et en surface: cas d'une peinture . . . 21
I.5.2 Bilan d'énergie cohérent et incohérent . . . 22
I.5.3 Facteur d'absorption et d'émissivité directionnelles . . . 23
I.6 conclusion . . . 24

II Préambule à la théorie de la diffusion multiple d'ondes électromagnétiques **25**
II.1 Introduction . . . 25
II.2 Théorie statistique de la propagation d'ondes . . . 26
II.2.1 Intensités cohérente et incohérente . . . 26
II.2.2 Densité de probabilité . . . 27
II.3 Équation intégrale pour le champ électrique . . . 27
II.3.1 Les sources de diffusion . . . 27
II.3.2 Construction d'une équation intégrale . . . 28
II.3.3 Notation opératorielle . . . 29
II.3.4 Cas d'un milieu aléatoire et choix du milieu de référence . . . 30
II.4 Milieu effectif pour le champ moyen . . . 30
II.4.1 Une équation fermée pour le champ moyen: l'équation de Dyson . . . 30
II.4.2 Notion d'indice effectif . . . 31
II.4.3 Lien entre le coefficient d'extinction et l'indice effectif . . . 33
II.4.4 Remarques sur la notion de milieu non-local . . . 33
II.5 Cas des diffuseurs aléatoirement disposés dans un milieu hôte . . . 35
II.5.1 Introduction . . . 35
II.5.2 Cas d'un seul diffuseur: définition de l'opérateur $\mathbf{t}$ . . . 35
II.5.3 Cas de N diffuseurs: définition de l'opérateur $\mathbf{T}$ . . . 37
II.5.4 Développement en essaim de la densité de probabilité . . . 38
II.5.5 Moyenne de l'opérateur de diffusion $\mathbf{T}$: écriture développée . . . 40
II.5.6 Expression de $\langle \mathbf{T} \rangle$ à l'aide de diagrammes . . . 42
II.5.7 L'opérateur de masse pour un ensemble de diffuseurs identiques aléatoirement disposés dans l'espace . . . 43

II.5.8 Approximations de l'opérateur de masse et du coefficient d'extinction 44
II.6 Introduction à la radiométrie généralisée 45
II.6.1 Luminance et cohérence d'un champ électromagnétique 45
II.6.2 L'équation de Bethe-Salpeter 48
II.6.3 Transition de Bethe-Salpeter vers une Equation de Transfert Radiatif 49
II.6.4 Conclusion 51
II.7 Conclusions 51

III Modélisation du coefficient d'extinction en milieu absorbant: application de la théorie de la diffusion multiple 53
III.1 Introduction 53
III.2 La problématique 54
III.2.1 Cas du liant non-absorbant 54
III.2.2 Théorie de Mie pour une sphère dans un milieu absorbant 55
III.3 Différentes formulations 57
III.3.1 Premiers travaux 57
III.3.2 Calcul des flux à la surface d'un diffuseur sphérique en milieu absorbant 58
III.3.3 Plusieurs définitions de la section efficace de l'extinction en milieu absorbant 59
III.4 Coefficient d'extinction: modèles phénoménologiques 61
III.4.1 Approche de Kuga 61
III.4.2 Approche de Fardella 64
III.4.3 Approche de Yang *et al.* 66
III.5 Coefficient d'extinction: théorie de champ 66
III.5.1 Relation entre l'opérateur de diffusion $\mathbf{t}$ et la matrice de diffusion S de Mie pour un diffuseur sphérique 67
III.5.2 Diffusion indépendante en milieu absorbant: approximation de Foldy-Twersky généralisée 70
III.5.3 Diffusion dépendante en milieu absorbant: modèle de Keller généralisé 72
III.6 Comparaison des modèles d'extinctions en milieu absorbant 76
III.6.1 Comparaison des modèles de Kuga et Foldy-Twersky généralisé en milieu absorbant, en régime de diffusion indépendante 76
III.6.2 Régime de diffusion dépendante 77
III.7 Conclusion 81

IV Coefficient d'extinction en milieu absorbant: simulation numérique exacte du problème électromagnétique et modélisation 83
IV.1 Introduction 83
IV.1.1 Objectifs 83
IV.1.2 Étude d'un milieu diffusant plans parallèles 83
IV.2 Solution par une méthode électromagnétique exacte 85
IV.2.1 La méthode exacte pour une couche diffusante 2D-1D périodique 85
IV.2.2 Procédure d'identification de l'indice effectif et du coefficient d'extinction 90
IV.3 Résultats numériques et modèles 96
IV.3.1 Introduction 96
IV.3.2 Etude préliminaire: effets cohérents induits par une fine couche diffusante 98
IV.3.3 Extinction en régime de diffusion indépendante en milieu absorbant: comparaison des modèles de Kuga et de Foldy-Twersky généralisé. 100
IV.3.4 Couplage extinction/absorption du liant en régime de diffusion dépendante 100
IV.4 Conclusion 107

V Coefficients de diffusion et d'absorption d'un milieu absorbant contenant des diffuseurs non-absorbants 109
V.1 Introduction 109
V.2 Définition des quantités radiométriques pour un système 2D 111
V.3 Le modèle des transferts Radiatifs 2D 113
V.3.1 L'équation de transfert radiatif 2D 113
V.3.2 Facteurs de réflexion et de transmission cohérents 114
V.3.3 ETR pour la luminance diffuse 115

V.3.4 Méthode de résolution de l'ETR . . . 115
V.4 Méthode exacte: résolution des équations de Maxwell . . . 116
V.4.1 Système considéré . . . 116
V.4.2 La méthode des moments . . . 116
V.4.3 Quantités radiométriques à partir des statistiques des champs . . . 117
V.5 Etude des coefficients de diffusion et d'absorption . . . 117
V.5.1 Systèmes étudiés et principe de l'étude . . . 117
V.5.2 Cas de particules faiblement contrastées par rapport au liant . . . 118
V.5.3 Cas de particules fortement contrastées par rapport au liant . . . 121
V.5.4 Conclusion . . . 123
V.6 Conclusions . . . 123

VI Modélisation du coefficient d'extinction d'un milieu dense contenant de fortes fractions volumiques de particules sphériques résonantes 125
VI.1 Introduction . . . 125
VI.1.1 Retour à la théorie de la diffusion multiple d'ondes électromagnétiques . . . 125
VI.1.2 Approximation des diffuseurs corrélés par paires . . . 126
VI.2 Diffusion par une collection de particules . . . 127
VI.2.1 Définition de l'opérateur $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ . . . 127
VI.2.2 Lien entre $\langle \mathbf{t}_2 \rangle$ et $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ . . . 128
VI.2.3 Comment obtenir $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ à partir du résultat de la diffusion d'une paire de particules? 128
VI.2.4 Expression du nombre d'onde effectif et du coefficient d'extinction . . . 130
VI.2.5 Calcul de $V^2 \langle S_2 - 2S_1 \rangle (0)$ . . . 130
VI.3 Diffusion par une paire de particules sphériques . . . 131
VI.3.1 Calcul par la méthode de la matrice de transfert $\mathbf{T}$ . . . 131
VI.3.2 Section efficace d'une paire de diffuseurs sphériques . . . 132
VI.3.3 Lien entre la matrice de transfert et la matrice $\mathbf{S}$ de diffusion vers l'avant pour une paire de particules sphérique . . . 133
VI.4 Perspectives d'utilisation du modèle . . . 134
VI.4.1 Comparaison avec le modèle de Keller . . . 134
VI.4.2 Comparaison avec l'Approximation Quasi-Cristalline (QCA) . . . 134
VI.5 Conclusion . . . 134

VII Couplage incohérent d'une diffusion surface-volume 137
VII.1 Introduction . . . 137
VII.1.1 Système étudié et objectifs . . . 138
VII.1.2 État de l'art . . . 139
VII.2 Modélisation: approche radiative incohérente . . . 140
VII.2.1 Paramètres volumiques . . . 140
VII.2.2 Paramètres surfaciques . . . 141
VII.2.3 Modèles rapides pour la BRDF et la BTDF d'une interface rugueuse . . . 142
VII.2.4 Validité du couplage incohérent surface-volume . . . 143
VII.3 Cas d'une peinture rugueuse . . . 144
VII.4 Couplage et découplage de la diffusion surface-volume . . . 146
VII.4.1 Géométrie de découplage . . . 146
VII.4.2 Mise en évidence d'un couplage incohérent surface-volume pour une interface de fortes pentes moyennes . . . 148
VII.4.3 Exaltation de la diffusion surfacique pour un milieu optiquement plus mince . . . 150
VII.5 Couplage de la diffusion surface-volume pour un milieu absorbant . . . 153
VII.6 Conclusion . . . 154

Conclusion 156

A Fonction et tenseur de Green dans un espace libre: cas 3D et 2D 161
A.1 Définitions et notations . . . 161
A.2 Solution dans l'espace de Fourier . . . 162
A.3 Solution dans l'espace direct . . . 163
A.4 Fonction et tenseur de Green en champ lointain . . . 164

B Calcul analytique de l'opérateur de diffusion double avec et sans corrélations 167
B.1 Calcul de l'opérateur de diffusion double corrélé . . . 167
B.1.1 Cas 3D . . . 167
B.1.2 Cas 2D . . . 170
B.2 Calcul exact de l'opérateur de diffusion double sans corrélation . . . 172

C Théorie de Mie pour un cylindre infini plongé dans un milieu absorbant 175
C.1 Expression des champs rayonnés . . . 175
C.1.1 Cas où le champ est parallèle à la direction d'invariance (Oz) (polarisation s) . . . 176
C.1.2 Cas où le champ est dans le plan d'incidence (polarisation p) . . . 177
C.1.3 Solution asymptotique en champ lointain . . . 178
C.1.4 Une définition possible de la fonction de phase en milieu absorbant . . . 179
C.2 Bilan d'énergie dans un milieu hôte non-absorbant . . . 179
C.3 Flux en milieu absorbant . . . 181
C.3.1 Calcul des flux . . . 182
C.3.2 Remarques . . . 184

D Modèles phénoménologiques de l'extinction en milieu absorbant: comparaison des modèles de Kuga et de Fardella dans le cas 2D 185
D.1 Extinction et diffusion dans un milieu absorbant par le modèle de Kuga . . . 185
D.2 Extinction et diffusion par le modèle de Fardella . . . 187
D.3 Comparaison Fardella-Kuga . . . 187

E Expression de l'extinction en milieu absorbant et diffusant par les modèles de Foldy et Keller pour un système 2D 189
E.1 Identification de l'opérateur $\mathbf{t}$ avec la matrice de diffusion $\mathbf{S}$ . . . 189
E.2 Foldy en milieu absorbant et diffusant 2D . . . 190
E.3 Keller en milieu absorbant et diffusant . . . 191
E.4 Résultats des modèles de Kuga, Foldy et Keller généralisés . . . 192

F Relation entre la luminance et les champs pour un système 2D-1D périodique 195

G Diffusion par une couche diffusante: solution électromagnétique et phénomènes cohérents 199
G.1 Trou de la diffusion simple vers l'avant . . . 199
G.2 Rétrodiffusion cohérente . . . 201

H Résolution de l'ETR pour une couche diffusante avec interfaces rugueuses par la méthode des ordonnées discrètes 203
H.1 E.T.R. pour une couche diffusante . . . 203
H.1.1 Equation de transfert radiatif pour la luminance diffuse . . . 204
H.1.2 Méthode des ordonnées discrètes et solution de l'ETR sous forme vecteurs propres. 205
H.1.3 Forme de la solution générale . . . 206
H.2 Conditions aux limites: écriture pour les ordonnées discrètes . . . 206
H.2.1 Description des processus et écriture mathématique . . . 206
H.2.2 Conditions aux limites pour un ordre de Fourier . . . 208
H.2.3 Discrétisation des directions et des intégrales . . . 210
H.2.4 Écriture du système matriciel . . . 210
H.3 Luminances émergentes et bilan énergétique . . . 211
H.3.1 Les luminances émergentes pour chaque composante de Fourier . . . 212
H.3.2 Bilan énergétique . . . 213

Références 215

Introduction

Couleur et apparence: rôle de la diffusion

La diffusion de la lumière appelée “scattering” en anglais se traduit en français par “dispersion” ou “éparpillement” de la lumière. Une onde est diffusée quand sa direction de propagation est redistribuée. Toute onde, qu'elle soit de nature électromagnétique comme la lumière, acoustique ou encore quantique, diffuse de façon générale quand elle se propage dans un milieu hétérogène. Pour la lumière, un milieu hétérogène est un milieu dont l'indice de réfraction varie dans l'espace. La lumière ne diffuse pas toujours dans un milieu hétérogène. Pour qu'il y ait diffusion, il faut aussi que la taille des objets diffusants ou l'échelle typique de variation de l'indice, ne soit pas trop petite devant la longueur d'onde, car dans ce cas l'efficacité de diffusion tend vers 0 et l'onde se propage en ligne droite comme si le milieu était homogène.

On distingue souvent la diffusion par une surface rugueuse et la diffusion par un volume hétérogène. Un milieu diffusant en volume est par exemple un milieu contenant des objets aléatoirement disposés dans l'espace. Un exemple familier est le brouillard composé de gouttelettes d'eau aléatoirement disposées dans l'air. Les poussières interstellaires, l'atmosphère, les nuages, la mer, la fumée, la peau, les peintures, l'eau sortant du robinet sous pression chargée de microbulles, et bien d'autres milieux encore constituent des exemples de milieux diffusant en volume. Les surfaces des objets qui nous entourent ne sont pas parfaitement planes comme peut l'être un miroir ou toute surface polie. La lumière se réfléchit sur une surface plane en suivant les lois de la réfraction de Snell-Descartes. On parle de réflexion spéculaire. Par conséquent si une source de lumière est localisée (comme une ampoule dans un pièce), seules les faces qui sont orientées dans certaines directions réfléchissent la lumière jusquà nos yeux. Si la taille caractéristique de la rugosité d'une surface est proche de la longueur d'onde, typiquement de l'ordre de $0.5\mu m$ pour la lumière visible, alors la lumière est diffusée par l'interface. Nous voyons les objets qui nous entourent le plus souvent parce qu'ils diffusent la lumière. Toutefois, pour une surface peu rugueuse, une partie de la lumière est réfléchie spéculairement en suivant les lois de la réfraction. C'est elle qui est responsable de la brillance (on voit la source de la lumière pour un angle d'observation particulier), tandis que la lumière diffuse donne un aspect mat aux objets. Par exemple la différence entre une image photographique développée sur un papier mat ou brillant est due à la rugosité de la surface d'impression. La diffusion de la lumière joue donc un rôle important sur l'apparence des objets qui nous entourent.

La couleur des objets s'explique par de nombreux mécanismes. La lumière blanche est composée de l'ensemble du spectre des couleurs visibles du violet au rouge en passant par toutes les couleurs de l'arc en ciel. Supposons qu'un objet soit éclairé par une lumière blanche. Si l'objet apparait bleu, c'est qu'il réfléchit principalement la composante bleue de la lumière blanche. Les autres couleurs ne parviennent pas à nos yeux soit parce qu'elles sont absorbées, soit parce qu'elles sont diffusées (ou se sont propagées) dans une direction différente de nos yeux. L'absorption est liée à la composition (sa pigmentation) de l'objet, tandis que la diffusion est due à la structure géométrique de l'objet. De nombreuses structures ont une couleur apparente qui dépend de l'angle d'observation. Ce phénomène appelé iridescence, peut s'expliquer par le phénomène de diffusion,

mais ce n'est pas le seul mécanisme. La dispersion de la lumière peut en être responsable[1] parce que les différentes composantes de la lumière se propagent dans des directions différentes. Un milieu qui possède une structure périodique de taille comparable à la longueur d'onde diffracte la lumière dans des directions qui dépendent de la couleur de la lumière éclairant l'objet à cause des phénomènes d'interférences. Par exemple, un disque compact est une structure périodique qui décompose la lumière blanche en ces différentes composantes car chaque couleur se propage après réflexion dans une direction différente. Que la diffusion ou la diffraction soit responsable du phénomène d'iridescence, la nature ondulatoire de la lumière est fondamentale pour les expliquer. Le phénomène d'iridescence se retrouve dans la nature. Certains papillons ont des couleurs qui diffèrent selon l'angle d'observation. L'observation microscopique de la structure des ailes de ces papillons explique le phénomène. La lumière est à la fois diffusée et diffractée par des structures hétérogènes et périodiques. L'industrie du textille tente de produire des vêtements de couleurs iridescentes (Berthier et Lafait 1999) qui feront la mode demain.

Nous avons oublié bien d'autres mécanismes à l'origine de la couleur: la fluorescence, la phosphorescence d'origine quantique en sont des exemples. L'origine de la couleur d'un objet peut également être due au rayonnement thermique: un métal change de couleur en fonction de sa température. Au fur et à mesure que la température augmente, il devient rouge puis blanc. C'est aussi le cas du filament d'une ampoule. L'état de surface joue également un rôle important sur le rayonnement d'un corps opaque.

La part de l'absorption par rapport à la diffusion d'un milieu diffusant en volume est très importante pour son aspect. Par exemple, un nuage ou le lait dans le visible, absorbe très peu et diffuse fortement. Ils apparaissent blanc parce que l'efficacité de diffusion dépend peu de la longueur d'onde. L'exemple contraire est celui d'une encre noire pour lequel l'absorption l'emporte sur la diffusion.

Si le milieu diffuse la lumière, c'est que des hétérogénéités de taille comparable à la longueur d'onde sont présentes dans le milieu. Par exemple on peut s'étonner que le mélange du whiskey avec de l'eau soit légèrement absorbant et peu diffusant alors qu'une anisette mélangée à de l'eau diffuse fortement la lumière. Pourtant, ces deux liquides sont d'aspects comparable sans eau. Si l'un diffuse et pas l'autre, c'est que les mélanges sont respectivement homogène et hétérogène.

Un exemple d'un milieu absorbant peu la lumière et dont la diffusion varie fortement avec la longueur d'onde est le ciel. Lorsqu'un milieu contient des hétérogénéités petites devant la longueur d'onde, on peut montrer que l'efficacité de diffusion varie très fortement avec la longueur d'onde. Ce régime de diffusion s'appelle le régime de Rayleigh (1899). Elle est beaucoup plus efficace pour les petites longueurs que pour les grandes. Par conséquent elle est beaucoup plus efficace dans le bleu que dans le rouge. La lumière du soleil qui se propage dans l'atmosphère est diffusée par des petites hétérogéneités. Le ciel apparait bleu, parce que la lumière du soleil diffuse beaucoup plus dans le bleu que dans le rouge. Ce qui diffuse dans le ciel sont d'une part les aérosols et d'autres part les fluctuations d'indice de l'air liées aux fluctuations spatiales (sur des échelles très petites) de la pression de l'air autour de sa valeur d'équilibre (Rayleigh 1871). Ces fluctuation d'origine statistique ne doivent pas être confondues au phénomène de turbulence de l'air qui est responsable du scintillement d'une étoile observée depuis le sol.

Quelques problèmes de recherche et applications

Outre l'intérêt que l'on peut porter à la description de la propagation d'onde en milieu aléatoire, tout apport à sa modélisation est très riche d'applications. Les propriétés optiques et infrarouges de matériaux diffusants intéressent de nombreuses industries. Les crèmes solaires qui contiennent des petites particules de Ti02 ont pour but de diffuser fortement la lumière dans le régime ultraviolet.

1. si l'indice de réfraction dépend par exemple de la longueur d'onde, la lumière blanche peut se décomposer du violet au rouge en passant pour toutes les couleurs de l'arc en ciel

Obtenir les propriétés diffuses d'une peinture chargée en particules est un problème équivalent.

Le problème de l'imagerie à travers un milieu diffusant est très complexe. Peut-on exploiter l'information sur une onde diffuse pour *voir* derrière un milieu diffusantΓ Par exemple la modélisation de la propagation de la lumière dans une atmosphère turbulente est essentielle quand on scrute l'Univers avec un télescope terrestre. La détermination du spectre lumineux émis par une étoile est essentielle pour connaitre la composition de cette étoile. Le problème est que le milieu qui sépare l'étoile du lieu de mesure peut contenir des poussières interstellaires qui diffusent la lumière. Cette diffusion dépend généralement de la longueur d'onde. Il faut par conséquent modéliser le transport de la lumière pour remonter à ce qui est réellement émis par l'étoile. On voudrait aussi par exemple détecter par une technique optique non-invasive des tumeurs cancéreuses du sein, mesurer la circulation sanguine, imager le cerveau. Un problème analogue est la détection micro-ondes des mines anti-personnel enfouies dans le sol. Dans les deux cas l'objet à détecter contraste par rapport au milieu diffusant qui l'entoure. Dans le domaine de la radio et de la détection par satellite dans le domaine des micro-ondes, on peut chercher à évaluer la hauteur moyenne des arbres d'une forêt, l'amplitude de la houle sur la mer, la mesure de la profondeur de la banquise *etc.*

Pour résoudre tous ces problèmes, il est nécessaire de modéliser correctement la propagation de l'onde dans ces milieux diffusant. Il existe différents moyens de décrire le transport d'une onde dans un milieu diffusant.

- Théorie de la diffusion multiple.

  Au niveau le plus fondamental, on peut écrire une équation de propagation d'onde rigoureuse en milieu aléatoire. Il faut connaitre précisément les statistiques du milieu. Pour le cas d'une onde électromagnétique dans le domaine du visible, la variable aléatoire dans l'espace est l'indice du milieu. L'échelle de la description est dite microscopique. Pour une onde quantique décrivant la propagation d'une fonction d'onde, la variable aléatoire est le potentiel dans lequel baigne le champ considéré. On peut écrire des équations qui régissent les statistiques moyennes. Pour le cas d'une onde électromagnétique, il s'agit du champ moyen, de la fonction de corrélation du champ ou encore des corrélations sur les intensités.

- Théorie du transport à l'échelle mésoscopique ou approche radiative.

  Pour le cas où les phénomènes de diffusion sont élastiques (la fréquence de l'onde est conservée), on peut écrire une Equation de Transfert Radiatif (ETR) qui régit les variations spatiales et directionnelles des flux d'énergies dans le milieu. La quantité physique recherchée est la luminance, c'est à dire une quantité de flux passant par une surface dans une direction et en un point de l'espace. Cette théorie est fondamentalement phénoménologique et semble ignorer à première vue l'aspect ondulatoire de la diffusion. L'ETR dépend de paramètres qui contiennent les propriétés de diffusion moyenne d'un volume de taille mésoscopique; c'est-à-dire à une échelle comprise entre la longueur d'onde et la géométrie globale du milieu diffusant. Ces paramètres doivent être modélisée préalablement.

- Théorie du transport à l'échelle macroscopique ou approximation de la diffusion.

  Lorsqu'un milieu diffuse de très nombreuses fois une onde incidente, on peut souvent écrire une équation de diffusion ("diffusion" en anglais qui a un sens différent de "scattering") du type de celle que l'on écrit pour décrire le transport de la chaleur, ou encore pour décrire la diffusion d'une goutte d'encre de chine dans de l'eau. Pour la lumière, l'équation de la diffusion régit la densité d'énergie électromagnétique par unité de volume. Cette équation contient un paramètre nommé coefficient de diffusion qu'il faut aussi évaluer au préalable.

La théorie de la diffusion multiple est surtout utile pour la compréhension des phénomènes ondulatoires qui ne sont pas pris en compte quand on modélise le transport d'une onde par l'ETR. Elle nous apprend aussi comment calculer les paramètres de l'ETR et en donne un cadre

beaucoup plus rigoureux. Les équations de la diffusion ne peuvent être résolues numériquement sans approximations.

Dans de très nombreux systèmes diffusants, l'approche radiative décrit très convenablement le transport de la lumière si les coefficients de l'ETR sont correctement évalués. Si la géometrie est simple comme par exemple pour le cas d'une couche diffusante limité par deux interfaces parrallèles, l'ETR se résout numériquement en des temps très convenables. L'un des points forts de cette approche est que les conditions aux limites pour les luminances s'écrivent sans ambiguité.

Enfin l'équation de diffusion est souvent utilisée dans le domaine de l'imagerie biomédicale pour des problèmes dépendants du temps car c'est l'équation la plus rapide et la plus simple à résoudre dans des géométries complexes. Mais, on ne peut pas résoudre tous les problèmes de diffusion en écrivant une équation de diffusion. Par exemple, les systèmes optiquement minces (faiblement diffusant) ne peuvent être modélisés par cette équation et d'autre part, les conditions aux limites sont approximatives. Le domaine de validité de l'approximation de la diffusion est un sujet actif de recherche (Aronson 1995; Yoo *et al.* 1990; Kop *et al.* 1997). Plusieurs auteurs tentent de définir la taille minimale et les régimes temporels qui permettent son utilisation (Elaloufi, Carminati, et Greffet 2003a). On montre que l'on peut retrouver une équation de diffusion à partir de l'ETR dépendante du temps (Elaloufi, Carminati, et Greffet 2002; Elaloufi 2003). Tout comme le calcul des paramètres de l'ETR, le calcul du coefficient de diffusion est souvent complexe. Aronson et Corngold (1999) et Elaloufi *et al.* (2003b) montrent comment calculer le coefficient de diffusion quand les particules sont absorbantes et que les processus de diffusion élémentaires sont anisotropes.

Certains phénomènes purement ondulatoires comme la localisation faible (Wolf et Maret 1985) (ou rétrodiffusion cohérente) et la localisation forte[2] ne peuvent être pris en compte ni par l'ETR, ni par l'approximation de la diffusion. L'étude des phénomènes de localisation sur lesquels une communauté importante de physiciens travaille depuis plus de trente ans est un défi fondamental avec de nombreuses applications dans le domaine de la physique de la conduction d'électrons dans un solide, et pour tous les phénomènes diffusifs en général. Certains[3] s'intéressent également aux corrélations de speckle de longues portées, en régime diffusif et de localisation.

Les problèmes abordés

Pour étudier la diffusion par une géometrie diffusante telle une peinture contenant des particules aléatoirement disposées et de taille proche de la longueur d'onde, la modélisation de la diffusion de la lumière décrite par l'ETR est la seule approche qui soit adaptée à notre connaissance. L'ETR peut être résolue numériquement en un temps raisonnable. La taille caractéristique de la peinture est telle que le problème électromagnétique est encore insoluble numériquement en un temps raisonnable.

Au chapitre I, nous introduisons la théorie du transport de la lumière modélisée par L'ETR.

Cette approche nécessite le calcul de paramètres du milieu moyen. Ces paramètres sont les coefficients d'extinction et de diffusion et la fonction de phase. Le plus souvent, ces paramètres sont évalués sous une approximation appelée l'approximation de la diffusion indépendante.

Quand le milieu hôte est absorbant comme c'est le cas dans une peinture, une difficulté théorique apparaît pour le calcul de ces paramètres même sous l'approximation de la diffusion indépendante. La notion de section efficace est difficile à interpréter dans un milieu hôte absorbant. De nombreuses études tentent de définir phénoménologiquement les paramètres de l'ETR. Des doutes subsistent quand à leur définition.

2. L'onde diffuse ne se propage plus. Voir Dalichaouch, Armstrong, Schultz, Platzman, et Mc Call (1991);Scheffold, Lenke, Tweer, et Maret (1999);Wiersma, Bartolini, Lagendijk, et Righini (1997); Wiersma, Rivas, Bartolini, Lagendijk, et Righini (1999);Chabanov, Stoytchev, et Genack (1998)

3. Scheffold et Maret (1998);Garcia-Martin et Saenz (2001)

Une autre difficulté importante est le problème des milieux contenant de très fortes fractions volumiques de diffuseurs. L'approximation de la diffusion indépendante n'est plus valable dans ce cas; on parle de diffusion dépendante.

La théorie de la diffusion multiple introduite au chapitre II, donne un moyen formellement rigoureux pour obtenir le coefficient d'extinction en milieu absorbant et peut aussi prendre en compte la diffusion dépendante. Elle ne donne toutefois pas directement de formules explicites. Au chapitre III, nous appliquons la théorie de la diffusion multiple pour calculer une expression du coefficient d'extinction en milieu absorbant en fonction de quantités calculables. Pour le cas d'une collection de sphères, on exprime le coefficient de diffusion en fonction de la matrice de diffusion dans la direction avant. Cette matrice s'obtient sans difficulté par la théorie de Mie en milieu à pertes. Nous donnons une formule valable sous l'approximation de la diffusion indépendante qui généralise l'approximation de Foldy-Twersky au cas d'un milieu hôte absorbant. Nous donnons par ailleurs une formule approximative pour prendre en compte la diffusion dépendante. Il s'agit de la généralisation de la formule de Keller en milieu absorbant.

Afin de valider ces modèles, nous comparons au chapitre IV les expressions obtenues au cas d'un systèmes composés d'une couche diffusante 2D contenant des cylindres placés en milieu absorbant pour lequel nous effectuons une simulation numérique afin de disposer d'une solution de référence. Nous montrons qu'en régime de diffusion indépendante, le modèle de Foldy-Twersky généralisé est en bon accord avec les résultats numériques. En régime de diffusion dépendante, le modèle de Keller généralisée donne d'excellents résultats pour les cas étudiés quand l'indice des diffuseurs n'est pas trop fort par rapport au liant.

Au chapitre V, nous nous intéressons cette fois au coefficient d'absorption et au coefficient de diffusion dans un milieu absorbant contenant de fortes fractions volumiques de diffuseurs non-absorbant. Nous cherchons le comportement du coefficient de diffusion en fonction de la fraction volumique de diffuseurs. Nous montrons que pour les tailles de particules étudiées que le coefficient d'absorption suit une loi en $(1 - f)$.

Nous reprenons le problème du coefficient d'extinction en régime de diffusion dépendante au chapitre VI. Par un modèle exploitant la théorie de la diffusion multiple et le résultat de la diffusion par une paire de particule obtenue exactement par la méthode de la matrice T, nous donnons une formule de l'extinction capable de prendre en compte l'aspect vectoriel des ondes, valables pour des particules de tailles quelconques, et qui prend en compte toutes les corrélations de paires de particules (diffusions récurrentes comprise). En termes techniques, le code de matrice T permet d'accéder à la somme de tous les diagrammes mettant en jeux deux particules. Le temps de calcul devrait être inférieur à la minute. Nous espérons par ce modèle combler les problèmes posés par la formule de Keller approximative et prendre en compte des corrélations dues aux diffusions multiples entre les paires de particules. La mise en oeuvre numérique reste à faire.

Enfin, dans le dernier chapitre, nous nous intéressons au problème de la diffusion par une couche diffusante en volume et en surface. Le modèle que nous développons est une approche radiative consistant à résoudre l'ETR 3D. La diffusion par l'interface rugueuse est prise en compte lors de l'écriture des conditions aux limites. Cette approche est toutefois difficile à mettre en oeuvre même dans l'approximation scalaire. Il peut être avantageux en temps de calcul de découpler le problème en sommant le résultat de deux systèmes simplifiés: celui du milieu diffusant en volume avec une interface plane et celui de la surface rugueuse déposée sur le milieu hôte. Nous définissons le couplage incohérent comme la différence entre le résultat du système complet et celui de la somme des systèmes découplés. Nous allons montrer qu'il n'est pas toujours possible de découpler le problème. Certains couplages incohérents sont oubliés et leur importance seront discutés.

Chapitre I

Théorie phénoménologique du transport de la lumière en milieu aléatoire

I.1 Introduction

Dans une très large gamme de milieu diffusant que l'on rencontre dans la nature tel que les poussières interstellaires, l'atmosphère, les nuages, le brouillard, la mer, la fumée, la peau, les peintures et bien d'autres milieux, la propagation de la lumière peut être décrite efficacement par une approche radiative (Chandrasekhar 1960; Thomas et Stamnes 1999). L'approche radiative consiste à écrire une équation de transfert radiatif (ETR), i.e. un bilan d'énergie local directionnel en tout point de l'espace dans un volume de taille mésoscopique moyen. Il s'agit d'une forme particulière de l'équation Boltzmann appliquée au transport de la lumière.

Nous introduisons dans ce chapitre le concept de luminance, la notion de libre parcours moyen, de fonction de phase et l'ETR.

Les caractéristiques diffusives du petit volume mésoscopique doivent être modélisées ou mesurées. Certaines classes de milieu diffusant sont constituées d'objets diffuseurs aléatoirement disposés dans l'espace. Par exemple des gouttelettes d'eau dans un brouillard. Quand les fractions volumique de diffuseurs ne sont pas trop fortes, on peut déduire les propriétés de diffusion d'un petit ensemble de diffuseurs à partir des caractéristiques de diffusion d'un diffuseur isolé. On utilise pour cela l'approximation de la diffusion indépendante que nous exposons dans un paragraphe.

Les fondements de la théorie des transferts radiatifs sont phénoménologiques. L'ETR semble ignorer par exemple certaines caractéristiques ondulatoire de la lumière. Nous discutons ensuite du domaine de validité *a priori* de cette approche. De nombreuses études théoriques, comme la théorie de la cohérence (Mandel et Wolf 1995) et la théorie de la diffusion multiple (Apresyan et Kravtsov 1996) exposée au chapitre II permettent de comprendre son succès et peuvent mieux cadrer son domaine de validité.

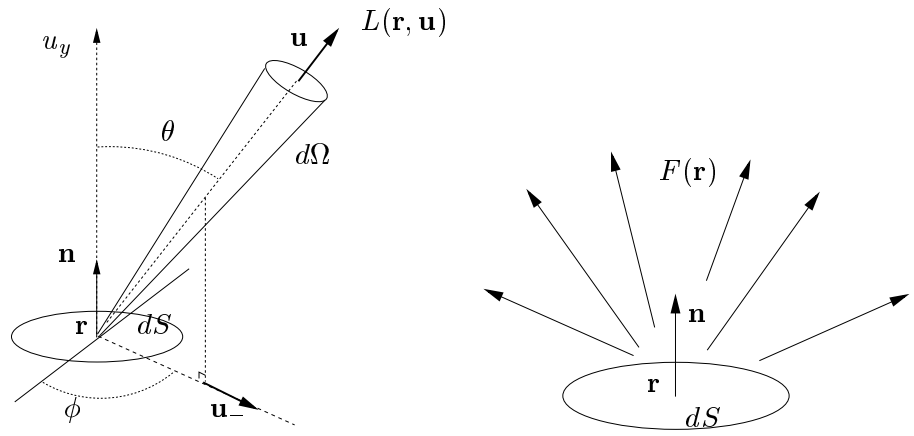
Dans la dernière partie, nous introduisons les concepts de la radiométrie nécessaires à la description des propriétés radiatives d'une couche diffusante et absorbantes.

I.2 Théorie du transfert radiatif phénoménologique

I.2.1 Flux directionnel et Luminance

Pour décrire un flux d'énergie traversant une surface dS centrée au point $\mathbf{r}$ de l'espace dans une direction $\mathbf{u}$, la quantité scalaire appelée luminance[1] $L(\mathbf{r},\mathbf{u})$ est introduite. On appelle d^2P,

1. Luminance=radiance ou specific intensity en anglais.



(a) Luminance $L(\mathbf{r},\mathbf{u})$: Flux à travers la surface dS au point $\mathbf{r}$ dans la direction $\mathbf{u}$ dans un angle solide $d\Omega$.

(b) Densité de flux: $F(\mathbf{r})$ à travers la surface dS au point $\mathbf{r}$

FIG. I.1 – *Luminance et flux à travers une surface dS orientée par sa normale n*

le flux rayonné [W] moyen à travers une surface élémentaire dS située en $\mathbf{r}$ et orientée selon $\mathbf{n}$, à l'intérieur d'un angle solide $d\omega$ dans une direction $\mathbf{u}$. La luminance L $[Wm^{-2}sr^{-1}]$ se définit (Meyzonnette et Lépine 2001) par la relation qui la lie à la puissance rayonnée.

$$d^2P(\mathbf{r},\mathbf{u}) = L(\mathbf{r},\mathbf{u})cos\theta dSd\Omega \tag{I.1}$$

La densité de flux F $[Wm^{-2}]$ traversant la surface dS au point $\mathbf{r}$ s'obtient en intégrant la luminance sur toutes les directions du demi-espace supérieur:

$$F(\mathbf{r}) = \int_{2\pi} L(\mathbf{r},\mathbf{u})cos(\theta)d\Omega \tag{I.2}$$

Nous n'avons pas précisé de l'origine physique de ce flux d'énergie. Cela peut donc s'appliquer aussi bien à un flux d'origine lumineux, acoustique ou encore des particules transportant (neutrons, électrons, molécules d'un gaz, phonons *etc*...) de l'énergie. Selon le cas, on peut préciser la vitesse de propagation du flux d'énergie considérée (par exemple pour un flux de molécules d'un gaz ou de neutron) et/ou encore la pulsation quand il s'agit de la propagation d'une onde.

Nous nous intéressons ici au cas où les flux sont de nature lumineuse (c'est à dire des ondes électromagnétiques). Le caractère vectoriel d'une onde électromagnétique sera ici ignoré. Mais on peut toutefois définir une luminance polarisée en construisant un vecteur de Stokes (Chandrasekhar 1960).

On supposera aussi que la lumière est monochromatique de pulsation ω. La longueur d'onde λ_0 dans le vide est reliée à cette pulsation par $\frac{2\pi}{\lambda_0} = \frac{\omega}{c}$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide. Cette longueur d'onde d'excitation est par exemple imposée par l'éclairement d'un faiseau laser quasi-monochromatique. Nous n'indiquerons pas par conséquent la longueur d'onde étudiée. D'autant que dans tous les problèmes que nous aborderons, toutes les tailles des objets seront rapportées à la longueur d'onde.

I.2.2 Libre parcours moyen et fonction de phase

Une lumière collimatée (la direction de propagation est bien définie) se propage dans un milieu diffusant et absorbant en s'atténuant exponentiellement. La lumière est diffusée parce que le milieu

est hétérogène. L'absorption peut être due au milieu hôte dans lequel baigne les hétérogéneités ou aux hétérogéneités elles-mêmes.

Cette décroissance s'observe sur des systèmes de toutes échelles. Par exemple la lumière qui se propage dans des poussières interstellaires s'atténue sur des millions de kilomètres. Dans un ciel clair, la lumière du soleil s'atténue sur des échelles de l'ordre du kilomètre à cause de deux phénomènes de diffusion de natures différentes: la première est due à des particules d'aérosols de tailles micrométriques en suspension (Thomas et Stamnes 1999), la seconde est liée aux fluctuations spatiales de l'indice de l'air. Ces fluctuations sont naturellement présentes dans un système macroscopique à une température T à cause des fluctuations de pressions autour de la valeur d'équilibre (Landau et Lifchitz 1965). Dans un brouillard épais, la lumière collimatée provenant du phare d'une voiture s'atténue exponentiellement sur quelques mètres à cause des gouttelettes d'eau en suspension dans l'air. Sur des échelles plus petites, la lumière infrarouge collimatée s'atténue dans la peau sur environ 50 micromètres (Boccara et French 1999). Dans une couche de peinture contenant quelques pourcents en volume de diffuseurs sphériques de taille micrométriques, un rayon infrarouge s'atténue sur quelques dizaines de micromètres. La décroissance exponentielle (comme on peut le voir sur la photographie I.2) d'une luminance collimatée se propageant dans la direction u_z est décrite par la loi de Beer-Lambert:

$$I(x, y, z; u_z) = I(x, y, 0; u_z)e^{-K_{ext}z} \tag{I.3}$$

où $I(x, y, 0; u_z)$ est la luminance dans le plan $z = 0$. K_{ext} est le coefficient d'extinction. Son unité est l'inverse d'une longueur en m^{-1}. Cette formule est valable pour un milieu infini et

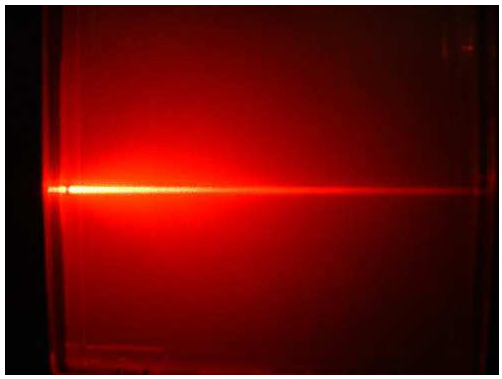


FIG. I.2 – *Bain d'eau contenant une faible fraction volumique de billes de latex éclairé par une lumière collimatée laser rouge. La lumière collimatée s'atténue exponentiellement à cause de l'absorption et de la diffusion. La partie diffusée forme un halo lumineux autour de la lumière collimatée.*

statistiquement homogène. Le libre parcours moyen d'extinction l_{ext} est défini par

$$l_{ext} = 1/K_{ext} \text{ en } m^{-1} \tag{I.4}$$

Cette longueur caractérise la distance à partir de laquelle la luminance s'est atténuée d'un facteur $1/e$. On peut séparer les contributions du coefficient d'extinction dues à l'absorption et à la diffusion en écrivant:

$$K_{ext} = K_{sca} + K_{abs} \tag{I.5}$$

On définit aussi les libres parcours moyen de diffusion l_{sca} et d'absorption l_{abs} par:

$$l_{sca} = 1/K_{sca} \text{ et } l_{abs} = 1/K_{abs} \text{ en } m^{-1} \tag{I.6}$$

Marche aléatoire d'une particule de lumière

La notion de libre parcours moyen est un concept de statistique qui fait penser à la notion de marche aléatoire. Si on associe un flux lumineux à un flux de particules se propageant dans une direction bien déterminée d'un point à un autre dans un milieu aléatoire, le libre parcours moyen de diffusion peut s'interpréter par la distance que parcourt en moyenne une particule avant qu'elle ne soit diffusée, autrement dit avant que sa direction de propagation diffère de sa trajectoire initiale. De même, le libre parcours moyen d'absorption peut s'interpréter comme la distance que parcourt en moyenne une particule avant qu'elle ne soit absorbée. Cette image particulaire de la lumière permet de simuler le transport de la lumière dans un milieu aléatoire par une méthode de type Monte-Carlo sur un très grand nombre de particules. Il manque toutefois une information pour réaliser cette simulation: il faut connaitre dans quelles directions en moyenne les particules de lumière sont déviées.

Fonction de phase

Nous n'avons pas décrit dans quelle direction le photon est diffusé quand il quitte sa trajectoire initiale. La densité de probabilité pour que la lumière passe d'une direction initiale $\mathbf{u}$ à une direction $\mathbf{u}'$ après un processus de diffusion est donnée par une fonction appelée fonction de phase. Nous la notons $P(\mathbf{u}, \mathbf{u}')$. Puisqu'il s'agit d'une probabilité cette quantité est toujours positive et elle doit par ailleurs satisfaire à la condition de normalisation suivante:

$$\frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} P(\mathbf{u}, \mathbf{u}') d\Omega' = 1 \tag{I.7}$$

Lorsque la diffusion est isotrope, alors on a $P(\mathbf{u}, \mathbf{u}') = 1$ quel que soit $(\mathbf{u}, \mathbf{u}')$. La dénomination 'fonction de phase' est peut être mal adaptée puisque le mot 'phase' est plutôt réservé au sens de la phase d'une onde. Elle devrait plutôt s'appeler diagramme de diffusion ou indicatrice de diffusion.

On peut caractériser l'anisotropie de la diffusion par un paramètre g défini par la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion via la fonction de phase.

$$g = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} P(\mathbf{u}, \mathbf{u}') cos(\mathbf{u}.\mathbf{u}') d\Omega' \tag{I.8}$$

Quand g est proche de 1, c'est que la lumière est principalement diffusée dans la direction avant. Quand $g = 0$, la diffusion est isotrope et quand g est proche de -1, la lumière est principalement diffusée vers l'arrière.

Le paramètre g permet de définir la notion de libre parcours moyen de transport l_{trans} par la formule:

$$l_{trans} = \frac{l_{sca}}{1 - |g|} \tag{I.9}$$

l_{trans} est la distance à partir de laquelle la lumière incidente a complètement perdu la mémoire de sa direction incidente. A force de multiples évènements de diffusion, la lumière se propage de façon isotrope.

I.2.3 Equation de Transfert radiatif (ETR) dans un milieu diffusant

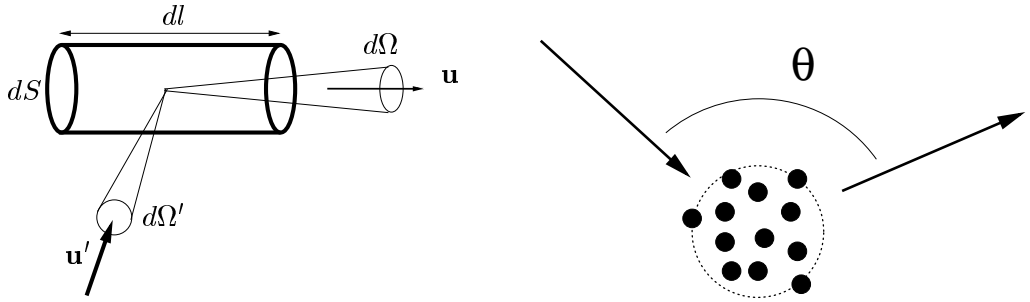
Pourquoi ne peut-on pas résoudre exactement le problème de la propagation d'une onde dans un milieu diffusant de grande taille?

En principe, la propagation d'une onde lumineuse en milieu aléatoire (i.e. un milieu pour lequel l'indice de réfraction est une variable aléatoire de l'espace), peut être calculée par la résolution des

équations de Maxwell. L'une des méthodes existantes pour résoudre les équations de Maxwell est la méthode des moments. A partir des équations intégrales de Maxwell en contour des objets, la méthode des moments consiste à discrétiser les intégrales pour mettre en place un système matriciel d'équations linéaires soluble numériquement. Le système d'objets considéré (particules sphériques et interfaces) est maillé de manière suffisamment fine pour que l'on puisse considérer le champ constant sur une maille. Prenons une maille de taille typique de l'ordre de $\lambda/10$. Si on considère un système comprenant -5% de particules diélectriques en fraction volumique -un diamètre de $\lambda/2$. -une épaisseur de 3 λ - et une surface d'entrée carrée de 10λ de côté, on obtient un système de 50000 mailles. Le système choisi est trop petit pour être représentatif d'un milieu moyen. Pour avoir une idée des résultats sur un système plus grand, il faut calculer des statistiques sur un ensemble de réalisations. 100 est un minimum pour une statistique correcte. Il faut donc résoudre 100 fois un problème à 2*50000=100000 inconnues. Le temps de calcul associé à la résolution de se système serait actuellement de l'ordre de 80000 heures sur un processeur IBM SP3. Face à ce problème l'approche radiative de ce problème est une solution efficace et très peu coûteuse en temps de calcul (de la seconde jusqu'à quelques minutes pour les cas les plus complexes que nous avons rencontré).

Approche radiative

L'ETR exprime la conservation du flux d'énergie radiatif dans un élément de volume dans une direction particulière (fig. I.3(a)). Ce bilan d'énergie doit être effectué partout dans le milieu diffusant et dans toutes les directions de l'espace. Cet élément de volume est un élément de taille mésoscopique. C'est à dire à une échelle située entre l'échelle microscopique (échelles de variations des champs $< \lambda_0$) et l'échelle des libres parcours moyen pour le milieu diffusant considéré. L'ETR est une équation qui régit les variations spatiales de la luminance en un point $\mathbf{r}$ pour une direction particulière $\mathbf{u}$. Considérons un élement de volume moyen sous la forme d'un tube de section dS



(a) Bilan d'énergie dans un volume $dSdl$ (b) fonction de phase $P(\theta)$

FIG. I.3 – *Approche radiative*

et de longueur dl orienté selon la direction du vecteur $\mathbf{u}$. Le long de cette direction, on sait que la luminance décroit à cause de l'absorption et de la diffusion:

$$\frac{L(\mathbf{r}+dl\mathbf{u},\mathbf{u})-L(\mathbf{r},\mathbf{u})}{dl}=\frac{dL(\mathbf{r},\mathbf{u})}{dl}=-(K_{abs}+K_{sca})L(\mathbf{r},\mathbf{u}) \tag{I.10}$$

Cet élément de volume est une petite partie du milieu diffusant. Par conséquent, dans le même temps, d'autres luminances $L(\mathbf{r},\mathbf{u}')$ provenant du milieu environnant se dirigent vers l'élément de volume considéré avec des directions $\mathbf{u}'$. Ces luminances sont diffusées par l'élément de volume et une partie de ces luminances contribue à augmenter la luminance $L(\mathbf{r},\mathbf{u})$ dans la direction $\mathbf{u}$. La part de la luminance se propageant dans la direction $\mathbf{u}'$ qui est diffusée dans la direction $\mathbf{u}$ est:

$\frac{K_{sca}}{4\pi}P(\mathbf{u}',\mathbf{u})d\mathbf{u}'$. Nous devons par conséquent ajouter à l'équation précédente ce terme manquant pour toutes les directions $\mathbf{u}'$ sur 4π stéradians.

$$\frac{dL(\mathbf{r},\mathbf{u})}{dl} = -(K_{abs}+K_{sca})L(\mathbf{r},\mathbf{u}) + \frac{K_{sca}}{4\pi}\int_{4\pi} L(\mathbf{r},\mathbf{u}')P(\mathbf{u}',\mathbf{u})d\Omega' \tag{I.11}$$

où $P(\mathbf{u}',\mathbf{u})$ est la fonction de phase moyenne de l'élément de volume considéré I.3(b). Dans le cas où l'on s'intéresse à un corps à une température T, l'élément de volume absorbe et réémet par émission thermique une luminance dans la direction $\mathbf{u}$ à la longueur d'onde étudiée. Dans tous les systèmes que nous étudions, les milieux sont suffisamment froid et les longueurs d'ondes d'intérêts sont trop proches du visible pour que cette émission thermique joue un rôle dans nos équations. D'autre part, nous ne considérerons que des milieux diffusants qui sont composés de milieux non magnétiques $\mu = 1$ de polarisabilité linéaire et isotrope. D'autre part, le milieu diffusant est supposé statistiquement homogène et isotrope.

- L'homogénéité entraine que K_{sca}, K_{abs} et $P(\mathbf{u}',\mathbf{u})$ ne dépendent pas de $\mathbf{r}$.
- L'isotropie entraine que K_{sca} et K_{abs} ne dépendent pas de la direction $\mathbf{u}$ et $P(\mathbf{u}',\mathbf{u})$ ne dépend que de la différence entre l'angle d'entrée et l'angle de sortie. Un exemple de milieu statistiquement anisotrope est un milieu contenant des objets diffusants avec une orientation priviligiée.

Supposons que l'on soit capable de résoudre cette équation intégrodifférentielle, pour par exemple une couche diffusante. On obtient alors la luminance pour toutes les directions et pour toutes les directions de l'espace. Comment relier ce résultat à la mesure des flux diffusés par un milieu statiqueΓ On sait qu'un milieu aléatoire statique éclairé par une onde cohérente spatiallement et temporellement produit une figure de speckle (Goodman 2000): c'est à dire une figure d'intensité de hautes fréquences spatiales d'aspect aléatoire parce que les champs diffusés par le milieu aléatoire interferent constructivement et destructivement de manière aléatoire. Si on réitère l'expérience avec un autre milieu aléatoire dont les statistiques sont identiques i.e. une autre réalisation (les objets diffuseurs sont redisposées aléatoirement), on observe une autre figure de speckle. La moyenne de ces images sur un ensemble suffisant de réalisations, donne une figure

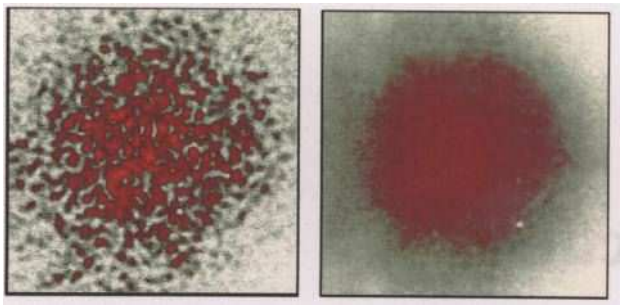


FIG. I.4 – *A gauche image de l'intensité réfléchie par un milieu diffusant statique éclairé par un laser. A droite, idem mais moyenné sur un ensemble de réalisations. Images reproduites du cours de Snabre et Brunel (2001)*

d'intensité moyenne beaucoup plus uniforme comme on peut le voir sur la Fig.I.4 tiré du cours de Snabre et Brunel (2001). Ce n'est que la moyenne de ces intensités sur un ensemble de realisations de système que l'on cherche à reproduire par la méthode radiative. La luminance est donc le flux moyen directionnel sur un ensemble de réalisations passant par une surface dS autour d'un point $\mathbf{r}$. Quand on écrit une équation de transfert radiatif, on considère d'emblée un milieu dont les états (position des particules) sont moyennés sur une échelle mésoscopique.

Régimes de diffusion

On définit l'épaisseur optique τ d'un système diffusant et/ou absorbant par $\tau = K_{ext}e$ où e est l'épaisseur du milieu. Si τ est grand devant un, cela implique qu'il ne restera pratiquement rien d'un faisceau collimaté traversant la couche. Si le phare d'une voiture à travers un brouillard ou si le soleil à travers un nuage sont à peine perceptibles, c'est que l'épaisseur optique τ est proche de 5 ($e^{-5} \approx 10^{-2}$). Quand τ est petit, on peut distinguer un objet situé derrière le milieu diffusant.

Dans le cas particulier d'un milieu diffusant très peu absorbant, on peut comparer l'épaisseur e d'un système diffusant au libre parcours moyen de diffusion. On peut distinguer quatres régimes de diffusion:

- régime ballistique: $e << l_{sca}$. Le faisceau incident n'est pratiquement pas diffusé.
- régime de diffusion simple: $e \approx l_{sca}$.
- régime de diffusion multiple: $e > l_{sca}$.
- régime diffusif: $e >> l_{trans}$. L'isotropie de la lumière diffuse permet de décrire le transport de la lumière par une équation de diffusion ('diffusion' en anglais) comme celle utilisée pour décrire le transport de la chaleur ou encore la diffusion d'une encre de chine dans de l'eau. On peut démontrer que la lumière diffuse satisfait à une équation de diffusion à partir de l'ETR si la lumière diffuse peut être considérée comme quasi-isotrope (Ishimaru 1978a).

Malgrès sa forme complexe, l'ETR peut se résoudre numériquement en des temps raisonnables par différentes méthodes. Le choix de la méthode est le plus souvent lié à la forme géometrique du milieu diffusant et à la complexité des conditions aux limites associées. Au chapitre VII traitant du cas de la diffusion par une couche diffusante avec interfaces d'entrée et de sorties rugueuses, nous avons utilisé la méthode des ordonnées discrètes(Chandrasekhar 1960; Case et Zweifel 1967; Goody et Yung 1995; Thomas et Stamnes 1999), mais d'autres méthodes sont envisageables.

I.3 Paramètres de l'ETR en régime de diffusion indépendante

Le coefficient de diffusion, d'extinction et la fonction de phase en régime de diffusion indépendante se calculent à partir des propriétés de diffusion d'une seule particule.

Pour le cas d'un milieu hôte non-absorbant, les coefficients de diffusion K_{sca} et d'extinction K_{ext} se déduisent du nombre de particules par unité de volume n et passe par le calcul des sections efficaces de diffusion C_{sca} et d'extinction C_{ext} de la particule considérée par les formules:

$$K_{ext} = nC_{ext} \text{ et } K_{sca} = nC_{sca} \tag{I.12}$$

La fonction de phase d'un ensemble de particules est supposée égale à celle d'une particule isolée.

I.3.1 Diffusion par une particule de forme arbitraire

Nous résumons ici ce qui est exposé en détail dans le livre de Bohren et Huffman (1983). Le but est ici de définir la notion de section efficace et la méthode de calcul.

On suppose qu'une particule isolée de forme arbitraire est centrée à l'origine d'un repère cartésien (x, y, z) avec pour vecteurs unitaires associés $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$. La particule est placée dans un milieu hôte non-absorbant d'indice n_1.

La particule est éclairée par un champ incident $(\mathbf{E}_{inc}, \mathbf{H}_{inc})$ se propageant dans la direction z sous la forme d'une onde plane monochromatique à une pulsation ω et un nombre d'onde $k_1 = \frac{\omega}{c} n_1$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide. Le champ électrique incident s'écrit

$$\mathbf{E}_{inc} = \mathbf{E}_0 e^{i(k_1 z - \omega t)} \tag{I.13}$$

où $\mathbf{E}_0$ est l'amplitude du champ électrique incident dans le plan $(x, y, 0)$.

De part la présence de la particule, le champ total $\mathbf{E}$ diffère du champ incident. Le champ diffusé $\mathbf{E}_{sca}$ par la particule est défini en tout point de l'espace par la relation suivante:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{E}_{sca} \tag{I.14}$$

Les champs magnétiques total et diffusé se décomposent à l'identique.

Champ diffusé en champ lointain

En champ lointain de la particule, on peut montrer que le champ diffusé prend la forme asymptotique suivante:

$$\mathbf{E}_{sca} = \frac{e^{ik_1 R}}{-ik_1 R}\mathbf{S}_{k_1}(\Theta)\mathbf{E}_0 \tag{I.15}$$

où $\mathbf{S}_{k_1}$ est la matrice de diffusion et Θ est l'angle de diffusion. Le champ diffusé en champ lointain est transverse.

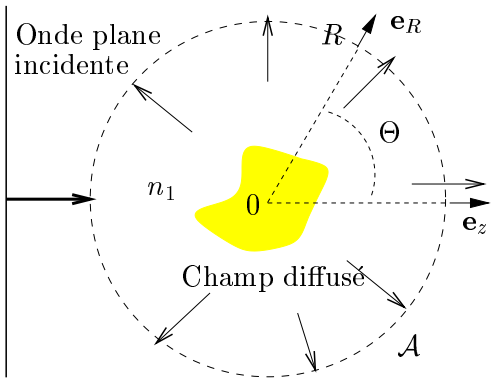


FIG. I.5 – *Flux rayonné par un diffuseur de forme arbitraire d'indice baignant dans un liant d'indice n_h éclairé par une onde plane à travers une sphère fictive $\mathcal{A}$ de rayon R en champ lointain du diffuseur.*

Flux de diffusion, d'absorption et d'extinction

Afin de calculer les flux de diffusion W_{inc}, d'absorption W_{sca} et d'extinction W_{ext}, nous devons préalablement calculer le vecteur de Poynting. La valeur moyenne temporelle du vecteur de Poynting total est défini par:

$$\mathbf{S} = \frac{1}{2}Re(\mathbf{E} \times \mathbf{H}^*) \tag{I.16}$$

où $\times$ désigne le produit vectoriel. Par conséquent, si on injecte (I.14) dans l'expression du vecteur de Poynting, on obtient une décomposition du vecteur de Poynting en trois termes:

$$\mathbf{S} = \mathbf{S}_{inc} + \mathbf{S}_{sca} + \mathbf{S}_{ext}. \tag{I.17}$$

où $\mathbf{S}_{inc}$, $\mathbf{S}_{sca}$ et $\mathbf{S}_{ext}$ sont respectivement les vecteurs de Poynting incident, de diffusion et d'extinction définis par:

$$\mathbf{S}_{inc} = \frac{1}{2}Re(\mathbf{E}_{inc} \times \mathbf{H}^*_{inc}) \tag{I.18}$$

$$\mathbf{S}_{sca} = \frac{1}{2}Re(\mathbf{E}_{sca} \times \mathbf{H}^*_{sca}) \tag{I.19}$$

$$\mathbf{S}_{ext} = \frac{1}{2}Re(\mathbf{E}_{inc} \times \mathbf{H}^*_{sca} + \mathbf{E}_{sca} \times \mathbf{H}^*_{inc}) \tag{I.20}$$

Le flux absorbé W_{abs} s'obtient d'après le théorème de Poynting en intégrant le flux du vecteur de Poynting à travers une surface fictive $\mathcal{A}$ de forme quelconque entourant le diffuseur.

$$W_{abs} = -\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S} \cdot \mathbf{e_R} d\mathcal{A}. \tag{I.21}$$

La surface $\mathcal{A}$ (voir Fig.I.5) est toutefois choisie sphérique de rayon R suffisamment grand pour faciliter les calculs [2].

Le signe $-$ est conventionnel pour que cette quantité soit positive quand de l'énergie est absorbée par la sphère. Tout comme le vecteur de Poynting, W_{abs} peut se décomposer en 3 termes:

$$W_{abs} = W_{inc} - W_{sca} + W_{ext} \tag{I.22}$$

où les flux sont définis par:

$$W_{inc} = -\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S_{inc}} \cdot \mathbf{e_R} dA \ , \ W_{sca} = +\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S_{sca}} \cdot \mathbf{e_R} dA \ , \ W_{ext} = -\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S_{ext}} \cdot \mathbf{e_R} dA \ . \tag{I.23}$$

De même, le signe $+$ dans la définition de W_{sca} est choisi de sorte que cette quantité soit positive quand de l'énergie est rayonnée par la particule soumise à un éclairement. Quand le liant est non-absorbant, $W_{inc} = 0$ car autant de flux rentre dans la sphère fictive ne contenant pas de diffuseur qu'il n'en sort. Par conséquent, on a:

$$W_{ext} = W_{abs} + W_{sca} \tag{I.24}$$

Sections efficaces de diffusion, d'extinction et fonction de phase

Les sections efficaces de diffusion et d'extinction s'obtiennent en divisant les flux de diffusion W_{sca} et d'extinction W_{ext} par l'intensité incidente $I_0 = \frac{1}{2}|Re(\mathbf{E}_0 \times \mathbf{H}_0^*)|$:

$$C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0} \text{ et } C_{sca} = \frac{W_{sca}}{I_0} \tag{I.25}$$

Soit C_{geo} la section géométrique (la surface projeté sur la perpendiculaire à la direction incidente) d'un diffuseur. Par exemple pour une sphère de rayon a, on a $C_{geo} = \pi a^2$. Il peut être intéressant de comparer la section efficace à la section efficace géométrique. Les efficacités de diffusion et d'extinction représentent justement cette quantité adimensionnée:

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{C_{geo}} \text{ et } Q_{sca} = \frac{C_{sca}}{C_{geo}} \tag{I.26}$$

Enfin la fonction de phase ressemble à une section efficace différentielle comme on en utilise souvent en physique atomique ou dans la physique des particules. A la différence d'une section efficace différentielle, la fonction de phase est adimensionnée par la section efficace de diffusion. La fonction de phase moyennée sur les polarisations peut s'écrire

$$p(\Theta) = \frac{1}{2} \sum_{ij} \frac{4\pi |S_{k_1,ij}(\Theta)|^2}{k_1^2 C_{sca,i}} \tag{I.27}$$

où $S_{k_1,ij}$ sont les éléments de la matrice de diffusion définis par la relation (I.15) et C_{sca} est la section efficace pour la polarisation i. La fonction de phase a été normalisée par la relation (I.7).

2. Comme le champ diffusé est transverse en champ lointain, le vecteur de Poynting est perpendiculaire à la surface. Ce qui facilite les calculs

I.3.2 Cas d'une sphère

Le calcul des champs diffusés par une sphère de rayon quelconque, d'indice homogène et isotrope éclairée par une onde plane incidente peut se faire de manière analytique par la théorie de Mie dont on trouvera le détail des expressions des matrices de diffusion des sections efficaces et de la fonction de phase dans le livre de Bohren et Huffman (1983). Ces expressions analytiques nécessitent toutefois l'emploi d'un ordinateur pour obtenir des valeurs numériques. Parmis les algorithmes existant, celui de Wiscombe (1980) semble le plus efficace à ce jour. On pourra trouver un code de calcul facilement sur le Web dans différents langages et en annexe du livre de Bohren et Huffman (1983). Nous utiliserons par la suite très souvent le résultat de ce code.

I.3.3 Diffusion par une collection de petites particules et régime d'homogénéisation

Cas d'une particule isolée

Considérons le cas d'une particule de taille caractéristique L très petite devant la longueur d'onde λ_0.

On peut montrer que le champ rayonné en champ lointain dans le cas de l'approximation dipolaire est [3]:

$$\mathbf{E}_{sca} = \omega^2 \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{e^{i\frac{\omega}{c}R}}{R} \mathbf{P}_- \tag{I.28}$$

où $\mathbf{P}_-$ est la composante orthogonale à la direction d'observation $\mathbf{e}_R$ du moment dipolaire $\mathbf{P}$ de la particule induite par le champ incident $\mathbf{E}_{inc}$. $\mathbf{P}_-$ est dans le plan $(\mathbf{e}_R, \mathbf{E}_{inc})$. Dans l'approximation linéaire, le moment dipolaire $\mathbf{P}$ est proportionnel au champ incident $\mathbf{E}_{inc}$.

$$\mathbf{P} = \alpha(\omega)\epsilon_0 \mathbf{E}_{inc} \tag{I.29}$$

La puissance rayonnée dans un angle solide $d\Omega$ est: $dW_{sca} = \mathbf{S}_{sca} \cdot \mathbf{e}_R R^2 d\Omega$ où $\mathbf{S}_{sca} = \frac{1}{2}\epsilon_0 |\mathbf{E}_{sca}|^2 \mathbf{e}_R$ est le vecteur de Poynting de diffusion. On obtient alors:

$$dW_{sca} = \frac{1}{2}\epsilon_0 \omega^4 \frac{\mu_0^2}{(4\pi)^2} \frac{1}{R^2} |\alpha(\omega)|^2 \epsilon_0^2 |\mathbf{E}_{inc}|^2 sin^2(\Theta) R^2 d\Omega \tag{I.30}$$

La puissance totale diffusée dans 4π stéradians est

$$W_{sca} = \int_{4\pi} \frac{dW_{sca}}{d\Omega} d\Omega = \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\omega}{c}\right)^4 2|\alpha(\omega)|^2 \frac{\epsilon_0 c}{2} |\mathbf{E}_{inc}|^2 \tag{I.31}$$

Pour le cas d'une sphère de rayon a et de permittivité ϵ, on peut montrer que (Born et Wolf 1999):

$$\alpha = 4\pi a^3 \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} \tag{I.32}$$

La section efficace de diffusion est donc:

$$C_{sca} = \frac{W_{sca}}{\frac{\epsilon_0 c}{2}|\mathbf{E}_{inc}|^2} = \frac{4}{3}\pi 2 \left(\frac{\omega}{c}\right)^4 a^6 \left(\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}\right)^2 \tag{I.33}$$

On voit donc que la section efficace varie très vite avec le rayon de la particule ou avec la longueur d'onde.

3. Greffet (1998)

Cas d'une collection de particules indépendantes

On considère un milieu contenant une fraction volumique f de gouttelettes d'eau de rayon a. Si n est le nombre de particules par unité de volume, alors $f = n\frac{4}{3}\pi a^3$. Le libre parcours moyen de diffusion sous l'approximation de la diffusion indépendante est $l_{sca} = \frac{1}{nC_{sca}}$. En utilisant (I.33), on trouve alors:

$$\boxed{l_{sca} = \lambda_0 \left(\frac{\lambda_0}{a}\right)^3 \left(\frac{\epsilon+2}{\epsilon-1}\right)^2 \frac{1}{32\pi^4 f}} \tag{I.34}$$

On voit ici que pour une fraction volumique fixée, plus a est petit, plus l_{sca} devient grand. Pour une fraction volumique fixée, bien que le nombre de particules par unité de volume n augmente en $\frac{1}{a^3}$ quand le rayon a des particules diminue, la section efficace de diffusion chute beaucoup plus vite en a^6. Par conséquent le milieu diffuse de moins en moins quand la taille des particules diminue pour une fraction volumique fixée. On peut considérer un milieu comme homogène quand le rayon a est plus petit qu'une certaine valeur. Par exemple si $\frac{\lambda_0}{a} = 1000$, $f = 0.01$, $\epsilon = 1.33^2$ et $\lambda_0 = 0.5\mu m$, alors on trouve $l_{sca} = 500m$. Tandis que pour $\frac{\lambda_0}{a} = 10$, toutes choses égales par ailleurs, $l_{sca} = 0.5mm$

Soit D, la distance interparticulaire (la distance intercentre) moyenne. La relation entre D, a et f est pour de faibles fractions volumiques:

$$D = \sqrt[3]{\frac{1}{n}} = a\sqrt[3]{\frac{4\pi}{3f}} \tag{I.35}$$

On peut réexprimer l_{sca} en fonction de D.

$$\boxed{l_{sca} = \lambda_0 \left(\frac{\lambda_0}{D}\right)^3 \left(\frac{\epsilon+2}{\epsilon-1}\right)^2 \frac{1}{24\pi^3 f^2}} \tag{I.36}$$

Quand la distance interparticulaire D devient très petite devant la longueur d'onde pour une fraction volumique f fixée, la lumière ne voit plus qu'un milieu quasi-homogène, ne diffusant pratiquement pas malgré la forte fraction volumique de diffuseur. Ce régime où le milieu ne diffuse plus est appelé régime statique ou régime d'homogénéisation. La modélisation de la permittivité diélectrique d'un milieu composite en régime d'homogénéisation est un vaste sujet d'étude dont on pourra trouver de nombreuses références dans les livres de Berthier (1993), Sheng (1995) ou encore Tsang, Kong, et Shin (1985).

I.3.4 Validité de l'approximation de la diffusion indépendante

Jusqu'à quelle fraction volumique de diffuseur, peut-on utiliser l'approximation de la diffusion indépendanteΓ Nous avons vu que cette approximation suppose que les coefficients de diffusion et d'extinction soient linéaires avec la fraction volumique et que la fonction de phase d'un diffuseur puisse être utilisée comme paramètre d'entrée de l'ETR.

Quel est l'ordre de grandeur de la fraction volumique d'un système diffusantΓ

Prenons par exemple le cas d'un brouillard épais tel que l'on ne voit pas à un mètre. Supposons que le brouillard est composé de gouttelettes d'eau de rayon $a = 10\mu m$ et que la longueur d'onde d'observation est $\lambda_0 = 0.5\mu m$. La théorie de Mie et l'approximation de la diffusion indépendante permettent de remonter à la fraction volumique. On trouve $f = 6.10^{-6}$.

Considérons maintenant, le cas d'une peinture chargée de particules sphériques. On veut arrêter une onde collimatée infrarouge sur une distance de $50\mu m$ telle que $\lambda_0 = 5.4\mu m$ dans un matériau d'indice $n_h = 1.48$ contenant une fraction volumique de f de particules d'indice $n_p = 2.21$ tel que le rayon $a = 5\mu m$. On obtient que la fraction volumique nécessaire pour que l'on ait $l_{ext} = 50\mu m$ est $f = 0.06$.

Dans le cas du brouillard épais, l'ETR est capable de résoudre le problème de la diffusion multiple sous l'approximation de la diffusion indépendante. Pour la peinture considérée, cela n'est pas certain. Les fractions volumiques pour ces deux systèmes sont dans un rapport 1000. Si la fraction volumique est élevée, il existe des corrélations sur la position des diffuseurs car ils ne peuvent pas s'interpénétrer. L'approximation du type gaz parfait n'est plus valable.

On parle de diffusion dépendante dès lors que le coefficient de diffusion n'est plus linéaire avec la fraction volumique de particules. Des résultats expérimentaux [4] et des simulations numériques exactes [5] montrent que pour des particules petites devant la longueur d'onde le coefficient est plus petit que celui prévu par la théorie de la diffusion indépendante dès que la fraction volumique dépasse les quelques pour cents. Cette tendance s'inverse pour une certaine taille de particules. Parmi les modèles existants pour prendre en compte la diffusion dépendante, on peut citer: le modèle de Twersky (1978) et Twersky (1979) qui est analytique valable pour des diffuseurs très petits devant la longueur d'onde et sous l'approximation scalaire; le modèle de Keller (1964) sous les mêmes approximations; le modèle des fortes fluctuations pour les milieux continus (Tsang et Kong 1981); le modèle de Cartigny, Yamada, et Tien (1986) et encore le modèle de l'approximation quasi-cristalline (Tsang et Kong 2001). Notons qu'à part le modèle de Keller (malgré ces approximations) aucun d'entre eux ne semble adapté pour le cas de diffuseurs de taille comparable à la longueur d'onde.

D'autre part, des comparaisons entre le résultat expérimental (Hottel, Sarofim, et Vasalos 1970; Yamada, Cartigny, et Tien 1986; Da Silva 2001) des flux diffusés par une couche aléatoire avec le résultat de l'ETR avec des paramètres calculés sous l'approximation d'une diffusion indépendante montrent que les résultats concordent tant que la fraction volumique de diffuseur est inférieure à quelques %, mais pas au delà.

I.4 Validité *a priori* de l'ETR

I.4.1 Taille de l'élément de volume mésoscopique

Quelle doit être la taille de l'élément de volume $dSdl$ sur lequel on raisonne pour établir l'ETR et définir les coefficients de diffusion, d'absorption et la fonction de phaseΓ Soit L la taille caractéristique de l'élément de taille mésoscopique. West, Gibbs, Tsang, et Fung (1994) tentent de répondre phénoménologiquement à cette question par les arguments suivants pour le cas d'un système contenant des objets de taille a aléatoirement disposés dans l'espace:

- l'élément doit contenir plusieurs particules dont la disposition doit être moyennée pour être représentif d'un milieu moyen et doit en plus être grand devant la longueur d'onde pour que l'on puisse moyenner la phase des ondes diffusées par les objets sur plusieurs fois 2π. Ce qui impose la condition suivante $L >> a$ et λ.
- la diffusion multiple doit être négligeable, pour que l'on puisse écrire une équation différentielle de la luminance le long de l'élément de volume. Plus précisement, il est nessaire que la variation de la luminance le long de cette élément de volume soit faible. Cette condition impose $L << l_{sca}$.

A priori, l'ETR devrait être apte à modéliser les processus de diffusion multiples si la taille L de l'élément de volume dont on se sert pour évaluer les paramètres de diffusion et d'absorption satisfait à la condition suivante:

$$\lambda, a << L << l_{sca} \tag{I.37}$$

4. Ishimaru et Kuga (1982); Drolen, Kumar, et Tien (1987); Mandt, Kuga, et Ishimaru (1992); West, Gibbs, Tsang, et Fung (1994); Gélébard, Ferrand, Schnorenberg, et Avrilier (1995); Gobel, Kuhn, et Fricke (1995); Nashashibi et Sarabandi (1999); Hespel, Mainguy, et Greffet (2001)

5. Tsang, Mandt, et Ding (1992); Lu, Wang, Chew, et Tsang (1993); Lu, Chew, et Tsang (1995); Siqueira et Sarabandi (2000)

Quand l_{sca} s'approche de la longueur d'onde, il n'existe plus de taille L qui puisse satisfaire à cette condition et on peut douter de la validité de l'ETR.

I.4.2 L'ETR: un modèle d'ondes incohérentes

Remarquons que pour établir l'ETR (I.11), la nature ondulatoire de la lumière semble à première vue complètement ignorée. Les luminances sont ajoutées les unes aux autres comme si tout phénomène d'interférence d'onde pouvait être ignoré. En d'autres termes, les luminances diffuses sont additionnées comme si elles étaient incohérentes entre elles.

Au sein même de la quantité physique appelée luminance, est cachée intrinsèquement la notion de cohérence spatiale. Les luminances s'additionnent certes de façon incohérente mais pour une direction bien spécifiée et en un point particulier de l'espace. Or directionnalité d'un faisceau et la cohérence spatiale sont deux notions qui peuvent être reliées. Par exemple une onde plane qui est le cas limite d'une onde dont la divergence est nulle a une longueur de cohérence spatiale infinie parce la phase est corrélée dans tout le plan orthogonal à la direction de propagation. Pour qu'une onde se propage dans une direction bien déterminée, il est nécessaire qu'elle interfère constructivement dans la direction de propagation et qu'elle interfère destructivement dans les autres directions. Ces interférences ne peuvent se produirent que si l'onde est cohérente spatialement. C'est la directionnalité incluse dans la définition de la luminance qui introduit la notion de cohérence spatiale. La relation entre la luminance et les statistiques des champs a pendant longtemps été un problème difficile jusqu'aux publications de Walther (1968) et Walther (1973)[6] Nous discutons de cette relation au chapitre II qui relie la notion la luminance à la cohérence des champs.

Pourquoi peut-on dans de nombreux cas additionner les luminances diffuses alors que les flux d'énergies sont d'origine ondulatoiresΓ On peut additionner ces flux si ces ondes sont incohérentes entre elles. Or les ondes diffusées sont le plus souvent incohérentes selon les différentes réalisation de système. Quand en un point $\mathbf{r}$, les phases des ondes diffusées dans la direction $\mathbf{u}$ sont aléatoires à chaque réalisation, cela est vrai quand il n'y a pas de corrélations, et que ces phases balaient de nombreuses fois 2π, alors on peut en moyenne additionner les flux diffusés.

Une question importante est: existe t-il des directions particulières ou des mécanismes qui conservent des effets cohérents dans les champs diffusés même après moyenneΓ

La rétrodiffusion cohérente et la localisation forte sont des phénomènes cohérents qui se conservent même après moyenne.

I.4.3 Localisation

Rétrodiffusion cohérente ou localisation faible

L'ETR n'est pas à même de reproduire certains phénomènes comme celui de la rétrodiffusion cohérente appelée aussi phénomène de localisation faible que l'on représente schématiquement par la figure I.6. Si une onde est diffusée de multiple fois et qu'une partie de cette onde revient vers la source, le principe de retour inverse de la lumière (ou plus généralement les propriétées de réciprocité spatiale et temporelle des équations de Maxwell) implique qu'il existe une onde qui a parcouru le même chemin optique dans le sens inverse. Ces deux ondes réciproques qui retournent vers la source ont une différence de phase nulle puisqu'elles ont parcouru exactement le chemin optique. Ces deux ondes interfèrent constructivement. La luminance diffusée dans la direction de la source est donc exaltée, mais cette exaltation ne peut être prévus par l'ETR classique. Ce phénomène a été observé pour la première fois dans le domaine de l'optique au milieu des année 80 (Kuga et Ishimaru 1984; Wolf et Maret 1985; van Albada et Lagendijk 1985). mais était connu depuis bien longtemps par les physiciens étudiant la conduction des électrons (le phénomène est appelé localisation faible) dans un milieu désordonné et par les radaristes. La

6. Voir aussi les publications de Wolf (1978), Littlejohn et Winston (1993), Littlejohn et Winston (1995) et le livre de Apresyan et Kravtsov (1996).

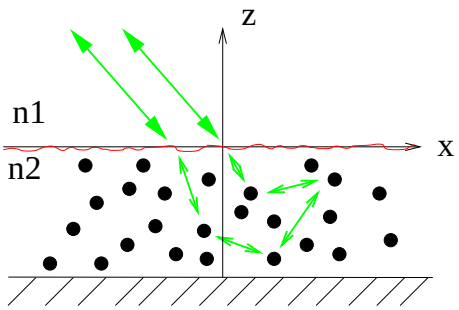


FIG. I.6 – *La rétrodiffusion cohérente ou localisation faible*

rétrodiffusion cohérente pour la lumière apparait dès qu'un système diffuse de multiple fois la lumière. Réciproquement, si on observe une onde rétrodiffusée exaltée, alors c'est que le milieu diffuse de multiples fois la lumière.

Localisation forte

Le phénomène de rétrodiffusion cohérente est appelé localisation faible par les physiciens du solide par analogie au phénomène de localisation forte. Ce concept fut imaginé par Anderson (1957) pour expliquer l'absence du phénomène de diffusion des électrons dans un cristal conducteur contenant des défauts aléatoirement disposés dans l'espace. Cette absence de diffusion conduit à une transition conducteur-isolant. Ce phénomène purement ondulatoire pourrait s'expliquer par

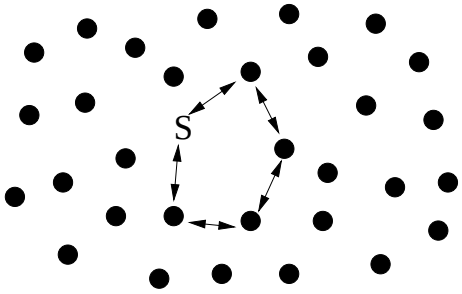


FIG. I.7 – *Représentation schématique du phénomène de localisation forte.*

l'image suivante: supposons que d'un point source S quelconque dans un milieu diffusant rayonne une onde. De multiples chemins peuvent être parcourus de ce point S dans le milieu diffusant puis revenir à son point d'origine. Nous en avons dessiné un particulier Fig.I.7. La réciprocité des équations de Maxwell implique que le chemin peut être emprunté dans les deux sens. Comme le chemin est identique, alors les ondes sont en phases à leur retour au point source. Par conséquent les deux ondes interfèrent constructivement. De nombreux autres chemins existent et participent au phénomène. Par conséquent la densité d'énergie au niveau du point source est importante. Et s'il y a plus d'énergie en ce point, la conservation de l'énergie implique qu'il y en ait moins ailleurs. Chaque diffuseur peut être par la suite considéré comme un point source de rayonnement. Et chacun de ces points concentrent la densité d'énergie sur lui même à cause de la diffusion multiple. Par conséquent l'onde à beaucoup plus de difficultés à se transporter, elle est localisée.

Le phénomène de localisation forte pour la lumière devrait s'observer pour un système diffusant de multiple fois et pour des libres parcours moyen de diffusion très petits (proche ou inférieur à la longueur d'onde). Remarquons que cette condition sur le libre parcours moyen très petite n'est pas nécessaire pour le phénomème de localisation faible contrairement au phénomène de localisation forte.

De nombreuses équipes tentent de détecter le phénomène de localisation forte pour la lumière, des ondes radio ou des ondes acoustiques[7] avec dans l'idée de mieux comprendre la localisation forte pour les électrons (John 1991).

A priori, le transport de la lumière dans un régime de localisation forte ne peut en aucun cas être pris en compte par une approche radiative incohérente. Supposons que e est l'épaisseur d'un milieu diffusant. Alors que l'ETR prévoit que la densité d'énergie de la lumière diffuse décroit pour un système très épais et non-absorbant en $1/e$, en régime de localisation forte, la densité d'énergie devrait décroitre en $e^{-e/l_{loc}}$ où l_{loc} est la longueur de localisation (Anderson 1985).

I.5 Propriétés radiatives d'une couche diffusante et absorbante

Dans de nombreux systèmes diffusants comme la peau ou une peinture chargée dans l'infrarouge ou pour l'étude de la diffusion de la neige dans le domaine des ondes milimétriques, ou encore dans le domaine des ondes radio pour les problèmes de détections d'objets enfouis dans un sol de nature aléatoire, nous avons à faire à une couche diffusant en volume avec d'éventuelles interfaces d'entrée et de sortie rugueuses.

I.5.1 Exemple d'une couche diffusante en volume et en surface: cas d'une peinture

Les peintures diffusantes sont des milieux hétérogènes très complexes. Des particules diélectriques ou métalliques de différentes formes sont plongées dans un milieu liant (fig. I.8). Si on cherche à diffuser au maximum la lumière, il faut que le milieu soit optiquement très épais. Pour obtenir un milieu optiquement très épais, on peut augmenter l'épaisseur de la couche et augmenter la fraction volumique de ces particules. Si cette peinture est destinée à recouvrir un avion, l'augmentation du poids de l'appareil est non-négligeable. Il faut par conséquent la diminuer au maximum. Il est donc préférable que la couche de peinture soit fine, mais fortement chargée en particules pour maintenir un fort pouvoir diffusant. L'épaisseur des systèmes étudiés sera de l'ordre de 50 ou 100μm tandis que la fraction volumique de particule peut être comprise entre 1% et 20%. Les particules ont des tailles typiquement comprises entre 0.01 et 10 μm selon si les diffuseurs étaient déjà présent ou si elles ont été rajoutées. Dans le cas de particules diélectriques, les indices réfractifs sont compris entre 1.5 et 5. D'autres part, le milieu hôte est généralement absorbant.

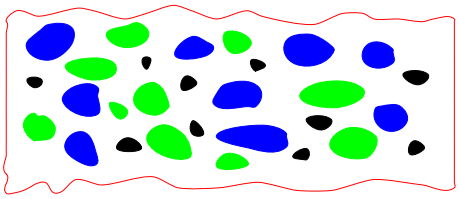


FIG. I.8 – *peinture rugueuse chargée*

L'état de surface de l'entrée de la peinture souvent rugueuse jouera un rôle important. On la caractérisera par deux grandeurs statistiques (Fig.I.9):

- la hauteur quadratique moyenne σ (0-3μm) qui donne à peu près la hauteur moyenne de bosses;

7. Dalichaouch, Armstrong, Schultz, Platzman, et Mc Call (1991),Scheffold, Lenke, Tweer, et Maret (1999), Wiersma, Bartolini, Lagendijk, et Righini (1997),Wiersma, Rivas, Bartolini, Lagendijk, et Righini (1999),Chabanov, Stoytchev, et Genack (1998).

- la longueur de corrélation τ_c (1-20μm) qui est l'ordre de grandeur de la distance entre les bosses.

Le lecteur intéressé par les différentes statistiques de surfaces et leurs effets pourra lire l'ouvrage de Ogilvy (1991) ou bien l'introduction de l'article de revue de Saillard et Sentenac (2001). La

FIG. I.9 – *Grandeurs caractéristiques d'une surface rugueuse*

longueur d'onde d'éclairement ($1 - 10\mu m$) est proche de la taille caractéristique des objets diffusants. Ce qui entraine une difficulté de modélisation car la longueur d'onde n'est ni très grande ni très petite devant la taille des objets; on ne peut ni utiliser une méthode de champ moyen (Calvo-Perez 1999), ni une méthode asymptotique d'optique physique. Comme le système est trop grand pour que l'on puisse résoudre les équations de Maxwell, on utilisera l'Equation de Transfert Radiatif pour modéliser les flux d'énergies directionnels dans le milieu hétérogène.

I.5.2 Bilan d'énergie cohérent et incohérent

Supposons que la couche opaque soit éclairée par une onde collimatée monochromatique qui se propage dans la direction $\mathbf{e}_i$ formant un angle θ_{inc} avec la normale à la surface d'entrée. La luminance n'est pas nécessairement dans le plan d'incidence. La direction de propagation de propagation de la luminance peut éventuellement sortir du plan d'incidence d'un angle azimuthale ϕ_{inc}.

La luminance incidente L_{inc}, qui est collimatée et se propage dans l'angle solide Ω_0 s'écrit dans le vide:

$$L_{inc}(\theta,\phi) = \frac{F_0}{cos(\theta_{inc})}\delta(\Omega - \Omega_0) \tag{I.38}$$

où F_0 est la densité de flux incident $[Wm^{-2}]$ reliée au vecteur de Poynting $\mathbf{S}_{inc}$ d'une onde plane par $F_0 = |\mathbf{S}_{inc}|cos(\theta_{inc})$.

Les propriétés diffusives d'un milieu aléatoire borné par deux couches parallèles sont complètement décrites par la BRDF diffuse (fonction de distribution bidirectionnelle de la réflectance) que l'on note ρ'' et la BTDF diffuse (fonction de distribution bidirectionnelle de la transmittance) notées respectivement ρ'' et τ'' qui relie les luminances diffusées réfléchie et transmise respectivement à la luminance incidente:

$$\begin{aligned} L_{sca}(\theta_{sca},\phi_{sca}) &= \int_{2\pi} \rho''(\theta_{sca},\theta_{inc},\phi_{sca},\phi_{inc}) L_{inc}(\theta_{inc},\phi_{inc}) cos(\theta_{inc}) d\Omega_{inc} \ , \quad \frac{\pi}{2} > \theta_{sca} > 0 \\ L_{sca}(\theta_{sca},\phi_{sca}) &= \int \tau''(\theta_{sca},\theta_{inc},\phi_{sca},\phi_{inc}) L_{inc}(\theta_{inc},\phi_{inc}) cos(\theta_{inc}) d\Omega_{inc} \ , \quad \pi > \theta_{sca} > \frac{\pi}{2} \end{aligned}$$

L'unité de la BRDF et de la BTDF est par conséquent le sr^{-1}.

En insérant la luminance incidente collimatée dans les expressions des BRDF et BTDF on obtient:

$$L_{sca}(\theta_{sca},\phi_{sca}) = \rho''(\theta_{sca},\theta_{inc},\phi_{sca},\phi_{inc}) F_0 \tag{I.39}$$

$$L_{sca}(\theta_{sca},\phi_{sca}) = \tau''(\theta_{sca},\theta_{inc},\phi_{sca},\phi_{inc}) F_0 \tag{I.40}$$

La quantité qui est souvent représentée dans les résultats expérimentaux est la BRDF "corrigée du cosinus" $\rho'' cos(\theta_{sca})$ car c'est la quantité qui est directement reliée au flux mesuré dans l'angle

solide du détecteur. La BRDF est la fonction qui est employée lors des calculs théoriques car cette fonction possède certaines propriétés de symétries que ne possède pas la BRDF corrigée du cosinus.

Dans le milieu supérieur, une partie de la luminance réfléchie est de nature diffuse (L_{sca}), tandis qu'une autre partie que nous notons $L_{r,c}$ est collimatée dans la direction spéculaire. Dans une approche phénoménologique, la luminance collimatée réfléchie correspond à la partie de la luminance incidente qui a été réfléchie spéculairement (qui suit les loi de Snell-Descartes), mais qui n'a pas été diffusée. Plus rigoureusement, la théorie de la diffusion multiple (voir chapitre II), nous apprend que la luminance collimatée est la partie de la lumière réfléchie qui a conservé la propriété de cohérence spatiale de l'onde incidente. De même, dans le milieu inférieur, une partie de la luminance transmise est diffuse (L_{sca}) tandis que l'autre est collimatée ($L_{t,c}$). Les facteurs de réflexions R_c et de transmissions spéculaires T_c sont définis par les rapports suivants:

$$R_c = \frac{L_{r,c}}{L_{inc}} \tag{I.41}$$

$$T_c = \frac{L_{t,c}}{L_{inc}} \tag{I.42}$$

Deux autres quantités physiques importantes appelées facteurs de réflexion et de transmission hémisphériques diffus sont définies par:

$$R_{sca}(\theta_{inc}) = \int_0^{2\pi} \rho''(\theta_{sca}, \theta_{inc}) cos(\theta_{sca}) d\Omega_{sca} \tag{I.43}$$

$$T_{sca}(\theta_{inc}) = \int_0^{2\pi} \tau''(\theta_{sca}, \theta_{inc}) cos(\theta_{sca}) d\Omega_{sca} \tag{I.44}$$

où l'intégration s'effectue sur les directions du demi-espace supérieur 2π stéradians pour la réflexion et du demi-espace inférieur pour la transmission. Ces quantités donnent simplement le rapport entre la puissance diffusée réfléchie (respectivement transmise) dans tous l'espace à la puissance incidente.

Notons que la conservation de l'énergie implique que tout ce qui n'a ni été réfléchie, ni transmis a forcément été absorbé. L'absorptivité a' directionnelle (pour un angle d'incidence particulier) du système est définie par:

$$R_c + T_c + R_{sca} + T_{sca} = 1 - a' \tag{I.45}$$

I.5.3 Facteur d'absorption et d'émissivité directionnelles

Si on s'intéresse aux propriétés radiatives d'un corps opaque par émission thermique, l'absorptivité directionnelle est une quantité très importante. L'émissivité directionnelle est reliée à l'absorptivité directionnelle pour une longueur d'onde selon la loi de Kirchhoff[8]:

$$\epsilon'(\theta_{sca}) = a'(\theta_{inc}) \text{ avec } \theta_{sca} = \theta_{inc} \tag{I.46}$$

Cette relation indique que si l'on est capable de connaître l'absorptivité d'un corps soumis à un flux collimaté incident formant un angle θ_{inc} par rapport à la normale au corps, alors l'émissivité thermique de ce corps (non soumis à un éclairement incident) dans cette même direction est reliée à l'absorptivité par la relation précédente. Quand l'absorptivité d'un corps est calculable par une méthode électromagnétique exacte (analytique par exemple pour le cas d'un dioptre diélectrique plan opaque, ou encore numérique pour un réseau), on obtient par conséquent directement l'émissivité. Cette méthode évite de résoudre le problème difficile de l'évaluation des fluctuations aléatoires du champ électromagnétique au sein du matériau induites par l'agitation thermique.

8. Greffet et Nieto-Vesperinas (1998)

Pour mesurer l'émissivité directionnelle d'un milieu opaque à une température T et à une longueur d'onde donnée, on peut mesurer directement les flux rayonnés à cette longueur. Mais, on peut aussi en éclairant par un laser le milieu froid à la longueur d'onde souhaité puis mesurer les flux diffusés par le milieu pour en déduire l'absorptivité directionnelle identique à l'émissivité directionnel selon la loi de Kirchhoff. Il faut toutefois que les propriétés du milieu (par exemple les indices qui constituent le milieu) dépendent peu de la température.

Dans le cas d'une couche diffusante contenant des particules, le calcul électromagnétique n'est possible numériquement que sur des petits systèmes (de l'ordre de quelques longueur d'onde). Par ailleurs le modèle de transport radiométrique d'une onde électromagnétique peut s'appliquer sur des systèmes de taille beaucoup plus importante (par exemple une peinture chargée de $100\mu m$ d'épaisseur).

Par conséquent le modèle de transfert radiatif permet d'évaluer les propriétés optiques et infrarouges d'une couche diffusante soumise à un éclairement. On peut aussi directement en déduire les propriétés émissives de la couche à une température connue.

I.6 conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre l'approche phénoménologique de la théorie de la diffusion multiple de la lumière qui consiste à décrire le transport de la lumière par une équation de transfert radiatif. Les différentes grandeurs radiométriques telles que la luminance, la BRDF sont définis. Nous avons décrit l'approximation de la diffusion indépendante et sa limite de validité. Au chapitre II, nous exposerons théoriquement comment traiter le cas de la diffusion dépendante. L'approche radiative est basée sur des processus de diffusion incohérents entre eux sur un ensemble de réalisations de systèmes. Par conséquent les phénomènes cohérents tels que la localisation faible et forte ne peuvent être pris en compte par cette approche.

Chapitre II

Préambule à la théorie de la diffusion multiple d'ondes électromagnétiques

II.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre n'est pas d'exposer une description complète de la théorie ondulatoire et stochastique de la diffusion multiple en milieu aléatoire. Pour de plus amples informations sur cette théorie, nous renvoyons le lecteur aux longs articles de Frisch (1967), Frisch (1968), Lagendijk et van Tiggelen (1996) et van Rossum et Nieuwenhuizen (1999) et aux livres de Sheng (1995), Apresyan et Kravtsov (1996) et Tsang et Kong (2001). Nous nous attachons à rappeler uniquement les notions de base et les points clés de cette théorie qui seront nécessaires aux problèmes explorés dans les chapitres ultérieurs. Notamment nous appliquerons ou nous nous appuierons sur cette théorie pour résoudre le problème de la diffusion en milieu absorbant et le problème de la diffusion dépendante en milieu absorbant dans les chapitres III, IV et V. Au chapitre VI, nous développerons un point particulier de la théorie de la diffusion multiple, celui de l'étude du champ cohérent pour le cas d'un milieu diffusant très chargé en particules sphériques et résonantes.

Ce chapitre est organisé de la façon suivante. Nous introduisons dans un premier temps le point de vue stochastique de la propagation de la lumière en milieu aléatoire, et les notions de statistiques nécessaires: le champ moyen, la fonction de corrélation du champ, l'intensité cohérente et incohérente. Puis nous partons de l'équation de propagation en milieu hétérogène pour aboutir à une équation intégrale grâce à l'introduction de tenseurs de Green. Nous rappelons, sans la démontrer, l'équation rigoureuse de Dyson qui permet de définir proprement la notion d'indice effectif. La détermination rigoureuse de l'indice effectif est un moyen détourné pour obtenir le coefficient d'extinction. Pour le cas d'un système composé de diffuseurs non-ponctuels disposés aléatoirement dans l'espace, nous décrivons la méthode des perturbations formelles afin d'obtenir un moyen de calcul de l'indice effectif. Cette approche, formellement rigoureuse, prend en compte tous les phénomènes ondulatoires, mais est extrêmement complexe à résoudre mathématiquement. Des approximations sont nécessaires. Celles que nous appliquerons pour le problème de la diffusion en milieu absorbant et pour le problème de la diffusion dépendante sont présentées.

Enfin, dans la dernière section, nous discutons de la relation entre la luminance et le champ électromagnétique. Nous résumerons rapidement les approximations qui permettent de retrouver l'Équation de Transfert Radiatif (ETR) phénoménologique à partir de l'équation rigoureuse de Bethe-Salpeter (B-S). Ce passage très riche d'informations est la base d'introduction à l'ETR généralisée afin que les paramètres de l'ETR puissent être définis rigoureusement au delà de l'approximation de la diffusion indépendante.

II.2 Théorie statistique de la propagation d'ondes en milieu aléatoire

II.2.1 Intensités cohérente et incohérente

Du point de vue de l'électromagnétisme, un milieu quelconque linéaire figé est un milieu pour lequel l'indice de réfraction n est une variable de l'espace $\mathbf{r} = (x, y, z)$. La réponse de ce système soumis à une onde électromagnétique aura un caractère déterministe. Quand un système comporte un très grand nombre de degrés de liberté, seules les quantités physiques moyennées sont intéressantes. Dans un milieu diffusant (même figé), l'indice de réfraction (bien qu'il soit pour un système donné complètement déterministe) peut se décrire comme une variable aléatoire.

Supposons que le milieu aléatoire soit statistiquement homogène, ce qui revient à dire que les fonctions de corrélation de tous ordres pour l'indice $n(\mathbf{r})$ sont identiques quelles que soient les zones considérées. Si on sélectionne un petit échantillon de ce milieu diffusant où la fonction $n(\mathbf{r})$ est connue, alors la réponse électromagnétique est déterministe. Si on répète l'opération sur un autre échantillon du milieu diffusant, on aura une autre réponse déterministe. Ce qui nous intéresse, ce sont les propriétés statistiques de ces réponses sur un ensemble de N échantillons du milieu diffusant.

Dans une approche statistique, on peut décomposer l'indice en deux termes: l'indice moyenné sur un ensemble de réalisations[1] noté $\langle n \rangle$, et l'indice fluctuant noté δn défini par:

$$n(\mathbf{r}) = \langle n \rangle (\mathbf{r}) + \delta n(\mathbf{r}) \tag{II.1}$$

La fluctuation δn varie entre chaque réalisation de système. Par conséquent, un champ électrique qui se propage dans ce milieu aléatoire possède aussi un caractère aléatoire et se décompose de la même façon.

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{E} \rangle (\mathbf{r}) + \delta \mathbf{E}(\mathbf{r}) \tag{II.2}$$

Nous introduisons ici le moment d'ordre deux du champ appelé fonction de corrélation du champ:

$$\Gamma_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \left\langle E_i(\mathbf{r}) E_j^*(\mathbf{r}') \right\rangle \tag{II.3}$$

L'intensité moyenne est la trace du tenseur Γ_{ij} pour $\mathbf{r}' = \mathbf{r}$:

$$\langle I(\mathbf{r}) \rangle = \sum_i \langle E_i(\mathbf{r}) \cdot E_i^*(\mathbf{r}) \rangle = \sum_i \left\langle |E_i(\mathbf{r})|^2 \right\rangle \tag{II.4}$$

La fonction de corrélation des champs est une fonction très adaptée à l'étude de la cohérence de la lumière dès que des processus stochastiques interviennent[2], comme la propagation en milieu aléatoire, ou encore pour l'étude du rayonnement thermique dû aux fluctuations de sources thermiques[3]. Cette fonction est encore très utilisée dans la description quantique du processus d'absorption et d'émission. On peut développer l'intensité moyenne en fonction du champ moyen et du champ fluctuant en injectant l'équation (II.2) dans (II.4) pour obtenir (on a omis les sommations):

$$\langle I \rangle = |\langle \mathbf{E} \rangle|^2 + \left\langle |\delta \mathbf{E}|^2 \right\rangle = I_{coh} + I_{incoh} \tag{II.5}$$

1. Une réalisation est un échantillon représentatif du milieu diffusant pour lequel l'indice $n(\mathbf{r})$ est connu.

2. Voir Mandel et Wolf (1995) et Goodman (2000)

3. La cohérence du champ rayonné par emission thermique a été étudiée théoriquement par Rytov, Kravtsov, et Tatarskii (1989a) dans le domaine des ondes radio, et repris récemment par Carminati et Greffet (1999), Henkel, Joulain, Carminati, et Greffet (2000) et Shchegrov, Joulain, Carminati, et Greffet (2000). Une démonstration expérimentale est présentée par Greffet, Carminati, Joulain, Mulet, Mainguy, et Chen (2002) dans le domaine des ondes infrarouges.

où les intensités cohérentes et incohérentes sont définies par:

$$I_{coh} = |\langle \mathbf{E} \rangle|^2 \quad \text{(II.6)}$$

$$I_{incoh} = \langle |\delta \mathbf{E}|^2 \rangle = \langle |\mathbf{E}|^2 \rangle - |\langle \mathbf{E} \rangle|^2 \quad \text{(II.7)}$$

II.2.2 Densité de probabilité

Quand un milieu diffusant est composé d'une assemblée de diffuseurs disposés aléatoirement dans l'espace, alors du point de vue de la description statistique des processus de diffusion, les variables aléatoires sont les positions de diffuseurs $\mathbf{R_i}$ avec $i = 1, 2, .., N$ quand les diffuseurs sont identiques et sphériques. La forme, l'indice et l'orientation des diffuseurs peuvent dans le cas général être d'autres variables aléatoires. Les positions des diffuseurs sont généralement corrélées. La moyenne doit par conséquent s'effectuer sur les positions possibles des diffuseurs. La densité de probabilité jointe à N diffuseurs $P_N(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_N})$ est définie comme la densité de probabilité que les diffuseur $i, j, k...$ soient en $\mathbf{R_i}, \mathbf{R_j}, \mathbf{R_k}...$ sachant que la densité de probabilité est normalisée suivant:

$$\int_{V^N} P_N(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_N}) d^3\mathbf{R_1}...d^3\mathbf{R_N} = 1 \quad \text{(II.8)}$$

où V est le volume permis où peuvent se mouvoir les centres des diffuseurs. La moyenne statistique d'une fonction f pour un système contenant N diffuseurs est:

$$\langle f \rangle = \int_{V^N} f(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_N}) P_N(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_N}) d^3\mathbf{R_1}...d^3\mathbf{R_N} \quad \text{(II.9)}$$

On peut introduire la fonction de probabilité conditionnelle à S variables($S < N$) comme:

$$P_S(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_S}) = \int_{V^{N \perp S}} P_N(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_N}) d^3\mathbf{R_{S+1}}...d^3\mathbf{R_N} \quad \text{(II.10)}$$

Si f est une fonction qui ne dépend que de la position de S diffuseurs disposés en $\mathbf{R_1}$, $\mathbf{R_2}$ et ... $\mathbf{R_S}$, sa moyenne statistique peut se calculer via la fonction de probabilité conditionnelle:

$$\langle f \rangle = \int_{V^S} f(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, ..., \mathbf{R_S}) P_S(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2}, .., \mathbf{R_S}) d^3\mathbf{R_1}...d^3\mathbf{R_S} \quad \text{(II.11)}$$

II.3 Équation intégrale pour le champ électrique

Considérons un milieu non-limité dans lequel la permittivité diélectrique ϵ est une fonction quelconque de l'espace, i.e. nous ne précisons pas de quoi est constitué le milieu. Par conséquent, la méthode que nous allons introduire peut s'appliquer quelle que soit la géométrie du système.

II.3.1 Les sources de diffusion

A partir des équations de Maxwell, l'équation de propagation pour le champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ dans un milieu où la permittivité ϵ dépend d'une variable de l'espace $\mathbf{r}$ peut s'écrire de la façon suivante[4]:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0 \mathbf{J_{ext}} \quad \text{(II.12)}$$

où $\mathbf{J_{ext}}$ est le courant extérieur crée par le champ incident.

4. Le symbole $\times$ désigne le produit vectoriel

On introduit ici la notion d'hétérogénéité par rapport à un milieu de référence de permittivité ϵ_{ref} qui n'est pour l'instant pas précisée. En soustrayant chaque membre de l'équation II.12 de la quantité $\frac{\omega^2}{c^2}[\epsilon(\mathbf{r}) - \epsilon_{ref}]$ et en additionnant la quantité $\frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_{ref}$, l'équation de propagation prend la forme suivante :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_{ref}\mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0\mathbf{J}_{ext} + \frac{\omega^2}{c^2}[\epsilon(\mathbf{r}) - \epsilon_{ref}]\mathbf{E}(\mathbf{r}) \tag{II.13}$$

Si le champ diffusé $\mathbf{E}_{sca}$ est défini par:

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \mathbf{E} - \mathbf{E}_{ref}(\mathbf{r}) \tag{II.14}$$

où le champ de référence $\mathbf{E}_{ref}(\mathbf{r})$ est tel qu'il satisfait à une équation de propagation dans un milieu homogène de permittivité ϵ_{ref}:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_{ref}(\mathbf{r}) - \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_{ref}\mathbf{E}_{ref}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0\mathbf{J}_{ext} \tag{II.15}$$

Par conséquent, le champ diffusé satisfait à:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) - \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_{ref}\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}[\epsilon(\mathbf{r}) - \epsilon_{ref}]\mathbf{E}(\mathbf{r}) \tag{II.16}$$

Cette formulation permet clairement d'interpréter le terme de droite comme une source de champ diffus. En d'autres termes, les hétérogénéités sont responsables de la création d'un champ diffus par rapport à un milieu de référence homogène de permittivité ϵ_{ref}. Les fluctuations spatiales de la permittivité sont des sources pour le champ diffusé.

II.3.2 Construction d'une équation intégrale

L'introduction d'un tenseur de Green permet la construction d'une équation intégrale pour le champ. Le tenseur de Green $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ qui correspond au problème de la recherche du champ électrique total dans le milieu hétérogène (équation II.12) est solution de[5]:

$$\nabla \times \nabla \times \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon(\mathbf{r})\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\overleftrightarrow{\mathbf{I}} \tag{II.17}$$

où $\overleftrightarrow{I}$ est l'opérateur tensoriel unité. $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ est la solution du problème de la propagation d'ondes dans le cas particulier d'une source ponctuelle. Quand $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ est connu, le champ électrique total s'obtient simplement par[6]:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0 \int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \tag{II.18}$$

Malheureusement, obtenir $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ est extrêmement complexe et dépend de la position exacte des hétérogénéités. Avec l'aide de l'équation de propagation (II.16) dans le milieu de référence avec des sources hétérogènes, on peut utiliser la fonction tensorielle de Green $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{\mathbf{ref}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ qui dans un milieu libre de permittivité ϵ_{ref} est solution de:

$$\nabla \times \nabla \times \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_{ref}\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\overleftrightarrow{\mathbf{I}} \tag{II.19}$$

5. Le produit vectoriel $\times$ entre un vecteur et un tenseur est bien défini (Tai 1993).
6. $d^3\mathbf{r}'$ est une notation pour $dxdydz$.

Contrairement au tenseur de Green du milieu quelconque $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r},\mathbf{r}')$, le tenseur de Green pour un système homogène $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r},\mathbf{r}')$ est parfaitement connu (voir annexe A). Notons que l'invariance par translation du milieu de référence, implique que ce tenseur de Green ne dépende que de la différence entre $\mathbf{r}$ et $\mathbf{r}'$, contrairement à la fonction tensorielle de Green en milieu inhomogène:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \tag{II.20}$$

Les équations intégrales pour le champ de référence et le champ diffusé peuvent maintenant s'écrire:

$$\mathbf{E}_{ref}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0 \int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \tag{II.21}$$

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}\int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')[\epsilon(\mathbf{r}')-\epsilon_{ref}]\mathbf{E}(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \tag{II.22}$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_{ref}(\mathbf{r}) + \frac{\omega^2}{c^2}\int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')[\epsilon(\mathbf{r}')-\epsilon_{ref}]\mathbf{E}(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \tag{II.23}$$

II.3.3 Notation opératorielle

Deux opérateurs linéaires $\mathbf{V}$ and $\mathbf{G}_{ref}$ sont introduits et définis par:

$$\mathbf{V}:\mathbf{E}(\mathbf{r}) \longrightarrow \frac{\omega^2}{c^2}\left[\epsilon(\mathbf{r})-\epsilon_{ref}\right]\mathbf{E}(\mathbf{r}) \tag{II.24}$$

et

$$\mathbf{G}_{ref}:\mathbf{E}(\mathbf{r}) \longrightarrow \int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\mathbf{E}(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \tag{II.25}$$

L'équation intégrale pour le champ électrique peut maintenant se réécrire dans une notation compacte sous la forme suivante:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E} \tag{II.26}$$

Cette équation de type Lipmann-Schwinger[7] est le point de départ de la théorie de la diffusion multiple pour un système quelconque. On peut réinjecter le champ électrique total dans la partie droite de l'équation puis réitérer à l'infini afin d'éliminer complètement le champ total dans la partie droite. On obtient alors un développement formel:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E} \tag{II.27}$$

$$= \mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E}_{ref} + ... \tag{II.28}$$

$$= \sum_{n=0}^{+\infty}(\mathbf{G}_{ref}\mathbf{V})^n\mathbf{E}_{ref} \tag{II.29}$$

On a par ailleurs une équation analogue pour la fonction de Green[8]:

$$\mathbf{G} = \mathbf{G}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{G} = \mathbf{G}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\sum_{n=0}^{+\infty}(\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref})^n\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref} = \mathbf{G}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{L}\mathbf{G}_{ref} \tag{II.30}$$

avec

$$\mathbf{L} \equiv \sum_{n=0}^{+\infty}(\mathbf{V}\mathbf{G}_{ref})^n\mathbf{V} \tag{II.31}$$

7. On parle aussi d'équation fermée.

8. On peut raisonner sur les fonctions de Green plutôt que sur les champs électriques puis obtenir les champs par la relation $\mathbf{E} = \mathbf{G}\mathbf{J}$.

L'équation de la diffusion multiple (II.26) peut être utilisée dans toutes sortes de problèmes comme par exemple celui de l'intéraction d'une pointe placée à une distance nanométrique d'une surface pour des applications de microscopie en champ proche (Greffet et Carminati 1997). L'approximation de Born souvent utilisée quand le champ total diffère peu du champ de référence, consiste à ne conserver que la première correction au champ de référence.

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{V}\mathbf{E}_{ref}$$

L'équation de la diffusion multiple (II.26) est une équation intégrale qui est longue à résoudre numériquement car il faut discrétiser l'intégrale et mettre le problème sous la forme d'une équation matricielle linéaire. Alors que sous l'approximation de Born, l'expression du champ (II.32) s'obtient directement par le calcul de l'intégrale.

II.3.4 Cas d'un milieu aléatoire et choix du milieu de référence

Le milieu est considéré aléatoire quand la permittivité diélectrique est une variable fluctuante dans l'espace. Dans l'équation de la diffusion multiple, les opérateurs à variables aléatoires sont la fonction de Green du problème complet $\mathbf{G}$ et l'opérateur $\mathbf{L}$. La valeur moyenne de l'équation de la diffusion multiple pour la fonction de Green (II.30) est donc:

$$\langle \mathbf{G} \rangle = \mathbf{G}_{ref} + \mathbf{G}_{ref} \langle \mathbf{L} \rangle \mathbf{G}_{ref} \tag{II.32}$$

La suite des manipulations de cette équation dépend du type de milieu aléatoire considéré, c'est à dire de ces éventuelles symétries et corrélations.

Par exemple, le choix du milieu de référence est un point important. Pour écrire la théorie des fortes fluctuations Tsang et Kong (1981)[9] ont choisi de décrire les hétérogénéités dans le milieu effectif du milieu aléatoire, dans la limite du régime d'homogénéisation[10].

La théorie des fortes fluctuations a été développée pour un milieu statistiquement homogène. Mais il est possible de l'exploiter pour modéliser la diffusion par une surface rugueuse. Une surface rugueuse peut également être vue comme un milieu aléatoire, mais à statistiques inhomogènes. On peut suivant Sentenac et Greffet (1998) et Calvo-Perez, Sentenac, et Greffet (1999) découper une surface rugueuse en un ensemble de couches parallèles et considérer chaque couche comme un milieu statistiquement homogène dans lequel les hétérogénéités sont des sources de champ et d'intensité diffuse. Le milieu de référence est donc un milieu multicouches à gradient d'indice dont il faut calculer le tenseur de Green.

Pour décrire la propagation d'ondes dans un milieu contenant des objets identiques et aléatoirement disposés dans l'espace, Frisch (1968) choisit comme milieu de référence le milieu hôte dans lequel baignent les diffuseurs. C'est cette méthode que nous décrirons en détail dans la section II.5.

II.4 Milieu effectif pour le champ moyen

II.4.1 Une équation fermée pour le champ moyen: l'équation de Dyson

Dyson montre rigoureusement[11] qu'il existe un opérateur $\mathbf{\Sigma}$ appelé opérateur de masse tel que la fonction de Green moyenne satisfasse à une équation fermée de Lipmann-Schwinger:

$$\langle \mathbf{G} \rangle = \mathbf{G}_{ref} + \mathbf{G}_{ref}\mathbf{\Sigma} \langle \mathbf{G} \rangle \tag{II.33}$$

9. Voir aussi les livres de Tsang, Kong, et Shin (1985) et Tsang et Kong (2001).

10. Le régime d'homogénéisation est atteint pour des longueurs d'ondes très grandes devant la taille des hétérogénéités. Dans ce cas, le milieu est vu par l'onde incidente comme un milieu homogène et ne diffuse pas. L'indice effectif de ce milieu peut être évalué par une théorie de champ effectif comme par exemple la loi de Bruggeman (1935).

11. Pour la première fois dans les publications de Dyson (1949a) et Dyson (1949b)

L'équation de Dyson démontre que le champ électrique total moyen dans un milieu hétérogène à statistiques homogènes satisfait à une équation de propagation dans un milieu homogène. Ce milieu dépend de l'opérateur $\mathbf{\Sigma}$. On apprend que les solutions pour le champ moyen sont des ondes planes qui conservent leurs propriétés de cohérence et de polarisation durant la propagation. Le champ moyen peut, par conséquent, interférer avec toutes autres ondes cohérentes avec elle. On pourra alors utiliser toute méthode expérimentale qui nécessite par exemple une onde cohérente spatialement. Par exemple, on peut séparer le champ moyen cohérent du champ diffus incohérent par une méthode classique de filtrage spatial[12].

II.4.2 Notion d'indice effectif

Montrons comment l'équation de Dyson permet d'introduire la notion d'indice effectif pour le champ moyen. Généralement, l'opérateur de masse dans l'espace direct dépend de deux variables d'espace. Considérons un milieu statistiquement homogène, autrement dit un milieu qui est en moyenne invariant par translation. L'opérateur de masse est par conséquent inchangé par une translation de vecteur $\mathbf{R}$:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_2) = \overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r}_1-\mathbf{R},\mathbf{r}_2-\mathbf{R}) \tag{II.34}$$

Cette propriété implique que cet opérateur ne dépende que de la différence entre $\mathbf{r}_1$ et $\mathbf{r}_2$.

$$\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_2) = \overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2) \tag{II.35}$$

L'opérateur de masse et sa transformée de Fourier sont reliés par les relations suivantes:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \int \overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}}(\mathbf{k},\mathbf{k}')e^{i(\mathbf{kr}-\mathbf{k}'\mathbf{r}')}\frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}\frac{d^3\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} \tag{II.36}$$

$$\overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}}(\mathbf{k},\mathbf{k}') = \int \overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r},\mathbf{r}')e^{i(-\mathbf{kr}+\mathbf{k}'\mathbf{r}')}d^3\mathbf{r}d^3\mathbf{r}' \tag{II.37}$$

Les variables $\mathbf{k}'$ et $\mathbf{k}$ s'interprètent respectivement comme des vecteurs d'ondes d'entrée et de sortie. L'invariance par translation impose aussi que le vecteur d'onde de sortie soit identique au vecteur d'onde d'entrée. Alors, la TF de l'opérateur de masse à une seule variable est reliée à la TF à deux variables par:

$$\overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}}(\mathbf{k},\mathbf{k}') = (2\pi)^3\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}}(\mathbf{k}) \tag{II.38}$$

où $\overset{\sim}{\overleftrightarrow{\Sigma}}(\mathbf{k})$ est l'opérateur de masse dans la direction avant[13], et on a:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \int \overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}}(\mathbf{k})e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')}\frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \tag{II.39}$$

En notation développée, l'équation de Dyson (II.33) s'écrit explicitement:

$$\begin{aligned}\langle\overleftrightarrow{\mathbf{G}}\rangle(\mathbf{r}-\mathbf{r}') &= \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') + \int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r_1})\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r_1}-\mathbf{r_2})\langle\overleftrightarrow{\mathbf{G}}\rangle(\mathbf{r_2}-\mathbf{r}')d^3\mathbf{r_1}d^3\mathbf{r_2} \\ &= \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') + \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_{ref}(\mathbf{r})\otimes_{\mathbf{r}}\overleftrightarrow{\mathbf{\Sigma}}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\otimes_{\mathbf{r}'}\langle\overleftrightarrow{\mathbf{G}}\rangle(\mathbf{r}')\end{aligned} \tag{II.40}$$

12. On peut pour cela focaliser l'onde cohérente en point grâce à une lentille. Le champ dans le plan de focale d'une lentille est la transformée de Fourier spatiale du champ. Les basses fréquences se focalisent près de l'axe optique. Plus la fréquence spatiale d'une onde est élévée plus elle s'éloigne de l'axe optique. On peut par conséquent filtrer les ondes de basses fréquences spatiales grâce à un diaphragme percé d'un petit trou. Comme les ondes incohérentes possèdent de plus fortes fréquences spatiales, elles seront arrêtées par le trou. Voir le livre de Goodman (1996) pour le dispositif expérimental ou encore une application de ce dispositif pour la mesure de l'atténuation d'une onde cohérente dans l'article de Hespel, Mainguy, et Greffet (2001) .

13. La direction avant est définie par le vecteur d'onde incident.

où $\otimes_{\mathbf{r}}$ est le produit de convolution pour la variable $\mathbf{r}$. Si on prend la transformée de Fourier de (II.40), les produits de convolutions se transforment en de simples produits multiplicatifs [14].

$$\langle \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}} \rangle (\mathbf{k}) = \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_{ref} (\mathbf{k}) + \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_{ref} (\mathbf{k}) \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{\Sigma}}} (\mathbf{k}) \langle \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}} \rangle (\mathbf{k}) \tag{II.41}$$

En factorisant le tenseur de Green moyen, on a:

$$\left[\mathbf{I} - \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_{ref} (\mathbf{k}) \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{\Sigma}}} (\mathbf{k}) \right] \langle \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}} \rangle (\mathbf{k}) = \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_{ref} (\mathbf{k}) \tag{II.42}$$

On injecte dans (II.42) l'expression du tenseur de Green (équation A.14), on obtient:

$$\left[\mathbf{I} - \frac{\mathbf{P}(\mathbf{k})}{k^2 - \epsilon_{ref} \frac{\omega^2}{c^2}} \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{\Sigma}}} (\mathbf{k}) \right] \langle \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}} \rangle (\mathbf{k}) = \frac{\mathbf{P}(\mathbf{k})}{k^2 - \epsilon_{ref} \frac{\omega^2}{c^2}} \tag{II.43}$$

où $\mathbf{P}(\mathbf{k})$ est l'opérateur transverse, i.e. qui prend la partie transverse à $\mathbf{k}$ d'un vecteur. La fonction de Green moyenne prend la forme suivante:

$$\langle \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}} \rangle (\mathbf{k}) = \frac{\mathbf{P}(\mathbf{k})}{k^2 - \epsilon_{ref} \frac{\omega^2}{c^2} - \mathbf{P}(\mathbf{k}) \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{\Sigma}}} (\mathbf{k})} = \frac{\mathbf{P}(\mathbf{k})}{k^2 - \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{k}}}^2_{eff} (\mathbf{k})} = \frac{\mathbf{P}(\mathbf{k})}{k^2 - \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\boldsymbol{\epsilon}}}_{eff} \frac{\omega^2}{c^2}} \tag{II.44}$$

où l'on a défini le vecteur d'onde effectif et la permittivité effective par:

$$\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{k}}}^2_{eff} (\mathbf{k}) \equiv \epsilon_{ref} \frac{\omega^2}{c^2} + \mathbf{P}(\mathbf{k}) \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{\Sigma}}} (\mathbf{k}) \text{ et } \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\boldsymbol{\epsilon}}}_{eff} (\omega, \mathbf{k}) \equiv \epsilon_{ref} + \frac{\mathbf{P}(\mathbf{k}) \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{\Sigma}}} (\mathbf{k})}{\frac{\omega^2}{c^2}} \tag{II.45}$$

La relation (II.44) indique clairement que le tenseur de Green moyen est le tenseur de Green d'un milieu libre homogène de permittivité $\boldsymbol{\epsilon_{eff}}$. Ce milieu est appelé milieu effectif pour le champ moyen. Si le milieu est statistiquement isotrope, la permittivité effective devient un scalaire:

$$\overset{\sim}{\epsilon}_{eff} (\omega, k) \equiv \epsilon_{ref} + \frac{\overset{\sim}{\Sigma} (k)}{\frac{\omega^2}{c^2}} \tag{II.46}$$

Le pôle de la fonction de Green dans l'espace de Fourier fixe le nombre d'onde dans l'espace direct, donc nous avons l'identité suivante:

$$k^2 \equiv k^2_{eff}. \tag{II.47}$$

Par conséquent le nombre d'onde effectif satisfait à l'équation suivante:

$$\tilde{k}^2_{eff} (\omega, k_{eff}) = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_{ref} + \overset{\sim}{\Sigma} (k_{eff}) \tag{II.48}$$

et la permittivité effective et l'indice effectif s'obtiennent simplement par:

$$\overset{\sim}{\epsilon}_{eff} (\omega, k_{eff}) = \frac{k^2_{eff}}{k^2_0} = \epsilon_{ref} + \frac{\overset{\sim}{\Sigma} (k_{eff})}{k^2_0} \tag{II.49}$$

$$n_{eff} = \frac{k_{eff}}{k_0} \tag{II.50}$$

avec $k_0 = \frac{\omega}{c}$

Cette relation définit le nombre d'onde effectif pour une onde plane et son indice effectif $n_{eff} \equiv \sqrt{\epsilon_{eff}}$.

14. Ceci montre un interêt supplémentaire de la notation compacte: elle est identique que l'on travaille dans l'espace direct ou dans l'espace de Fourier.

II.4.3 Lien entre le coefficient d'extinction et l'indice effectif

L'indice effectif décrit comment le champ moyen se propage dans le milieu diffusant. Si le champ moyen est une onde plane monochromatique de pulsation ω qui se propage dans le milieu effectif homogène dans une direction z, on peut l'écrire:

$$< \mathbf{E}(z) >=< \mathbf{E}_0 > e^{ik_0 Re(n_{eff})z} e^{-k_0 Im(n_{eff})z} \tag{II.51}$$

La partie réelle de l'indice effectif joue un rôle sur la phase de l'onde tandis que la partie imaginaire décrit l'atténuation d'une onde plane à cause de la diffusion et de l'absorption. L'indice effectif dans un milieu diffusant est toujours complexe même si le milieu n'est pas absorbant puisque la diffusion tend à atténuer le champ moyen. Si le milieu diffusant contient une forte proportion de diffuseurs, la partie réelle de l'indice effectif sera notablement différente de celle du liant. Comme la vitesse v de propagation de la phase dans un milieu homogène est donnée par $v = c/n$, alors la modification de la partie réelle de l'indice effectif indique que la vitesse de propagation d'une onde cohérente est modifiée par les diffuseurs. Une autre conséquence est la modification des facteurs de réflexion et de transmission spéculaires à l'interface d'une couche diffusante.

L'intensité associée à une onde plane s'atténue selon:

$$I(z) = I_0 e^{-2k_0 Im(n_{eff})z} \tag{II.52}$$

avec I_0 l'intensité en $z = 0$. Une luminance collimatée associée à une onde plane s'atténue exponentiellement selon la loi de Beer-Lambert:

$$L(z) = I_0 \delta(\omega - \omega_0) e^{-K_{ext} z} \tag{II.53}$$

ω et ω_0 sont les angles solides pour les directions $\mathbf{u}$ et $\mathbf{u_0}$ avec $\mathbf{u_0} = \mathbf{u_z}$; et K_{ext} est le coefficient d'extinction. Comme $L(z) = I(z)\delta(\omega - \omega_0)$, à partir de (II.53) et (II.52), on peut identifier le coefficient d'extinction:

$$K_{ext} = \frac{\omega}{c} 2 Im(n_{eff}) \tag{II.54}$$

Pour obtenir le coefficient d'extinction, il faut calculer l'indice effectif qui s'obtient à partir de l'opérateur de masse. Nous présentons dans la section suivante la méthode classiquement utilisée (Frisch 1968) pour obtenir une expression perturbative de l'opérateur de masse pour un milieu contenant une assemblée de diffuseurs identiques.

II.4.4 Remarques sur la notion de milieu non-local

Une permittivité dans l'espace de Fourier qui dépend d'une fréquence spatiale indique que le milieu est non-local. Dans l'espace direct, la permittivité en un point $\mathbf{r}$ dépend de la valeur d'une fonction dans un volume proche du point $\mathbf{r}$. Un matériau avec ces propriétés est aussi appelé spatialement dispersif (Landau, Lifchitz, et Pitaevskii 1985).

Pour une onde monochromatique, le champ induction électrique dans l'espace de Fourier $\mathbf{D}$ est relié à la permittivité $\widetilde{\epsilon}'$ et au champ électrique $\mathbf{E}$ par la relation constitutive suivante:

$$\widetilde{\mathbf{D}}\,(\mathbf{k}) = \widetilde{\epsilon}'\,(\mathbf{k})\,\widetilde{\mathbf{E}}\,(\mathbf{k}) \tag{II.55}$$

En prenant la transformée de Fourier inverse, on obtient:

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \epsilon'(\mathbf{r}) \otimes \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \int \epsilon'(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\mathbf{E}(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \text{ où} \tag{II.56}$$

$$\epsilon'(\mathbf{r}) = \int \widetilde{\epsilon}'\,(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{kr}} \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \tag{II.57}$$

La relation entre le vecteur induction et le champ électrique est non-locale. C'est pour celà que l'on parle de milieu non-local quand la permittivité à une dépendance en $\mathbf{k}$. Si le milieu est isotrope, alors $\epsilon'(\mathbf{r}) = \epsilon'(|\mathbf{r}|)$ et si $\epsilon'(|\mathbf{r}|)$ est une fonction rapidement décroissante avec $|\mathbf{r}|$ pendant que le champ peut être considéré constant, alors le champ peut sortir de l'intégrale (II.56) et la dispersion spatiale peut être ignorée puisque l'on retrouve une relation locale entre l'induction et le champ électrique.

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \epsilon(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r}) \tag{II.58}$$

où la permittivité diélectrique est:

$$\epsilon(\mathbf{r}) = \int \epsilon'(|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|)d^3\mathbf{r}' \tag{II.59}$$

En d'autres termes, la dispersion spatiale est négligeable quand la zone où $\epsilon'(|\mathbf{r}|)$ prend des valeurs importantes est petite devant l'échelle typique de variation du champ électrique. Pour des ondes propagatives, la taille de la région doit être très petite devant la longueur d'onde du champ. Si une expression de (II.46) est connue (par le calcul de l'opérateur de masse), alors il peut être intéressant d'évaluer l'échelle de non-localité par le calcul de (II.56) pour savoir si cette propriété est négligeable ou non.

Appliquons ces relations au cas du champ moyen dans un milieu aléatoire statistiquement homogène. Le champ moyen se propageant dans un milieu non-limité dans la direction $\mathbf{k_{eff}}$ peut s'écrire comme une onde plane décroissante: $< \mathbf{E}(r) >=< \mathbf{E_0} > e^{i\mathbf{k_{eff}}\mathbf{r}}$ alors de (II.56) et (II.57) nous avons:

$$< \mathbf{D}(\mathbf{r}) >= \int \tilde{\epsilon}' (\mathbf{k}) e^{i\mathbf{kr}} < \mathbf{E_0} > e^{i(\mathbf{k_{eff}}-\mathbf{k})\mathbf{r}'} d^3\mathbf{r}' \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \tag{II.60}$$

On utilise la relation $\int e^{i(\mathbf{k}_{eff}-\mathbf{k})\mathbf{r}'} d^3\mathbf{r}' = (2\pi)^3 \delta(\mathbf{k}_{eff} - \mathbf{k})$ pour obtenir:

$$< \mathbf{D}(\mathbf{r}) >= \tilde{\epsilon}' (\mathbf{k}_{eff}) < \mathbf{E}(\mathbf{r}) > \tag{II.61}$$

Cette relation montre que tant que le champ moyen se propage dans une seule direction, la dispersion spatiale n'intervient pas dans le calcul de l'induction électrique.

L'expression des facteurs de réflexion et de transmission de Fresnel à l'interface de deux milieux semi-infinis locaux s'obtient grâce aux relations de continuité des champs. Dans le cas d'un milieu non-local, les relations de continuité ne sont pas triviales et nécessitent des conditions aux limites supplémentaires qui sont approximatives et sujettes à controverse. Il existe une méthode qui fonctionnne dans le cas d'un milieu local qui consiste à exploiter le théorème d'extinction pour trouver les facteurs de Fresnel (Born et Wolf 1999). Une tentative pour adapter cette méthode au cas d'un milieu non-local a été proposée par Agarwal, Pattanayak, et Wolf (1971) et Agarwal (1973) à la fois pour déduire une relation de dispersion pour des polaritons de surface et pour calculer les facteurs de Fresnel. Toutefois, certaines approximations sont nécessaires et se sont avérées violer la conservation de l'énergie (Bishop et Maradudin 1976). Chen et Nelson (1993b) écrivent les équations de Maxwell dans l'espace de Fourier et montrent qu'il est possible de calculer une expression des facteurs de Fresnel en contournant le délicat problème des conditions aux limites. Une application de cette théorie est étudiée par Chen et Nelson (1993a) pour le cas d'un milieu présentant un couplage exciton-polaritons, et par Nelson (1995) pour le cas d'un milieu optiquement actif.

II.5 Théorie de la diffusion multiple pour des diffuseurs aléatoirement disposés dans un milieu hôte: étude du champ moyen

II.5.1 Introduction

Considérons un milieu dans lequel la permittivité diélectrique ϵ est presque partout égale à ϵ_1 sauf dans des zones limitées de l'espace, i.e. le lieu des diffuseurs. Cette étude se restreint au cas d'un système composé d'une collection de diffuseurs identiques, de forme sphérique de rayon a pour un système 3D (ou de forme cylindrique circulaire de rayon a pour un système 2D), de permittivité égale à ϵ_p. Dans la section précédente, nous avons présenté le point de départ des équations de la diffusion multiple pour un système quelconque dans lequel le milieu de référence n'était pas précisé. Dans cette section, le milieu de référence choisi est le milieu hôte. Par conséquent les hétérogénéités - sources de diffusion - sont en contraste par rapport au milieu hôte. Le potentiel défini par l'équation (II.24) se précise:

$$V(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon_p - \epsilon_1)\theta(\mathbf{r}) \text{ avec} \tag{II.62}$$

$$\theta(\mathbf{r}) = 1 \text{ si } \mathbf{r} \text{ est dans une particule} \tag{II.63}$$

$$\theta(\mathbf{r}) = 0 \text{ sinon} \tag{II.64}$$

Si le champ incident est défini comme le champ qui se propagerait dans le milieu hôte sans diffuseur, l'équation de la diffusion multiple (II.26) pour le champ total satisfait alors à:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_{inc}\mathbf{V}\mathbf{E} \tag{II.65}$$

La théorie présentée dans la suite n'est pas limitée au cas de particules très petites devant la longueur d'onde. Elle pourra s'appliquer au cas de particules fortement diffusantes, c'est à dire ayant un rayon proche de l'ordre de la longueur d'onde, condition nécessaire pour que l'efficacité de diffusion soit proche d'une résonance de Mie. Cette théorie développée par Frisch (1968) a justement été écrite pour traiter le cas de diffuseurs de tailles quelconques. Notons qu'il existe un autre formalisme de la théorie de la diffusion multiple pour des objets de tailles quelconques aléatoirement répartis dans l'espace développé par Lax (1951) qui fait intervenir la notion de champ excitateur sur un diffuseur. Mais les équations de la diffusion multiple développées par Frisch sont formellement différentes de celle de Lax et permettent après moyenne une classification très claire des phénomènes cohérents dus aux corrélations sur la position des diffuseurs. L'équation de la diffusion multiple (II.65) est remaniée afin d'exploiter ce que l'on sait de la diffusion par un diffuseur isolé en entier (par exemple la théorie de Mie pour une sphère ou un cylindre infini).

II.5.2 Cas d'un seul diffuseur: définition de l'opérateur t

Avant de s'attaquer à la diffusion par une collection de particules, étudions le cas d'un milieu hôte ne contenant qu'un seul diffuseur.

Cas d'un diffuseur de taille et de forme quelconque

Si le milieu ne contient qu'un seul diffuseur centré en 0 de permittivité ϵ_p, alors le potentiel $V(\mathbf{r})$ s'écrit :

$$V(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon_p - \epsilon_1)\theta(\mathbf{r}) \tag{II.66}$$

où $\theta(\mathbf{r}) = 1$ si $\mathbf{r}$ est dans le diffuseur et 0 partout ailleurs.

L'équation (II.65) peut être résolue par un développement perturbatif en puissance de $\mathbf{G_1 V}$ selon:

$$\begin{aligned}
\mathbf{E} &= \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{E} \\
&= \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{G}_1\mathbf{V}\mathbf{E}_{inc} + ... \\
&= \sum_{n=0}^{+\infty} (\mathbf{G}_1\mathbf{V})^n \mathbf{E}_{inc} \\
\mathbf{E} &= \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\mathbf{t}\mathbf{E}_{inc} \qquad \text{(II.67)}
\end{aligned}$$

où $\mathbf{t}$, l'opérateur de diffusion d'une particule, est défini en notation compacte par:

$$\mathbf{t} \equiv \mathbf{V} \sum_{n=0}^{+\infty} (\mathbf{G}_1\mathbf{V})^n \qquad \text{(II.68)}$$

Chaque terme d'ordre n s'interprète comme des évènements de n diffusions multiples. En notation développée, l'opérateur $\mathbf{t}$ est:

$$\begin{aligned}
\overleftrightarrow{\mathbf{t}} \quad (\mathbf{r}, \mathbf{r}') &\equiv V(\mathbf{r}) \overleftrightarrow{\mathbf{I}} \, \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + V(\mathbf{r}) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r} - \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') \\
&+ \int V(\mathbf{r}) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r} - \mathbf{r}_1) V(\mathbf{r}_1) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}_1 \\
&+ \int V(\mathbf{r}) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r} - \mathbf{r}_2) V(\mathbf{r}_2) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1) V(\mathbf{r}_1) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}_2 d^3\mathbf{r}_1 \\
&+ ... \qquad \text{(II.69)}
\end{aligned}$$

Le dernier terme que nous avons développé exprime qu'au point $\mathbf{r}'$ se situe une source de rayonnement $V(\mathbf{r}')$ (excitée préalablement par un champ extérieur non-explicité). La propagation du champ rayonné par la source de $\mathbf{r}'$ en $\mathbf{r}_1$ est ensuite décrite grâce au tenseur de Green $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}')$ Ce champ diffusé excite à son tour un autre point source $V(\mathbf{r}_1)$ puis ce rayonnement se propage jusqu'au point $\mathbf{r}_2$ et ainsi de suite jusqu'au point $\mathbf{r}$.

L'opérateur $\overleftrightarrow{\mathbf{t}} \, (\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ appliqué au champ incident $\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}')$ donne le courant induit en $\mathbf{r}$. L'opérateur a une propriété importante que nous utiliserons: le support de l'opérateur est le diffuseur lui-même. En d'autres termes, cela implique que si $\mathbf{r}$ ou l'autre point $\mathbf{r}'$ est en dehors du diffuseur, alors $\overleftrightarrow{\mathbf{t}} \, (\mathbf{r}, \mathbf{r}') = 0$. On vérifie cela à partir de la définition développée de $\mathbf{t}$ (II.69) et de la définition du potentiel $V(\mathbf{r})$ (II.66) qui est nul en dehors de la particule [15].

L'opérateur de diffusion contient toutes les diffusions multiples par les éléments de volume du diffuseur lui même. Par conséquent, les résonances de la diffusion d'une particule liées à sa forme sont contenues dans $\mathbf{t}$. Il peut être intéressant de calculer son expression par son développement perturbatif (II.69) quand la particule est très petite ou diffuse très peu, mais s'il y a une résonance, il devient très vite impossible d'utiliser ce développement. Nous verrons au chapitre III comment on peut relier cet opérateur au résultat de la théorie de Mie afin que l'on puisse traiter le cas d'une particule d'une taille arbitraire qu'elle soit résonante ou non.

15. Remarquons que si le milieu de référence choisi n'était pas le milieu hôte, mais un milieu de permittivité ϵ_{ref}, le potentiel V prendrait les valeurs suivantes:

$$\begin{aligned}
V(\mathbf{r}) &= \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon_p - \epsilon_{ref}) \text{ quand } \mathbf{r} \text{ est dans la particule et} \qquad \text{(II.70)} \\
&= \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon_1 - \epsilon_{ref}) \text{ quand } \mathbf{r} \text{ est en dehors.} \qquad \text{(II.71)}
\end{aligned}$$

Par conséquent, tout point serait dans ce cas une source de diffusion. Le support de l'opérateur de diffusion ne serait plus borné. Et il ne serait *a priori* plus possible d'utiliser cet opérateur dans le cas d'un ensemble de diffuseurs.

Limite de l'opérateur de diffusion en milieu absorbant pour des particules très petites devant la longueur d'onde

Quand le rayon de la particule tend vers 0, la fonction θ devient:

$$\lim_{a\to 0}\theta(\mathbf{r}) = \frac{4}{3}\pi a^3\delta(\mathbf{r}) \tag{II.72}$$

Le calcul de $\mathbf{t}$ contient une infinité d'intégrales difficilement calculables directement à cause de la singularité du tenseur de Green. On peut montrer (Calvo-Perez 1999) que l'on peut réécrire les équations de la diffusion multiple pour le champ dit local. C'est le champ qui est présent sur une particule considérée dû à l'ensemble des particules hormis celle située au point considéré. Par cette méthode, l'opérateur de diffusion se réduit au premier terme mais avec un potentiel V_l local qui s'écrit:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r},\mathbf{r}') = V_l(\mathbf{r})\ \overleftrightarrow{\mathbf{I}}\ \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \text{ avec} \tag{II.73}$$

$$V_l(\mathbf{r}) = \frac{4}{3}\pi a^3\delta(\mathbf{r})3\epsilon_1\frac{\epsilon_p-\epsilon_1}{\epsilon_p+2\epsilon_1}\frac{\omega^2}{c^2} \tag{II.74}$$

En prenant la TF de l'opérateur de diffusion dans l'espace direct, on obtient:

$$\overleftrightarrow{\tilde{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k}_1,\mathbf{k}_1) = 4\pi a^3\frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_1\frac{\epsilon_p-\epsilon_1}{\epsilon_p+2\epsilon_1} \tag{II.75}$$

II.5.3 Cas de N diffuseurs: définition de l'opérateur T

Similairement au cas d'un milieu contenant un seul diffuseur, le potentiel de diffusion d'un milieu contenant N diffuseurs distincts peut s'écrire suivant:

$$V(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon_p-\epsilon_1)\sum_i^N\theta_i(\mathbf{r}) \tag{II.76}$$

où $\theta_i(\mathbf{r}) = 1$ si $\mathbf{r}$ est dans le diffuseur i placé en $\mathbf{R}_i$ et zéro partout ailleurs. Le potentiel de diffusion pour un ensemble de N diffuseurs est la somme du potentiel de diffusion de chaque diffuseur i:

$$V(\mathbf{r}) = \sum_i^N V_i(\mathbf{r}) \text{ où } V_i(\mathbf{r}) \equiv \frac{\omega^2}{c^2}(\epsilon_p-\epsilon_1)\theta_i(\mathbf{r}) \text{ est le potentiel d'un seul diffuseur.} \tag{II.77}$$

Réécrivons l'équation intégrale (II.65) pour le champ total à l'aide de ce nouveau potentiel:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E_{inc}} + \mathbf{G_1}\sum_i^N\mathbf{V}_i\mathbf{E} \tag{II.78}$$

Le développement perturbatif formel de cette équation donne[16]:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\sum_i^N\mathbf{V}_i\mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1\sum_i^N\mathbf{V}_i\mathbf{G}_1\sum_j^N\mathbf{V}_j\mathbf{E}_{inc} \tag{II.80}$$
$$+\mathbf{G}_1\sum_i^N\mathbf{V}_i\mathbf{G}_1\sum_j^N\mathbf{V}_j\mathbf{G}_1\sum_k^N\mathbf{V}_k\mathbf{E}_{inc} + ...$$

16. Par exemple, la forme explicite du troisième terme de l'équation (II.80) est:

$$\int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}-\mathbf{r}')V_i(\mathbf{r}')\ \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}'-\mathbf{r}'')V_j(\mathbf{r}'')\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}'')d^3\mathbf{r}'d^3\mathbf{r}'' \tag{II.79}$$

L'opérateur $\mathbf{T}$ pour un ensemble de N diffuseurs se définit par:

$$\mathbf{T} \equiv \sum_{i}^{N} \mathbf{V}_i + \sum_{i,j}^{N,N} \mathbf{V}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{V}_j + \sum_{i,j,k}^{N,N,N} \mathbf{V}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{V}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{V}_k + ... \tag{II.81}$$

Ainsi l'équation (II.80) se réécrit directement à l'aide de l'opérateur $\mathbf{T}$.

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1 \mathbf{T} \mathbf{E}_{inc} \tag{II.82}$$

De même que pour l'opérateur de diffusion d'une particule $\overset{\sim}{\mathbf{t}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$, l'opérateur à N particules $\overset{\sim}{\mathbf{T}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ appliqué au champ incident en $\mathbf{r}'$ donne le courant en $\mathbf{r}$. Soit $\mathbf{t}_i$ l'opérateur de diffusion de la i^{me} particule défini par:

$$\mathbf{t_i} \equiv \mathbf{V_i} + \mathbf{V_i G_1 V_i} + \mathbf{V_i G_1 V_i G_1 V_i} + \mathbf{V_i G_1 V_i G_1 V_i G_1 V_i} + ... \tag{II.83}$$

L'opérateur $\mathbf{t}_i$ est défini pour une particule centré en $\mathbf{R}_i$. Comme $\mathbf{t}$ est défini pour une particule centré à l'origine, on a la relation:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}_i}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i, \mathbf{r}' - \mathbf{R}_i) \tag{II.84}$$

Il est très intéressant de remarquer (Frisch 1967) que l'opérateur $\mathbf{T}$ peut s'exprimer uniquement en fonction des $\mathbf{t}_i$ avec toutefois une condition de non-interpénétrabilité des diffuseurs.

$$\mathbf{T} = \sum_{i}^{N} \mathbf{t}_i + \sum_{\substack{i,j \\ i \neq j}}^{N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j + \sum_{\substack{i,j,k \\ i \neq j, j \neq k}}^{N,N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_k + \sum_{\substack{i,j,k,l \\ i \neq j, j \neq k, k \neq l}}^{N,N,N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_k \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_l + ... \tag{II.85}$$

où l'on a indiqué que les indices $i, j, k, l...$ successifs doivent être différents. On peut se convaincre de la validité de cette expression en injectant l'équation (II.83) dans (II.85) pour retrouver (II.81).

Cette expression de $\mathbf{T}$ à partir des $\mathbf{t}_i$ est une avancée très importante par rapport à sa définition (II.81) où $\mathbf{T}$ s'exprime en fonction des $\mathbf{V}_i$. Le processus de diffusion simple par une hétérogénéité $\mathbf{V}_i$ est remplacé par un processus de diffusion par une particule entière (considérée par l'équation (II.81) comme un ensemble d'éléments diffusants indépendamment les uns des autres. On peut dès lors s'intéresser à des systèmes contenant des particules de très forte amplitude de diffusion. D'un point de vue technique, l'introduction de $\mathbf{t}$ revient à effectuer une sommation jusqu'à l'infini d'une classe de termes, qui décrive la diffusion multiple à l'intérieur de chaque particule.

La première sommation dans (II.85) représente la somme de tous les évènements de diffusion simple. En d'autre termes le champ incident n'est diffusé qu'une seule fois par chacune des particules jusqu'au point d'observation. La seconde et la troisième sommation représentent respectivement les évènements de diffusion double et triple entre la source de l'onde incidente et le point d'observation.

II.5.4 Développement en essaim de la densité de probabilité

Il est intéressant d'évaluer les statistiques moyennes du champ total. Nous nous intéressons ici uniquement au champ moyen. Dans l'équation (II.82), seules $\mathbf{T}$ et $\mathbf{E}$ sont des fonctions à variables aléatoires, par conséquent la moyenne de (II.82) est:

$$\langle \mathbf{E} \rangle = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1 \langle \mathbf{T} \rangle \mathbf{E}_{inc} \tag{II.86}$$

Il existe une approximation valable pour un milieu très dilué où les positions des diffuseurs sont supposées décorrélées. Sous cette approximation, la densité de probabilité jointe s'écrit:

$$P_N(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, .., \mathbf{R}_N) = P_1(\mathbf{R}_1) P_1(\mathbf{R}_2) ... P_1(\mathbf{R}_N) \tag{II.87}$$

Cette hypothèse n'est pas réaliste quand la fraction volumique de diffuseurs est importante, alors il est utile de développer P_N en essaim (Frisch 1967): tout d'abord, on suppose que la probabilité de présence dans le volume autorisé est uniforme et identique quelle que soit la particule, donc on a:

$$P_1(\mathbf{R}_i) = \frac{1}{V} \tag{II.88}$$

Les P_N peuvent toujours se décomposer de la manière suivante:

$$\begin{aligned} P_2(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j) &= P_1(\mathbf{R}_i)P_1(\mathbf{R}_j)[1 + g_2(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j)] \qquad \text{(II.89)} \\ P_3(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j, \mathbf{R}_k) &= P_1(\mathbf{R}_i)P_1(\mathbf{R}_j)P_1(\mathbf{R}_k)[1 + g_2(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j) + g_2(\mathbf{R}_j, \mathbf{R}_k) + g_2(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_k) \\ &+ g_3(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j, \mathbf{R}_k)] \end{aligned}$$

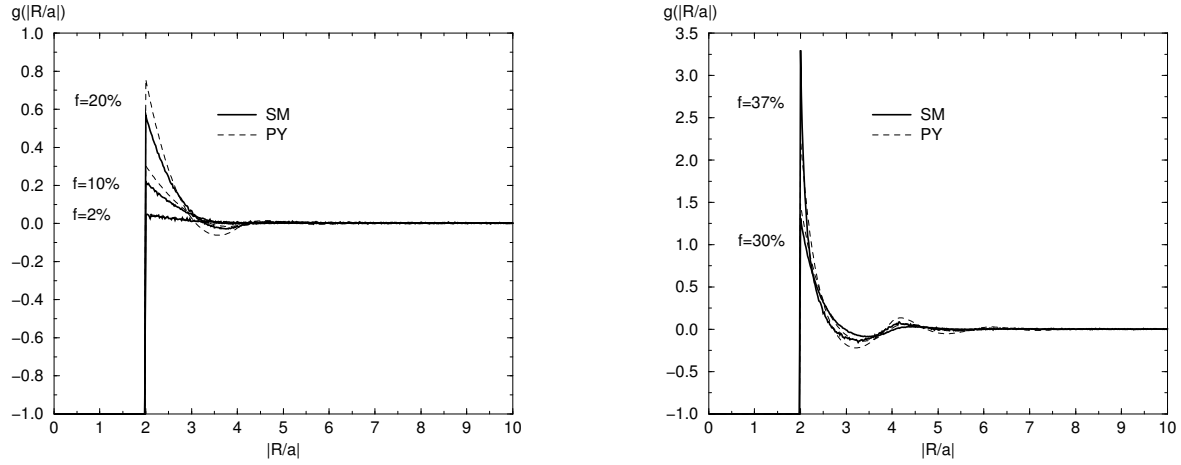
Ces relations définissent les fonctions g_n. Dans cette formulation, les corrélations sont factorisées par les probabilités décorrélés $P_1(\mathbf{R}_i)$. Quand les diffuseurs sont décorrélés, les fonctions g_n s'annulent. Dans le cas d'un milieu où la contrainte sur la position des diffuseurs est que les sphères ne peuvent s'interpénètrer, des corrélations interviennent et les g_n ne peuvent pas être nulles. Par exemple, la fonction de corrélation de paire $g_2(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j)$ qui ne dépend que de la distance séparant deux diffuseurs peut être approchée analytiquement par le modèle de Percus et Yevick (1958) résolue mathématiquement par Wertheim (1963) et utilisé par Tsang, Kong, et Shin (1985); elle peut encore être évaluée par une simulation de type Monte-Carlo (Calvo-Perez 1999). La simulation est très simple à programmer: des diffuseurs sont disposés aléatoirement dans une grande boîte[17] jusqu'à ce que la fraction volumique désirée soit atteinte. Ensuite on crée un histogramme de la distribution des distances interparticules. En d'autres termes le programme compte le nombre de particules dont les distances sont comprises entre R et $R + \Delta R$ où ΔR est un pas que l'on se fixe. Notons que plus le pas choisi est petit, plus il est nécessaire - pour que les statistiques soient bien représentées - que la taille de la boite soit grande. On peut également réitérer le calcul en moyennant les histogrammes obtenus pour un grand nombre de boîtes. On représente sur la figure (II.1) pour des sphères et sur la figure (II.2) pour des cylindres les résultats de la fonction de corrélation $g_2(R/a)$ en fonction de la distance entre les particules. Cette fonction ne dépend que du rapport de la distance inter-centre au rayon des particules. Cette fonction est représentée pour différentes fractions volumiques. Quand $g_2(R/a) = 0$ quel que soit R, cela implique qu'il n'y a pas de corrélation. C'est le cas par exemple quand les particules peuvent s'interpénétrer. Par contre, quand les particules sont indéformables et qu'elles ne peuvent pas s'interpénétrer, alors on a forcément comme on peut le voir sur les figures (II.1) et (II.2) $g_2(R/a) = -1$ quand $R < 2a$, ce qui exprime que la probabilité $P_2(R_i, R_j)$ est nulle quand la distance intercentre est plus petite que deux fois le rayon des particules. Ce résultat est valable quelle que soit la fraction volumique. Pour le cas des fractions volumique inférieures à quelques pour cents, la corrélation à lieu essentiellement pour R compris entre 0 et deux fois le rayon des particules. Une approximation importante appelée en anglais "gas-pair" dans ce cas est d'écrire que:

$$g_2(R/a) = -1 \text{ pour} R < 2a \tag{II.90}$$

$$g_2(R/a) = 0 \text{ pour} R > 2a \tag{II.91}$$

Pour des fractions volumiques plus élevées, des corrélations apparaissent pour R un peu plus grand que $2a$. On observe pour de très fortes fractions volumiques des oscillations. Ces oscillations s'atténuent très rapidement vers 0 au delà de 5 ou 6 rayons de particules. Par conséquent, quand on moyenne en pratique une fonction via la fonction de corrélation, on peut limiter le domaine d'intégration à quelques rayons de particules. La comparaison entre le résultat analytique de Percus-Yevick et la simulation statistique sur la figure (II.1) montre que quelques différences

17. La boîte doit être suffisament grande pour que les effets de bords soient négligeables.



(a) $f = 2\%$, $f = 10\%$, $f = 20\%$ (b) $f = 30\%$, $f = 37\%$

FIG. II.1 – *Fonction de corrélation pour des sphères dures disposées aléatoirement dans l'espace en fonction du rapport de la distance intercentre R et du rayon des sphères a. PY est le résultat obtenu par le modèle de Percus et Yevick tandis SM désigne le résultat de la méthode statistique.*

apparaissent sur la valeur des pics pour les fortes fractions volumiques. Les oscillations sont de fréquences identiques dans les deux cas mais sont légèrement décalées. Toutefois, il ne faut pas oublier que l'effet de ces corrélations n'intervient que de manière perturbative par rapport au premier ordre qui est décorrélé. Le cas des fortes fractions volumiques nécessiterait de toute façon de prendre en compte les fonctions de corrélations d'ordre plus élevé.

II.5.5 Moyenne de l'opérateur de diffusion T: écriture développée

Calculons l'expression de la moyenne de l'opérateur $\mathbf{T}$:

$$\langle \mathbf{T} \rangle = \left\langle \sum_{i}^{N} \mathbf{t}_i \right\rangle + \left\langle \sum_{\substack{i,j \\ i \neq j}}^{N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \right\rangle + \left\langle \sum_{\substack{i,j,k \\ i \neq j, j \neq k}}^{N,N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_k \right\rangle + ... \tag{II.92}$$

Nous explicitons les trois premiers termes de cette série:

- Premier terme: les diffusions simples

$$\begin{aligned} \left\langle \sum_{i}^{N} \mathbf{t}_i \right\rangle &= \sum_{i}^{N} \langle \mathbf{t}_i \rangle \\ &= \sum_{i}^{N} \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r} - \mathbf{R}_i, \mathbf{r}' - \mathbf{R}_i) P_1(\mathbf{R}_i) d^3\mathbf{R}_i \\ &= \frac{N}{V} \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r} - \mathbf{R}, \mathbf{r}' - \mathbf{R}) d^3\mathbf{R} \end{aligned} \tag{II.93}$$

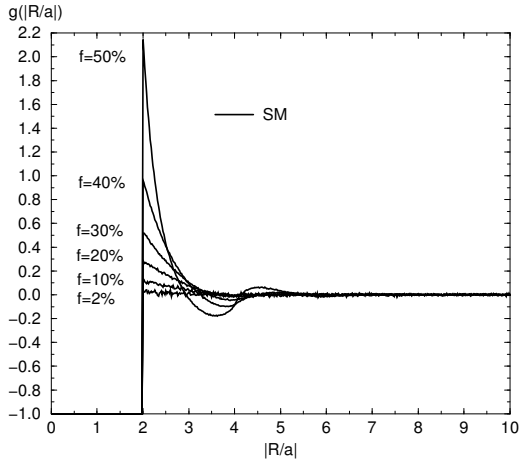


FIG. II.2 – *Fonction de corrélation 2D pour des cylindres durs circulaires parallèles disposés aléatoirement dans l'espace en fonction du rapport de la distance intercentre R et du rayon d'un cylindre a pour des fractions volumiques de 2 à 50%. SM désigne le résultat de la méthode statistique.*

- Second terme: les diffusions doubles

$$< \sum_{\substack{i,j \\ i\neq j}}^{N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j > = \sum_{\substack{i,j \\ i\neq j}}^{N,N} < \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j > \tag{II.94}$$

$$\begin{aligned} &= \sum_{\substack{i,j \\ i\neq j}}^{N,N} \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r} - \mathbf{R}_i, \mathbf{r}_1 - \mathbf{R}_i) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r}_2 - \mathbf{R}_j, \mathbf{r}' - \mathbf{R}_j) \\ &\quad P_2(\mathbf{R}_i, \mathbf{R}_j) d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 d^3\mathbf{R}_i d^3\mathbf{R}_j \\ &= \frac{N(N-1)}{V^2} \int \overleftrightarrow{t} (\mathbf{r} - \mathbf{R}_1, \mathbf{r}_1 - \mathbf{R}_1) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r}_2 - \mathbf{R}_2, \mathbf{r}' - \mathbf{R}_2) \\ &\quad [1 + g_2(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)] d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 d^3\mathbf{R}_1 d^3\mathbf{R}_2 \end{aligned}$$

Finalement, ce résultat peut s'exprimer comme la somme de deux intégrales: celle qui contient une fonction de corrélation et l'autre.

- Troisième terme, premier cas: les diffusions triples avec trois diffuseurs différents (i.e. $k \neq i$).

$$\left\langle \sum_{\substack{i,j,k \\ i\neq j, j\neq k}}^{N,N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_k \right\rangle = \sum_{\substack{i,j,k \\ i\neq j, j\neq k}}^{N,N,N} \langle \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_k \rangle \tag{II.95}$$

$$\begin{aligned} &= \frac{N(N-1)(N-2)}{V^3} \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r} - \mathbf{R}_1, \mathbf{r}_1 - \mathbf{R}_1) \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r}_2 - \mathbf{R}_2, \mathbf{r}_3 - \mathbf{R}_2) \\ &\quad \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_3 - \mathbf{r}_4) \overleftrightarrow{\mathbf{t}} (\mathbf{r}_4 - \mathbf{R}_3, \mathbf{r}' - \mathbf{R}_3) \\ &\quad [1 + g_2(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2) + g_2(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_3) + g_2(\mathbf{R}_2, \mathbf{R}_3) + g_3(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \mathbf{R}_3)] \\ &\quad d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 d^3\mathbf{r}_3 d^3\mathbf{r}_4 d^3\mathbf{R}_1 d^3\mathbf{R}_2 d^3\mathbf{R}_3 \end{aligned}$$

Cette expression peut se décomposer en une somme de cinq intégrales: une sans fonction de corrélation, trois avec une fonction de corrélation de paire et une avec une fonction de corrélation à trois diffuseurs.

- le troisième terme, deuxième cas: les diffusions triples avec deux diffuseurs uniquement (i.e. $k = i$).

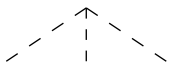
$$\left\langle \sum_{i,j \ i\neq j}^{N,N} \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_i \right\rangle = \sum_{i,j \ i\neq j}^{N,N} \langle \mathbf{t}_i \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_j \mathbf{G}_1 \mathbf{t}_i \rangle \tag{II.96}$$

$$= \frac{N(N-1)}{V^2} \int \overset{\leftrightarrow}{t} (\mathbf{r} - \mathbf{R}_1, \mathbf{r}_1 - \mathbf{R}_1) \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}} (\mathbf{r}_2 - \mathbf{R}_2, \mathbf{r}_3 - \mathbf{R}_2)$$
$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1 (\mathbf{r}_3 - \mathbf{r}_4) \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}} (\mathbf{r}_4 - \mathbf{R}_1, \mathbf{r}' - \mathbf{R}_1) [1 + g_2(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)] \, d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 d^3\mathbf{r}_3 d^3\mathbf{r}_4 d^3\mathbf{R}_1 d^3\mathbf{R}_2$$

II.5.6 Expression de $\langle \mathbf{T} \rangle$ à l'aide de diagrammes

L'expression de la moyenne statistique de l'opérateur $\langle \mathbf{T} \rangle$ est très lourde, pourtant toutes ces intégrales ont une interprétation très simple. Pour réduire les notations sans perdre de vue les interprétations physiques, il est habituel d'utiliser un formalisme diagrammatique. Nous avons vu que $\langle \mathbf{T} \rangle$ s'exprime par une somme d'intégrales grâce au développement en essaim de la fonction de densité de probabilité. Chaque intégrale qui contient une seule fonction N-corrélée est représentée par un amas de diagrammes. Par exemple, l'expression (II.95) est décomposable en une somme de 5 intégrales. Chacune de ces intégrales sera représentée par un diagramme. Suivant Frisch (1967), nous utilisons les conventions suivantes:

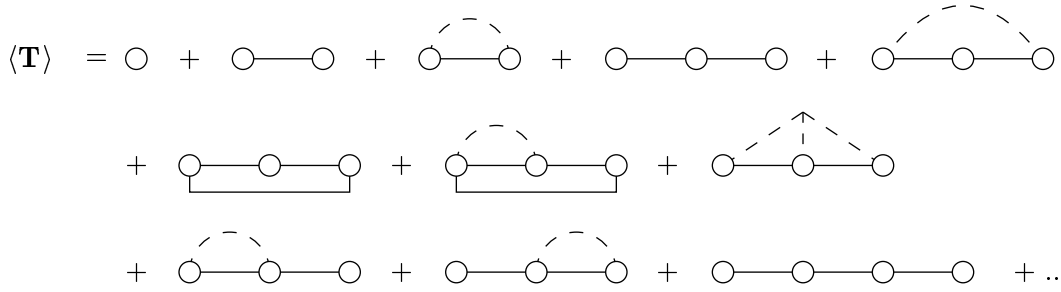
- L'opérateur de Green dans l'espace libre $\mathbf{G_1}$ sera noté par une ligne —— pour représenter une propagation d'un diffuseur à un autre.
- Un processus de diffusion par une particule entière $\mathbf{t}$ sera symbolisé par un cercle vide:
  ○
- Quand une intégrale contient une fonction de corrélation g_J, alors les J opérateurs de diffusion corrélés sont connectés par des lignes hachurées (au dessus de la ligne principale) et reliées par un même sommet:



- Si un diagramme contient des diffuseurs identiques, alors les opérateurs de diffusion qui correspondent à des particules identiques sont reliés par une ligne pleine passant en dessous de la ligne principale:

- De plus, devant chaque diagramme, un facteur non-représenté $\frac{N(N-1)(N-2)..(N-S+1)}{V^S}$ est implicite où S est est le nombre de diffuseurs différents pour le diagramme considéré. Quand N est très grand devant S, ce coefficient est peu différent de $(\frac{N}{V})^S$.

Avec ces conventions, l'opérateur $\mathbf{T}$ se représente de la façon suivante:



Opérateur $\langle T \rangle$ (II.97)

Le premier terme est linéraire en $\frac{N}{V}$, le second en $\left(\frac{N}{V}\right)^2$ etc... Deux diffuseurs successifs dans un diagramme sont obligatoirement différents car dans les sommations discrètes de l'expression (II.92) les indices successifs sont différents. D'autre part, des diffuseurs reliés par des lignes hachurées (diffuseurs dont les positions moyennes sont corrélées) sont forcément différents. Par conséquent ils ne peuvent être reliés par une ligne continue (en dessous de la ligne principale).

II.5.7 L'opérateur de masse pour un ensemble de diffuseurs identiques aléatoirement disposés dans l'espace

L'équation (II.86) exprime une relation entre le champ moyen $\langle \mathbf{E} \rangle$ et la moyenne de l'opérateur de diffusion moyen $\langle \mathbf{T} \rangle$. On peut écrire une équation équivalente pour le tenseur de Green moyen $\langle \mathbf{G} \rangle$:

$$\langle \mathbf{G} \rangle = \mathbf{G}_1 + \mathbf{G}_1 \langle \mathbf{T} \rangle \mathbf{G}_1 \tag{II.98}$$

Cette équation peut être mise sous la forme d'une équation intégrale appelée équation de Dyson:

$$\langle \mathbf{G} \rangle = \mathbf{G}_1 + \mathbf{G}_1 \mathbf{\Sigma} \langle \mathbf{G} \rangle \tag{II.99}$$

où $\mathbf{\Sigma}$ est l'opérateur de masse (ou encore "Self-Energy operator" en anglais).

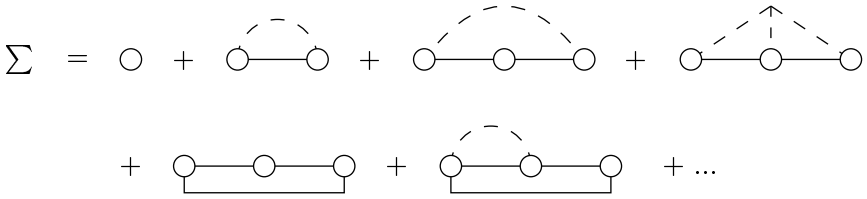
L'opérateur $\mathbf{T}$ peut s'exprimer en fonction de l'opérateur de masse $\mathbf{\Sigma}$. L'équation de Dyson peut se développer par itérations en puissances de $\mathbf{\Sigma}\ \mathbf{G}_1$:

$$\langle \mathbf{G} \rangle = \mathbf{G_1} + \mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1 + \mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1 + \mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1 + ... \tag{II.100}$$

que l'on peut comparer à (II.98) afin d'identifier $\mathbf{T}$.

$$\langle \mathbf{T} \rangle = \mathbf{\Sigma} + \mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma} + \mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma} + \mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma}\mathbf{G}_1\mathbf{\Sigma} + ... \tag{II.101}$$

On peut remarquer que si on prend l'expression suivante pour l'opérateur de masse,



Opérateur de masse (II.102)

alors, on peut retrouver tous les diagrammes contenus dans l'expression diagrammatique de $\langle \mathbf{T} \rangle$ (II.97) en injectant l'expression (II.102) dans l'équation (II.101).

L'opérateur de masse a la particularité d'être la somme de tous les diagrammes qui ne peuvent pas se factoriser. Ce sont ceux qui forment des blocs inséparables connectés entre eux. Il sont facilement reconnaissables car ils sont reliés par des connexions en pointillés (pour les diffuseurs corrélés) ou par des lignes pleines en dessous de la ligne principale pour les diffuseurs qui sont identiques.

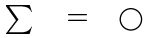
Les diagrammes contenant des diffuseurs identiques qu'ils soient corrélés ou non comme les deux derniers représentés dans (II.102) sont appelés des diagrammes de diffusion récurrente. Ces diagrammes sont particulièrement importants quand on cherche à prendre en compte des phénomènes de localisation. Les propriétés de réciprocité des équations de Maxwell font que ces boucles de diffusion ont deux sens possibles de propagation. Comme le chemin optique parcouru par ces ondes réciproques est identique hormis le sens, ils sont en phase à leur retour au point source. Par conséquent le champ et la puissance par unité de volume sont plus forts au niveau du point

source. S'il y a plus d'énergie au niveau de chaque point source, cela implique qu'il y a en ait moins ailleurs et que l'onde se propage plus difficilement. Ici nous ne parlons que du champ moyen (le champ cohérent), mais des diagrammes du même type existent pour l'intensité diffuse. Le rôle de ces boucles récurrentes a été mis en évidence expérimentalement par Wiersma (1995) et Wiersma, van Albada, van Tiggelen, et Lagendijk (1995)

II.5.8 Approximations de l'opérateur de masse et du coefficient d'extinction

Approximation de Foldy-Twersky

Seul le premier terme du développement de l'opérateur de masse peut se calculer analytiquement sans aucune approximation. L'approximation qui consiste à limiter le développement perturbatif de l'opérateur de masse au premier ordre s'appelle l'approximation de Foldy (1945):



Opérateur de masse pour une distribution très diluée de diffuseurs (II.103)

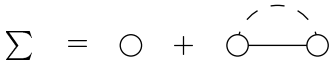
Donc en utilisant (II.49), on obtient la permittivité effective et le coefficient d'extinction

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + \frac{N}{V}\frac{\tilde{t}\ (k_1)}{k_0^2} \text{ et } K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(\sqrt{\epsilon_{eff}}) \tag{II.104}$$

Sous cette approximation, toutes les corrélations et les phénomènes de diffusion récurrente sont négligés. Cette approximation est équivalente à l'hypothèse de la diffusion indépendante habituellement admise pour la modélisation de la diffusion par l'ETR phénoménologique.

Approximation de Keller

On peut suivant Keller (1964) garder les deux premiers termes dans l'opérateur de masse:



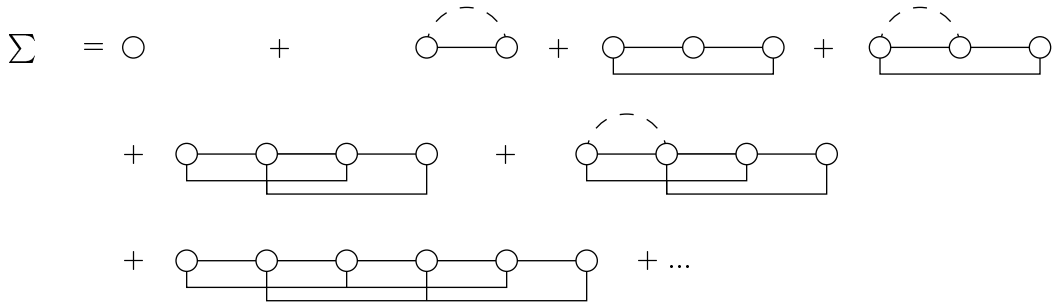
Opérateur de masse pour une distribution de particules faiblement contrastées: (II.105)

Cette approximation permet de prendre en compte le phénomène de diffusion dépendante. Mais elle ne peut prendre en compte des phénomènes de diffusion récurrente et les corrélations à plus de deux particules. Par conséquent, un faible contraste d'indice devrait être indispensable pour que cette approximation soit valable. Le deuxième diagramme est la seconde partie de l'intégrale donnée par II.94 (celle qui contient la fonction de corrélation de paire g_2) dans l'espace direct. C'est la transformée de Fourier de cette intégrale qu'il faut calculer pour obtenir l'indice effectif puis le coefficient d'extinction. Dans la pratique, on ne sait calculer analytiquement cette formule que pour des diffuseurs très petits devant la longueur d'onde et dans l'approximation scalaire.

Nous donnerons des expressions explicites de l'indice effectif sous l'approximation de Foldy-Twersky, puis sous l'approximation de Keller au chapitre III pour un milieu contenant des diffuseurs sphériques et dans l'annexe E pour le cas de diffuseurs cylindriques.

Approximations de second ordre complet, et d'ordre plus élevé

Une meilleure approximation que celle de Keller consiste à prendre en compte dans l'opérateur de masse l'ordre un et tous les diagrammes d'ordre deux. Par rapport à l'approximation de Keller, on prend en compte tous les diagrammes récurrents à deux diffuseurs, i.e. toutes les diffusions multiples entre les paires de diffuseurs (Barabanenkov 1975; Apresyan et Kravtsov 1996). L'opérateur de masse considéré est alors:



Approximation de second ordre de l'opérateur de masse (II.106)

On donnera au chapitre VI un schéma numérique du calcul de l'opérateur de masse sous cette approximation pour des particules sphériques identiques de taille quelconque.

Pour des applications de diffusion multiple d'ondes scalaires quantiques dans la matière condensée, d'autres diagrammes contenant des termes prenant en compte la diffusion multiple récurrente entre des diffuseurs de taille dipolaire ont été calculés par van Tiggelen et Lagendijk (1994)[18]. Ce calcul déjà complexe pour des ondes scalaires serait encore plus laborieux pour des ondes électromagnétiques de nature vectorielles. La difficulté provient du comportement du tenseur Green en champ proche, plus délicat que celui de la fonction de Green scalaire.

II.6 Introduction à la radiométrie généralisée

Jusqu'ici, nous nous sommes intéressés uniquement au champ moyen (= champ cohérent) via l'équation de Dyson car elle permet de trouver le coefficient d'extinction. Si on cherche à calculer le coefficient de diffusion et la fonction de phase présents dans l'ETR, il est nécessaire de s'intéresser aux corrélations du champ et à l'équation qui régit cette fonction, i.e. l'équation de Bethe-Salpeter. Dans un premier temps, nous présentons comment la luminance peut s'exprimer à partir d'une théorie ondulatoire, puis nous indiquons succinctement les hypothèses nécessaires pour retrouver l'ETR à partir de l'équation de Bethe-Salpeter. Pour simplifier les notations et développements, nous nous placerons dans l'approximation scalaire.

II.6.1 Luminance et cohérence d'un champ électromagnétique

La luminance telle qu'elle est définie phénoménologiquement par Chandrasekhar (1960) (voir chapitre I) est un flux d'énergie qui traverse une surface infinitésimale $d\mathbf{S}$ centrée au point $\mathbf{r}$ dans une direction $\mathbf{u}$ dans un angle solide infinitésimal $d\Omega$. Cette quantité n'est pas mesurable en général. Ce que l'on mesure est une intensité radiative dans la direction $\mathbf{u}$ en champ lointain issue d'une surface plane étendue σ. L'intensité radiative J est reliée à la luminance selon la formule:

$$J(\mathbf{u}) = cos\theta \int_{\sigma} L(\mathbf{r}, \mathbf{u}) d^2\mathbf{r} \tag{II.107}$$

18. Voir aussi l'article de van Tiggelen (1992).

La sommation ressemble à première vue à une sommation incohérente des luminances issues de tous les points $\mathbf{r}$ de la surface σ alors que rien n'indique que la source étendue soit cohérente ou non. La puissance rayonnée $\mathcal{P}$ par la surface planaire dans tout l'espace est:

$$\mathcal{P} = \int_{2\pi} cos\theta d\Omega \int_{\sigma} L(\mathbf{r}, \mathbf{u}) d^2\mathbf{r} \tag{II.108}$$

La première publication qui a attiré l'attention sur l'importance d'établir un lien entre la théorie des rayons lumineux et une théorie rigoureuse de statistique ondulatoire, est due à Dolin (1964). Dès lors, quelques chercheurs ont tenté de redéfinir les grandeurs de la radiométrie à partir d'une théorie ondulatoire pour que ces notions soient libérées de leur cadre phénoménologique et qu'elles soient fondamentalement mieux comprises.

Une nouvelle définition de la luminance, pour être physiquement acceptable, ne doit pas modifier la valeur de la puissance rayonnée $\mathcal{P}$. Une synthèse du problème dans le contexte de l'époque est présentée dans l'article de Wolf (1978). La luminance est une grandeur qui a la particularité de dépendre à la fois de la position $\mathbf{r}$ et de la direction de propagation $\mathbf{u}$. On pourrait penser, à première vue, que cette quantité s'identifie très facilement au vecteur de Poynting. Or le vecteur de Poynting $\mathbf{S}$ moyenné temporellement se calcule en un point $\mathbf{r}$ par la formule:

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} Re\left[\mathbf{E}(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{r})\right] \tag{II.109}$$

Le vecteur de Poynting ne donne pas d'information sur la direction de propagation de l'énergie sauf pour le cas simple d'une onde plane pour laquelle la direction du vecteur $\mathbf{S}$ donne directement la direction de la propagation de l'énergie. Par conséquent le vecteur de Poynting ne contient pas le même type d'information que la luminance. Walther (1968) tenta de relier la luminance à la

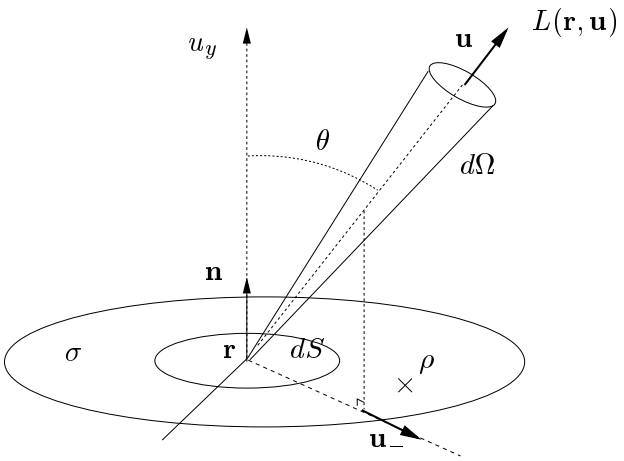


FIG. II.3 – *Notations pour la luminance $L(\mathbf{r}, \mathbf{u})$: le vecteur ρ est sur la surface d'intégration σ dans le plan de la surface infinitésimale dS orienté selon $\mathbf{n}$. $\mathbf{u}$ est orienté selon le vecteur d'onde $\mathbf{k}$.*

théorie de la cohérence et arriva au résultat essentiel suivant: la luminance peut s'exprimer selon une transformée de Fourier spatiale de la fonction de corrélation du champ centrée au point $\mathbf{r}$ (voir Fig. II.3 pour les notations), l'intégration se faisant sur la surface σ dans le plan de la surface infinitésimale dS.

$$L(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 cos\theta \int_{\sigma} \Gamma\left(\mathbf{r} + \frac{\boldsymbol{\rho}}{2}, \mathbf{r} - \frac{\boldsymbol{\rho}}{2}\right) e^{-ik\mathbf{u}_\perp \cdot \boldsymbol{\rho}} d^2\boldsymbol{\rho} \tag{II.110}$$

où nous rappelons la définition de la fonction de corrélation du champ:

$$\Gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \left\langle \mathbf{E}(\mathbf{r})\mathbf{E}^*(\mathbf{r}') \right\rangle \tag{II.111}$$

On parle de relation entre luminance et cohérence γ parce que la fonction de cohérence spatiale s'exprime en fonction de la fonction de corrélation spatiale Γ par la relation suivante:

$$\gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \frac{\Gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}')}{\sqrt{\Gamma(\mathbf{r},\mathbf{r})}\sqrt{\Gamma(\mathbf{r}',\mathbf{r}')}} \tag{II.112}$$

La directivité d'une onde émise par une source est liée à la cohérence spatiale de la source. Par exemple lorsque l'on tente de collimater une lumière, la divergence minimale[19] obtenue issue d'un laser peut être beaucoup moins importante que celle issue du filament d'une ampoule. La raison est qu'il est nécessaire que les ondes issues de la source interfèrent entre elles pour qu'une direction de propagation soit priviligiée. Comme ces ondes ne peuvent interférer que si elles sont cohérentes entre elles, cela implique que cohérence et directionnalité sont intimement liées. Comme la directionnalité est incluse dans la définition de la luminance, cela montre que luminance et cohérence sont des notions fondamentalement très proches.

L'expression de la luminance ressemble à une transformée de Wigner W qui peut s'écrire[20]:

$$W(\mathbf{k},\mathbf{r}) = \int_{\mathcal{V}} \Gamma\left(\mathbf{r}+\frac{\boldsymbol{\rho}}{2},\mathbf{r}-\frac{\boldsymbol{\rho}}{2}\right) e^{-i\mathbf{k}\boldsymbol{\rho}} d^3\boldsymbol{\rho} \tag{II.113}$$

La définition phénoménologique de la luminance impose au moins la condition *a priori* suivante: $L(\mathbf{r},\mathbf{u}) \geq 0$ puisqu'il s'agit d'un flux d'énergie (directionnel). Or la luminance de Walther qui s'apparente à une transformée de Wigner n'est pas une fonction toujours positive. D'autre part, il est possible de trouver d'autres expressions non-équivalentes pour la luminance qui conduisent à une valeur correcte de la puissance rayonnée $\mathcal{P}$ par la surface σ (Walther 1973). Apresyan et Kravtsov (1996) montrent que la formule de Walther n'est qu'un cas particulier d'un ensemble d'expressions possibles pour la luminance. Toutefois cette expression en terme de transformée de Wigner possède de nombreux attraits. Ces auteurs montrent par ailleurs que, dans la limite des champs quasi-uniformes, la luminance généralisée de Walther est toujours positive. Un champ quasi-uniforme est tel que les variations spatiales de l'amplitude du champ sont lentes devant la longueur de corrélation du champ. Cette condition peut s'écrire mathématiquement par:

$$\partial_{\mathbf{r}}\Gamma\left(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_2\right) << \partial_{\boldsymbol{\rho}}\Gamma\left(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_2\right) \tag{II.114}$$

où les variations selon le centre de gravité $\mathbf{r} = \frac{\mathbf{r_1}+\mathbf{r_2}}{2}$ sont lentes devant celles par rapport à l'écart $\boldsymbol{\rho} = \mathbf{r_1} - \mathbf{r_2}$ à ce centre. Dans un milieu diffusant très chargé, il est possible que la luminance généralisée prenne des valeurs négatives. Par contre dans un milieu diffusant dilué, le champ est quasi-uniforme.

Pour conclure sur ce point, quand le champ est quasi-uniforme, on peut toujours interpréter la luminance comme un flux d'énergie. Si le champ ne peut plus être considéré comme quasi-uniforme, l'interprétation de la luminance comme un flux d'énergie n'est plus possible, puisqu'elle peut prendre des valeurs négatives. Mais rien n'empêche l'utilisation de l'expression de la luminance généralisée et d'écrire des équations pour cette quantité à partir d'une théorie de champ, bien que d'autres expressions pour la luminance soient possibles. Enfin, il faut souligner que le calcul du flux associé à travers une surface finie conduit toujours à une quantité positive (Littlejohn et Winston 1995).

19. La diffraction naturelle d'un faisceau impose une divergence non-nulle de toutes ondes.

20. L'intégration s'éffectue dans un volume autour du point $\mathbf{r}$ alors que dans l'expression de Walther (II.110), elle a lieu dans le plan de la surface σ. Toutefois on peut montrer que, comme la fonction de corrélation satisfait à une équation de propagation, alors on peut limiter l'intégration sur la surface σ.

Dans la suite nous résumons des résultats obtenus par Henkel (1997), qui montrent que la luminance de Walther, satisfait sous certaines approximations, à une équation de transfert radiatif. Ceci en justifie son application.

La BRDF est un autre concept phénomélogique de la radiométrie qu'il est intéressant d'analyser en terme de champs (Greffet et Nieto-Vesperinas 1998). L'une des applications est l'analyse théorique du principe de Kirchhoff reliant l'absorptivité directionnelle à l'émissivité directionnelle. On peut analyser aussi la réciprocité de la BRDF grâce aux propriétés de réciprocité connues des champs. On peut encore introduire la notion de BRDF non-locale (un point d'entrée et un point de sortie) utile quand un milieu diffusant est éclairé par une onde localisée qui se transporte loin du point d'entrée (Thibaud 2000). Par exemple, prenons le cas d'une couche diffusante séparée par deux lames de verre. A cause de la réflexion totale aux interfaces, la distribution de la lumière réflechie par la couche dépend fortement de la distance séparant le point d'entrée et le point de sortie de la lumière (Snabre et Arhaliass 1998; Arhaliass et Snabre 1999). La BRDF non-locale peut se déduire de la mesure de cette distribution.

II.6.2 L'équation de Bethe-Salpeter

L'équation de Dyson est une équation fermée pour le champ moyen. Il existe une autre équation fermée rigoureuse pour la fonction de corrélation du champ appelée équation de Bethe-Salpeter qui s'écrit:

$$\begin{aligned} \langle E(\mathbf{r})E^*(\mathbf{r}')\rangle &= \langle E(\mathbf{r})\rangle \left\langle E^*(\mathbf{r}')\right\rangle \\ &+ \int d\mathbf{r_1}d\mathbf{r_2}d\rho_1 d\rho_2 \left\langle G(\mathbf{r},\mathbf{r_1})\right\rangle \left\langle G^*(\mathbf{r}',\mathbf{r_2})\right\rangle \mathbf{K}\left(\mathbf{r_1},\rho_1,\mathbf{r_2},\rho_2\right) \left\langle E(\rho_1)E^*(\rho_2)\right\rangle \end{aligned} \tag{II.115}$$

Où $\mathbf{K}(\mathbf{r_1},\rho_1,\mathbf{r_2},\rho_2)$ est un opérateur appelé opérateur intensité par Frisch (1967) ou encore "vertex irréductible" (Tsang et Kong 2001; Sheng 1995). Cet opérateur décrit la corrélation des champs aux positions $\mathbf{r_1}$ et $\mathbf{r_2}$ sachant que deux sources sont situées en ρ_1 et ρ_2. La fonction de corrélation du champ est reliée à la fonction de corrélation de la fonction de Green par:

$$\langle E(\mathbf{r_1})E^*(\mathbf{r_2})\rangle = \int \left\langle G(\mathbf{r_1},\mathbf{r}'_1)G^*(\mathbf{r_2},\mathbf{r}'_2)\right\rangle j(\mathbf{r}'_1)j^*(\mathbf{r}'_2)d^3\mathbf{r}'_1 d^3\mathbf{r}'_2 \tag{II.116}$$

où j est une source de rayonnement quelconque. L'équation de Bethe-Salpeter contient tous les phénomènes liés à la diffusion multiple de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique. Tous les effets cohérents tels que la diffusion dépendante, la rétrodiffusion cohérente, la diffusion récurrente et la localisation pourraient être calculés si on savait résoudre cette équation et si on savait calculer sans approximation l'opérateur intensité. La moyenne de la fonction de Green présente dans B-S se calcule auparavant par la résolution de l'équation de Dyson.

L'expression de l'opérateur intensité est très complexe, mais peut être développée en perturbation sous forme de diagrammes (Frisch 1968) avec des corrélations pour le cas général d'un milieu à fluctuations d'indice. Pour le cas de diffuseurs aléatoirement distribués dans l'espace, on peut exprimer l'opérateur intensité en perturbation formelle en fonction de l'opérateur de diffusion d'une seule particule et prendre en compte des corrélations entre les positions des diffuseurs. Comme pour le calcul de l'opérateur de masse, cette méthode permet le calcul de la diffusion par des particules identiques de taille quelconque éventuellement résonantes. Dans la pratique, l'opérateur de diffusion ne peut se calculer analytiquement qu'à l'ordre le plus bas de son développement. Cette approximation appelée la "ladder approximation" est équivalente à l'approximation de la diffusion indépendante. Pour prendre en compte des effets de diffusion dépendante liés aux corrélations, on peut par une méthode numérique prendre en compte certaines classes de corrélations d'ordre peu élevé. La prise en compte du facteur de forme (Cartigny, Yamada, et Tien 1986) et l'Approximation Quasi-Cristalline (QCA) (Tsang, Kong, et Shin 1985) en sont des exemples.

Pour le cas des diffuseurs petits devant la longueur d'onde, une approximation connue est celle de Bourret (Bourret 1962; Frisch 1968) où les corrélations à deux particules ponctuelles sont prises en compte. Cette approximation nécessite que les corrélations de paires de particules soient de type Gaussienne. Une approximation appelée "one group approximation" (Finkel'Berg 1968) est une extension de l'approximation de Bourret dans le cas de corrélations de type arbitraire notamment celle qui prend en compte des corrélations à plus de deux particules. De même que l'approximation de Bourret, la "one group approximation" n'est exploitée que pour des particules très petites devant la longueur d'onde.

Même dans l'approximation la plus basse pour l'opérateur intensité, l'équation de Bethe-Salpeter doit être remaniée et des approximations sont nécessaires pour qu'une résolution (même numérique) soit possible.

II.6.3 Transition de Bethe-Salpeter vers une Equation de Transfert Radiatif

Il est possible de retrouver l'équation de Transfert Radiatif à partir de l'équation de Bethe-Salpeter. Ce passage est un sujet délicat qu'il est difficile de résumer en un paragraphe. Brièvement nous décrirons les hypothèses nécessaires à cette transition.

Dans la littérature, le plus souvent on sépare le cas où les fluctuations de permittivité sont des écarts par rapport à une valeur moyenne (Tsang et Kong 2001; Rytov, Kravtsov, et Tatarskii 1989b), et le cas d'un milieu contenant des particules de permittivités contrastées par rapport au milieu hôte (Barabanenkov et Finkel'Berg 1968). Dans ce dernier cas, l'opérateur intensité prend une forme particulièrement intéressante qui prend en compte les résonances internes aux particules. Dans ces deux approches, on ne garde de l'opérateur intensité que le ou les termes qui sont calculables analytiquement, que se soit la "ladder approximation" pour le cas des particules résonantes ou la "one groupe approximation" pour des particules de tailles dipolaires. Une fois l'approximation sur l'opérateur intensité choisie, l'équation de Bethe-Salpeter est remaniée et des approximations sont effectuées jusqu'à l'obtention de l'ETR. Les paramètres de l'ETR tels que le coefficient de diffusion, le coefficient d'extinction et la fonction de phase sont identifiés et s'expriment en fonction de l'opérateur de masse et de l'opérateur intensité tels qu'ils ont été évalués dès le départ. Notons que les paramètres de l'ETR obtenus sont différents selon que le milieu de référence considéré est le milieu moyen ou le milieu hôte (Soubret 2001).

Dans l'approche de Henkel (1997), l'ordre dans lequel des approximations sont faites est différent. Tout abord, le milieu est supposé statistiquement invariant par translation. Ce qui implique que:

$$\left\langle G(\mathbf{r},\mathbf{r}')\right\rangle = \left\langle G(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\right\rangle \text{ et} \tag{II.117}$$

$$K(\mathbf{r_1},\rho_1,\mathbf{r_2},\rho_2) = K(\mathbf{r_1}+\mathbf{R},\rho_1+\mathbf{R},\mathbf{r_2}+\mathbf{R},\rho_2+\mathbf{R})\ \forall\mathbf{R} \tag{II.118}$$

La première étape consiste à prendre la transformée de Wigner de l'équation de B-S. La transformée de Wigner pour le champ $W(\mathbf{r},\mathbf{k})$ et les sources $W_j(\mathbf{r},\mathbf{k})$ sont:

$$W(\mathbf{r},\mathbf{k}) = \int \left\langle E(\mathbf{r}+\frac{\boldsymbol{\rho}}{2})E^*(\mathbf{r}-\frac{\boldsymbol{\rho}}{2})\right\rangle e^{-i\mathbf{k}\boldsymbol{\rho}}d^3\boldsymbol{\rho} \tag{II.119}$$

$$W_j(\mathbf{r},\mathbf{k}) = \int \left\langle j(\mathbf{r}+\frac{\boldsymbol{\rho}}{2})\right\rangle \left\langle j^*(\mathbf{r}-\frac{\boldsymbol{\rho}}{2})\right\rangle e^{-i\mathbf{k}\boldsymbol{\rho}}d^3\boldsymbol{\rho} \tag{II.120}$$

Puis les fonctions de Green et l'opérateur intensité sont développés dans l'espace de Fourier. En supposant que la transformée de Fourier de l'opérateur intensité s'écrive par convention:

$$\widetilde{K}\ (\mathbf{k_1},\kappa_1,\mathbf{k_2},\kappa_2) = \int K(\mathbf{r_1},\rho_1,\mathbf{r_2},\rho_2)e^{i(-\mathbf{k_1}\mathbf{r_1}+\kappa_1\rho_1-\mathbf{k_2}\mathbf{r_2}+\kappa_2\rho_2)}d^3\mathbf{r_1}d^3\rho_1 d^3\mathbf{r_2}d^3\rho_2, \tag{II.121}$$

pour que l'opérateur intensité admette l'interprétation suivante: il décrit les corrélations entre les amplitudes de deux évènements de diffusion:

$$\kappa_1 \rightarrow \mathbf{k_1} \text{ et } \kappa_2 \rightarrow \mathbf{k_2}$$

A cette étape sans approximation autre que l'invariance par translation, l'équation de B-S est transformée en une équation qui ressemble à une ETR dans sa version intégrale[21] mais dans une version non-locale et à condition que l'on assimile la transformée de Wigner à la luminance.

Henkel (1997) montre suivant les idées de Ryzhik *et al.* (1996) que l'ETR classique locale dans sa version différentielle se retrouve si on s'intéresse uniquement aux variations de la luminance sur une échelle mésoscopique. Le milieu est supposé quasi-uniforme. Ce qui est valable quand les libres parcours moyens de diffusion et d'extinction sont grands devant la longueur d'onde et devant les longueurs de corrélations. D'autre part, les opérateurs de masse et d'intensité sont évalués dans leur approximation locale. Alors Henkel (1997) obtient:

$$\mathbf{u} \cdot \frac{\partial L(\mathbf{r},\mathbf{u})}{\partial \mathbf{r}} = \frac{Im(k_{eff})^2}{k_p} L(\mathbf{r},\mathbf{u}) + \frac{1}{(4\pi)^2} \int \widetilde{K}\left(k_p\mathbf{u}, k_p\mathbf{u}', k_p\mathbf{u}, k_p\mathbf{u}'\right) L(\mathbf{r},\mathbf{u}')d\Omega' + \frac{\pi}{k_p} L_j(\mathbf{r},\mathbf{u}) \tag{II.122}$$

avec $k_p^2 = Re(k_{eff}^2)$ et $L(\mathbf{r},\mathbf{u}) = W(\mathbf{r}, k_p\mathbf{u})$ et $L_j(\mathbf{r},\mathbf{u}) = W_j(\mathbf{r}, k_p\mathbf{u})$. Si on compare cette équation à l'ETR phénoménologique, on peut identifier les paramètres de l'ETR: le coefficient d'extinction K_{ext}, le coefficient de diffusion K_{sca} et la fonction de phase $P(\mathbf{u}', \mathbf{u})$.

$$K_{ext} = \frac{Im(k_{eff})^2}{k_p} \simeq 2Im(k_{eff}) = 2Im\left(\sqrt{k_1^2 + \Sigma(k_{eff})}\right) \tag{II.123}$$

$$\frac{1}{4\pi} K_{sca} P(\mathbf{u}', \mathbf{u}) = \frac{1}{(4\pi)^2} \widetilde{K}\left(k_p\mathbf{u}, k_p\mathbf{u}', k_p\mathbf{u}, k_p\mathbf{u}'\right) \tag{II.124}$$

On retrouve le coefficient d'extinction tel qu'il est donné par l'équation de Dyson. Afin d'identifier le coefficient de diffusion, nous avons besoin d'utiliser la condition de normalisation suivante de la fonction de phase:

$$\frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} P(\mathbf{u}', \mathbf{u}) d\Omega' = 1 \tag{II.125}$$

On obtient alors:

$$K_{sca} = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} \widetilde{K}\left(k_p\mathbf{u}, k_p\mathbf{u}', k_p\mathbf{u}, k_p\mathbf{u}'\right) d\Omega' \tag{II.126}$$

Nous n'avons pas vérifié dans les étapes du calcul si ces formules sont valables quand le milieu hôte est absorbant.

A la différence des autres auteurs, Henkel (1997) obtient une équation de transfert radiatif qui s'exprime en fonction des opérateurs de masse et d'intensité sans que des approximations sur ces opérateurs aient été nécessaires préalablement[22]. Pour que les paramètres de l'ETR soient calculables analytiquement ou numériquement, il est toutefois nécessaire de faire des approximations. Par exemple, sous la ladder approximation, Barabanenkov et Finkel'Berg (1968) obtiennent une expression pratiquement identique (à celle de Henkel) des coefficients de diffusion et d'extinction, et de la fonction de phase. La différence est que dans l'expression de Barabanenkov (1975), l'opérateur intensité est évalué pour $k_p = k_1$. Il est intéressant de discuter du cas non-absorbant, car la conservation de l'énergie impose que le coefficient de diffusion soit égal au coefficient d'extinction:

$$K_{ext} = K_{sca} \tag{II.127}$$

21. L'ETR dans sa version intégrale est décrite dans le livre de Chandrasekhar (1960).
22. Les opérateurs de masses et d'intensité sont toutefois calculés sous une approximation locale

Autrement dit, toute perte d'énergie du champ moyen (cohérent) lors de la propagation contribue à augmenter la part d'énergie contenue du champ diffus (incohérent). Ainsi il existe une relation qui découle du théorème optique appelée identité de Ward (Apresyan et Kravtsov 1996; Lagendijk et van Tiggelen 1996; Tsang et Kong 2001) qui relie l'opérateur de masse à l'opérateur intensité en utilisant les équations (II.127), (II.123) et (II.124) :

$$2Im\left(\sqrt{k_1^2+\Sigma(\mathbf{k})}\right)=\frac{1}{4\pi}\int_{4\pi}\widetilde{K}\left(k_p\mathbf{u},k_p\mathbf{u}',k_p\mathbf{u},k_p\mathbf{u}'\right)d\Omega' \tag{II.128}$$

Cette relation est importante, il faut qu'une approximation sur l'opérateur de masse soit consistente avec l'approximation sur l'opérateur intensité afin que la conservation de l'énergie soit respectée. Notamment à l'ordre le plus bas du développement de l'opérateur de masse, i.e. l'approximation de Foldy-Twersky et la ladder approximation pour l'opérateur intensité, il faut que $k_p = k_1$ pour que l'identité de Ward soit respectée.

II.6.4 Conclusion

Cette étude théorique peut répondre à de nombreuses questions concernant le domaine de validité *a priori* de l'ETR. La transition de Bethe-Salpeter vers l'ETR montre qu'il existe des paramètres de l'ETR qui sont capables de modéliser correctement la diffusion de la lumière même quand les diffuseurs sont corrélés dans la mesure toutefois où le libre parcours moyen de diffusion et d'extinction sont grands devant à fois la longueur d'onde et les longueurs de corrélations du champ. En d'autres termes, il est nécessaire que le champ soit quasi-uniforme. L'ETR ne peut résoudre les phénomènes à courtes échelles (ou ce qui revient au même aux grandes fréquences spatiales). Par conséquent, le phénomène de localisation forte (Anderson 1957) pour des ondes classiques ne peut pas être pris en compte par une approche radiative.

II.7 Conclusions

Nous avons décrit dans ce chapitre l'approche ondulatoire de la théorie de la diffusion multiple. Nous avons particulièrement insisté sur l'étude du champ moyen (ou cohérent) afin d'établir les bases connues et les notations pour le calcul rigoureux du coefficient d'extinction. Nous appliquerons cette étude pour établir dans le chapitre III, d'une part une formule rigoureuse du coefficient d'extinction en milieu absorbant dans le cas d'une diffusion indépendante, et d'autre part, une formule approximative du coefficient d'extinction en milieu absorbant en régime de diffusion dépendante. Nous établirons par ailleurs, une méthode numérique pour le calcul du coefficient d'extinction pour prendre en compte toutes les corrélations de paires de particules au chapitre VI.

Nous avons ensuite introduit la notion connue de luminance généralisée en terme ondulatoire. Nous reprendrons dans l'annexe F cette notion pour le cas d'un milieu 2D avec une direction de périodicité. Dans la dernière partie nous résumons une méthode pour retrouver l'ETR à partir de Bethe-Salpeter dans le cas d'un milieu hôte non-absorbant et pour des ondes scalaires. Pour retrouver le calcul rigoureux du coefficient de diffusion, il faudrait dans une prochaine étude reprendre le calcul en détail du passage de Bethe-Salpeter à l'ETR dans le cas d'un milieu hôte absorbant.

Chapitre III

Modélisation du coefficient d'extinction en milieu absorbant: application de la théorie de la diffusion multiple

III.1 Introduction

On s'intéresse dans ce chapitre au problème de la modélisation de la diffusion multiple lorsque les diffuseurs sont placés dans un corps absorbant. Dans de nombreux milieux diffusants, les diffuseurs baignent dans un corps absorbant. Par exemple, l'ozone et le CO_2 dans l'atmosphère sont très absorbants autour de $9.6\mu m$ et $15\mu m$ respectivement. La vapeur d'eau dans l'atmosphère constitue aussi un milieu très absorbant dans l'infrarouge entourant des aérosols ou des gouttelettes d'eau diffusantes. Les peintures diffusantes sont aussi des milieux absorbants dans lequel baignent des particules diffusantes.

Quand un système est sujet à diffuser de multiples fois la lumière ou toute autre onde électromagnétique, et que le système est beaucoup trop grand pour que l'on puisse envisager de résoudre exactement le problème électromagnétique, on est amené à modéliser les processus de diffusion [1]. L'approche radiométrique est une méthode très adaptée, notamment quand les conditions aux limites ont un rôle déterminant. Cette approche consiste à écrire une Équation de Transfert Radiatif (ETR) basée sur un bilan d'énergie local et directionnel sur un volume de taille mésoscopique et possédant une statistique moyenne. Cette approche phénoménologique contient des paramètres qu'il faut modéliser. Ces paramètres sont: les coefficients de diffusion et d'extinction, et la fonction de phase. L'approximation de la diffusion indépendante le plus souvent supposée lors du calcul de ces paramètres n'est plus capable de reproduire les résultats expérimentaux quand la fraction volumique des diffuseurs dépasse les quelques pour cent. On parle de diffusion dépendante. Nous verrons que quand le milieu hôte dans lequel baignent les particules est absorbant, une difficulté théorique supplémentaire apparaît lors du calcul de ces paramètres même sous l'approximation d'une diffusion indépendante. Ce chapitre sera consacré à cet aspect: la détermination de l'atténuation d'un faisceau par des particules placées dans un milieu à pertes. Ces difficultés augmentent avec la fraction volumique des particules car de nouveaux effets apparaissent, liés d'une part aux corrélations entres les diffuseurs, et d'autre part à la modification de la proportion de matière absorbante (quand par exemple les diffuseurs absorbent moins que le liant).

Dans un premier temps, nous mettons en évidence les difficultés du calcul des sections efficaces de diffusion et d'extinction en milieu absorbant et les différentes questions que se posaient les chercheurs à la fin des années 70. Puis nous détaillons les différentes approches qui ont été proposées

1. scattering en anglais

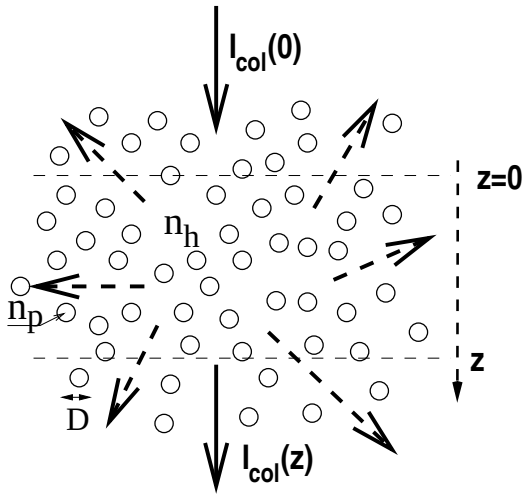


FIG. III.1 – *Extinction d'une onde plane dans un milieu diffusant et absorbant. Le flux d'énergie collimaté décroit exponentiellement selon la formule* $I_{col}(z) = I_{col}(0)e^{-K_{ext}z}$. *Le but est de calculer le coefficient d'extinction en fonction des quatres paramètres intrinsèques du milieu* $(n_h, n_p, \frac{D}{\lambda_0}, f)$ *même quand le liant est absorbant.*

dans la littérature. Nous montrons que ces modèles sont toujours entachés d'idées phénoménologiques et que la définition d'une section efficace n'est pas triviale en milieu absorbant. Pour éviter ces difficultés nous calculons directement le coefficient d'extinction à partir de la partie imaginaire de l'indice effectif, *ce qui évite de définir une section efficace dans un milieu absorbant.* Dans un premier temps, nous donnons une expression de l'extinction sous l'approximation d'une diffusion indépendante (approximation de Foldy-Twersky) et dans un second temps sous l'approximation de Keller pour tenter de prendre en compte des effets de diffusion dépendante.

III.2 La problématique

III.2.1 Cas du liant non-absorbant

Les définitions des paramètres de l'ETR phénoménologique sous l'approximation d'une diffusion indépendante ont été présentées au chapitre 1 pour le cas d'un milieu hôte non-absorbant. Les coefficients de diffusion K_{sca} et d'extinction K_{ext} se déduisent de la fraction volumique f de diffuseur, du rayon a des diffuseurs sphériques et passe par le calcul des sections efficaces de diffusion C_{sca} et d'extinction C_{ext} par les formules:

$$K_{ext} = \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{ext}, \tag{III.1}$$

$$K_{sca} = \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{sca}. \tag{III.2}$$

Les sections efficaces de diffusion et d'extinction s'obtiennent en calculant les flux des vecteurs de Poynting de diffusion W_{sca} et d'extinction W_{ext} respectivement à travers une surface fictive entourant le diffuseur, puis en divisant ce résultat par l'intensité incidente:

$$C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0}, \tag{III.3}$$

$$C_{sca} = \frac{W_{sca}}{I_0}. \tag{III.4}$$

La surface fictive $\mathcal{A}$ est le plus souvent sphérique, centrée autour du diffuseur. Parce que les champs sont transverses en champ lointain et que leurs expressions sont plus simples, le rayon R de la sphère fictive est choisi suffisamment grand (voir Fig. III.2). Rappelons que le vecteur

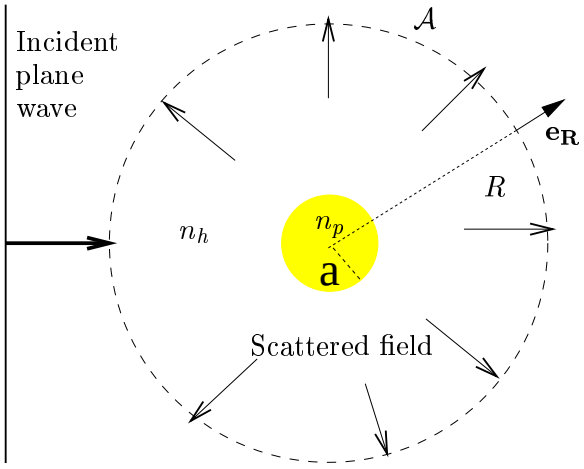


FIG. III.2 – *Flux rayonné par un diffuseur sphérique d'indice n_p de rayon a baignant dans un liant d'indice n_h éclairé par une onde plane à travers une sphère fictive $\mathcal{A}$ de rayon R en champ lointain du diffuseur.*

de Poynting $\mathbf{S}$ moyenné temporellement peut se décomposer en trois parties en tout point $\mathbf{r}$ en dehors du diffuseur:

$$\mathbf{S} = \mathbf{S_{inc}} + \mathbf{S_{sca}} + \mathbf{S_{ext}}. \tag{III.5}$$

La quantité W_{abs} est définie par:

$$W_{abs} = -\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S} \cdot \mathbf{e_R} d\mathcal{A}. \tag{III.6}$$

Le signe $-$ est conventionnel pour que cette quantité soit positive quand de l'énergie est absorbée par la sphère. Tout comme le vecteur de Poynting, W_{abs} peut se décomposer en 3 termes:

$$W_{abs} = W_{inc} - W_{sca} + W_{ext} \tag{III.7}$$

avec

$$W_{inc} = -\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S_{inc}} \cdot \mathbf{e_R} dA \ , \ W_{sca} = +\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S_{sca}} \cdot \mathbf{e_R} dA \ , \ W_{ext} = -\int_{\mathcal{A}} \mathbf{S_{ext}} \cdot \mathbf{e_R} dA \ . \tag{III.8}$$

De même, le signe $+$ dans la définition de W_{sca} est choisi tel que cette quantité soit positive quand de l'énergie est rayonnée par la particule soumise à un éclairement. Quand le liant est non-absorbant, $W_{inc} = 0$ car autant de flux rentre dans la sphère fictive ne contenant pas de diffuseur qu'il n'en sort. Par conséquent, on a:

$$W_{ext} = W_{abs} + W_{sca} \quad \text{et aussi} \quad K_{ext} = K_{abs} + K_{sca}. \tag{III.9}$$

III.2.2 Théorie de Mie pour une sphère dans un milieu absorbant

Quand on s'intéresse au problème de la diffusion en milieu absorbant, la première question que l'on se pose est: "La théorie de Mie en milieu absorbant est-elle valableΓ". La théorie de Mie, qui a pour objet le calcul des champs diffusés par une sphère éclairée par une onde plane, est

tout à fait valable quand le milieux hôte est absorbant. Les séries à évaluer dans la formulation de Mie sont formellement strictement identiques. Par contre, l'évaluation numérique de ces séries demande une modification des codes informatiques tout simplement parce que certaines fonctions habituellement à valeurs réelles deviennent complexes. Une fois ces champs obtenus, comment les exploiter pour le calcul des quantités d'échelle mésoscopique que sont les coefficients de diffusion et d'extinctionΓ

Les difficultés pour obtenir les coefficients de diffusion et d'extinction à la fin des années 70 peuvent se résumer en trois points:

- Quand le milieu hôte est absorbant, les champs diffusés tendent vers 0 en champ lointain. $W_{sca}(R)$ et $W_{ext}(R)$ dépendent du rayon R de la sphère fictive et tendent vers 0 en champ lointain[2].

- Même s'il existe une formulation correcte de W_{sca} et W_{ext}, les sections efficaces ne peuvent pas être définies comme sur les équations (III.3) et (III.4), car l'intensité incidente I_0 n'est pas constante dans l'espace. Elle décroit au fur et à mesure de la propagation le long du diffuseur. La section géométrique du diffuseur vue par l'onde incidente n'est plus simplement πa^2 car l'intensité incidente est plus importante sur le côté gauche de la sphère que sur le côte droit (Fig. III.3).

- Quand le milieu hôte est absorbant, on a $W_{inc}(R) \neq 0$ puisque le flux entrant est plus important que le flux sortant de la sphère fictive. par conséquent à partir de (III.7), on a:

$$W_{ext}(R) = W_{abs}(R) - W_{inc}(R) + W_{sca}(R). \tag{III.10}$$

  Comment interpréter ces quantités pour obtenir une section efficace de diffusion et d'extinction d'une particuleΓ

  Et comment calculer le coefficient d'extinction pour un milieu contenant un ensemble de particules à partir de la section efficace d'extinction d'une particuleΓ

Le calcul des flux absorbés et diffusés par un système composé d'un seul diffuseur ne peut pas être exploité pour le calcul du coefficient d'extinction moyen par un ensemble de diffuseurs quand le liant est absorbant *a priori*, car l'extinction totale d'une onde incidente due à l'absorption du liant, l'absorption des particules et la diffusion des particules ne sont pas séparables. Il n'est par

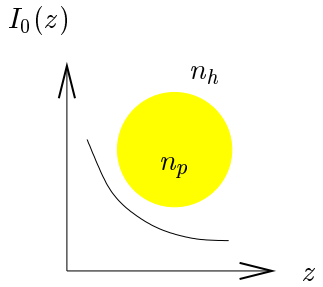


FIG. III.3 – *L'intensité incidente diminue le long de la propagation d'un diffuseur*

conséquent pas possible d'évaluer les paramètres de l'ETR par la procédure classiquement utilisée en milieu non-absorbant dans le cas d'un milieu absorbant simplement en changeant l'indice réel du milieu hôte en un indice complexe. Aujourd'hui, il n'existe à notre connaissance aucune théorie

2. Mundy, Roux, et Smith (1974); Chylek (1977)

publiée qui ait pu répondre à l'ensemble de ces questions sans que certaines hypothèses heuristiques aient été posées.

La prochaine section résume l'état de l'art en ce qui concerne les réponses aux deux premiers points. Nous exposerons ensuite le modèle de Kuga puis celui de Fardella, introduits pour résoudre le problème du calcul de l'extinction dans un milieu absorbant contenant un ensemble de diffuseurs.

III.3 Section efficace d'une particule en milieu absorbant: différentes formulations

III.3.1 Premiers travaux

Mundy *et al.* (1974) et Chylek (1977) ont été les premiers à tenter de redéfinir les sections efficaces de diffusion et d'extinction en milieu absorbant. Dans ces deux articles, le champ diffusé est calculé en champ lointain par la théorie de Mie. Mundy *et al.* (1974) calculent une expression de $W_{ext}(R)$ défini par (III.10) sous la forme:

$$W_{ext}(R) = W_{ext}(0)e^{-\frac{4\pi(R\perp a)}{\lambda_0}Im(n_h)}. \tag{III.11}$$

Ces auteurs définissent la quantité $W_{ext}(0)$ qui à leurs yeux permet de s'affranchir des pertes dans la matrice puis de calculer une section efficace d'extinction due à la particule. Chylek (1977) de son côté calcule la différence du flux d'extinction dans le cas où il y a une particule, et le cas où n'y a pas de particule, à travers une sphère fictive en champ lointain, mais il ne donne pas d'expression de section efficace.

En considérant l'expérience classique de la mesure de l'extinction par Van de Hulst[3] (voir Fig. III.4), il est possible de définir une section efficace d'extinction de la particule uniquement. L'extinction est responsable de l'atténuation du flux total se propageant dans la direction du

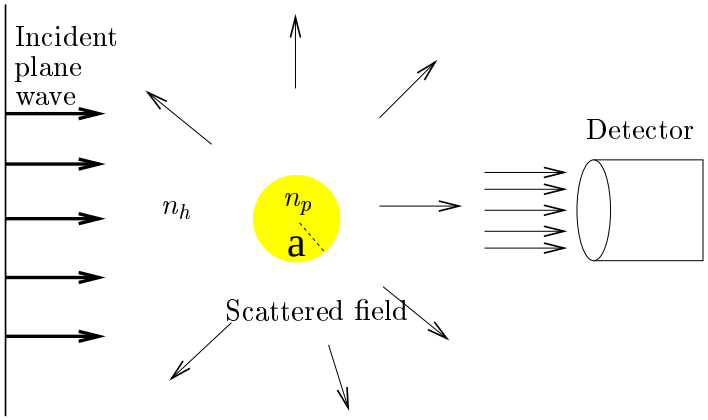


FIG. III.4 – *Le coefficient d'extinction peut être obtenu par la mesure ΔU de la différence des flux reçu par le détecteur dans le cas où il n'y a pas de particule et quand il y a en a une.*

faisceau incident. En mesurant ΔU la différence du flux reçu par un détecteur placé à distance finie introduite par le diffuseur, on en déduit la section efficace d'extinction. Bohren et Gilra (1979) ont étudié cette méthode dans le cas où le liant est absorbant. Ils montrent que l'on peut définir une section efficace d'extinction due à la particule uniquement telle que

$$C_{ext,p} = \frac{\Delta U}{I_{inc,D}}, \tag{III.12}$$

3. van de Hulst (1949); van de Hulst (1981); Bohren et Huffman (1983)

où $I_{inc,D}$ est l'intensité incidente sur le détecteur. Notons qu'aucune approximation n'est nécessaire par cette méthode. Ils montrent que l'extinction d'une particule en milieu absorbant est fortement augmentée par rapport au cas d'une particule dans un milieu non-absorbant. Ces auteurs ne disent rien sur le coefficient d'extinction totale pour un ensemble de particules qui tienne compte de l'extinction due au liant. Supposons que le coefficient d'extinction puisse être séparé en deux contributions: celle due aux particules, et celle due à l'absorption du liant. Sous l'approximation d'une diffusion indépendante valable pour une faible fraction volumique, on se rend compte que l'augmentation de l'extinction due uniquement aux particules reste faible devant l'extinction due à l'absorption du liant. La raison est que l'augmentation de la section efficace d'extinction en milieu absorbant que calculent Bohren et Gilra (1979), nécessite un milieu hôte fortement absorbant, tellement absorbant que la contribution à l'extinction est principalement due au liant rendant l'erreur de l'extinction par les particules relativement peu importante. Toutefois, ce raisonnement n'est probablement plus valable pour de fortes fractions volumiques.

III.3.2 Calcul des flux à la surface d'un diffuseur sphérique en milieu absorbant

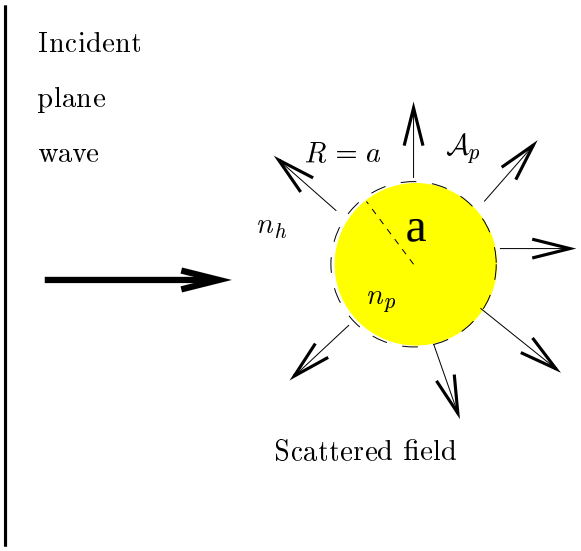


FIG. III.5 – *Flux rayonné par un diffuseur sphérique d'indice n_p de rayon a baignant dans un liant d'indice n_h, éclairé par une onde plane à travers une sphère fictive $\mathcal{A}_p$ de rayon $R = a$*

Le modèle de Bohren et Gilra (1979) ne permet pas de calculer la section efficace de diffusion d'une particule en milieu absorbant. Fardella et Berthier (1994) et Fardella (1995) ont eu l'idée les premiers de calculer les flux W_{sca} et W_{ext} à travers la surface du diffuseur $\mathcal{A}_p$, plutôt que de les calculer à travers une sphère fictive en champ lointain (voir Fig. III.5):

$$W_{inc} = -\int_{\mathcal{A}_p} \mathbf{S_{inc}}.\mathbf{e_R} dA \ , \ W_{sca} = +\int_{\mathcal{A}_p} \mathbf{S_{sca}}.\mathbf{e_R} dA \ , \ W_{ext} = -\int_{\mathcal{A}_p} \mathbf{S_{ext}}.\mathbf{e_R} dA \ . \qquad \text{(III.13)}$$

Remarquons que quand le milieu hôte est non-absorbant, on peut choisir n'importe quelle forme de surface fictive fermée qui englobe le diffuseur car il y a conservation du flux. On peut en particulier choisir la surface du diffuseur comme surface d'intégration. De cette manière est obtenu exactement le flux $W_{ext}(0)$ soustrait de l'absorption du liant, qu'essayait de calculer approximativement Mundy *et al.* (1974). Différents auteurs[4] ont par la suite publié des résultats identiques de $W_{ext}(0)$.

4. Quinten et Rostalski (1996); Lebedev, Gartz, Kreibig, et Stenzel (1999); Fu et Sun (2001); Sudiarta et Chylek (2001b); Yang, Gao, Wiscombe, Mishchenko, Platnick, Huang, Baum, Hu, Winker, Tsay, et Park (2002)

III.3.3 Plusieurs définitions de la section efficace de l'extinction en milieu absorbant

Revenons sur le problème du calcul de la section efficace d'extinction C_{ext} d'une particule à partir de W_{ext}. Dans le cas non-absorbant, la section efficace s'obtient par:

$$C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0} \tag{III.14}$$

où I_0 est l'intensité incidente. Dans un milieu absorbant, l'intensité incidente décroit exponentiellement le long de sa propagation. Par conséquent il faut définir dans quel plan de l'espace l'intensité incidente vaut I_0. On peut par exemple écrire:

$$I(z) = I_0 e^{-\beta z} \tag{III.15}$$

avec I_0 l'intensité incidente au centre de la sphère et:

$$\beta = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_h). \tag{III.16}$$

La section géométrique vue par l'onde incidente est modifiée par cette décroissance. Mundy *et al.* (1974) ont été les premiers à essayer de redéfinir la notion de section géométrique vue par un flux décroissant pour le cas appliqué au cas d'un milieu absorbant. En fait, c'est plutôt la notion d'effi-

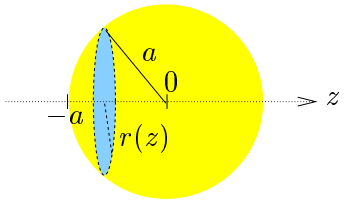


FIG. III.6 – *Notations pour la définition de la section géométrique apparente en milieu absorbant. En fonçé est dessinée une section circulaire de rayon $r(z)$ de la sphère dans un plan où l'intensité incidente est constante.*

cacité Q_{ext} de diffusion ou d'extinction qui est redéfinie. Dans un milieu non-absorbant l'efficacité d'extinction se définit par:

$$Q_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0 C_{geo}} \tag{III.17}$$

où $C_{geo} = \pi a^2$ est la section géométrique du diffuseur sphérique. La section géométrique d'une sphère dans un milieu absorbant peut être définie par $C_{geo} = \pi a^2 F$ (Mundy *et al.* 1974) avec F un facteur de correction défini tel que:

$$F = \frac{1}{I_0 \pi a^2} \int_{-a}^{0} I(z) \pi r^2(z) dz, \tag{III.18}$$

avec $r(z) = \sqrt{a^2 - z^2}$ (voir Fig. III.6). En insérant III.15 dans III.18, on obtient:

$$F = \frac{2}{(\beta a)^2} \left[1 + (\beta a - 1) e^{\beta a} \right]. \tag{III.19}$$

Remarquons que dans un milieu non-absorbant $\beta = 0$ et F se réduit à la valeur unité pour que la nouvelle définition de la section géométrique soit cohérente avec l'ancienne. Dans la formule (III.19) de Mundy *et al.* (1974), $F \geq 1$, ce qui veut dire que la section efficace géométrique est

plus grande dans un milieu absorbant que dans un milieu non-absorbant. La raison évoquée par les auteurs est que le flux incident est plus grand à l'entrée du diffuseur qu'au centre et que par conséquent, le flux capté par le diffuseur est plus important que celui qui aurait été capté par le diffuseur en milieu non-absorbant. L'expression de F (III.19) dépend en quel point I_0 prend sa valeur. Par exemple, si l'intensité incidente est définie telle que

$$I(z) = I_0 e^{-\beta(z-z_0)} \tag{III.20}$$

avec $I_0 = I(z_0)$, on obtient une nouvelle expression du facteur de correction:

$$F = \frac{2}{(\beta a)^2} e^{\beta z_0} \left[1 + (\beta a - 1) e^{\beta a}\right]. \tag{III.21}$$

Il n'y a pas *a priori* de raison évidente de prendre $z_0 = 0$. Par exemple, si un diffuseur ne possède pas de centre, la question du choix de z_0 se pose d'emblée et n'a pas de réponse évidente. Ce problème est aussi remarqué par Yang *et al.* (2002).

Dès lors que l'expression de la section géométrique d'un diffuseur est connue, l'efficacité et la section efficace d'extinction s'obtiennent par les formules suivantes:

$$Q_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0 \pi a^2 F}, \tag{III.22}$$

$$C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0 F}. \tag{III.23}$$

Cette nouvelle définition est une tentative intéressante, mais difficile à justifier rigoureusement comme nous l'avons vu. Certains auteurs ont utilisé d'autres expressions que l'on résume dans le tableau III.1.

Expressions de F	Utilisé par
$F = 1$	Lebedev *et al.* (1999)
$F = e^{\beta a}$	Fardella et Berthier (1994) Quinten et Rostalski (1996)
$F = \frac{2}{(\beta a)^2}\left[1 + (\beta a - 1)e^{\beta a}\right]$	Mundy *et al.* (1974) Fu et Sun (2001) Sudiarta et Chylek (2001b) Sudiarta et Chylek (2001a) Yang *et al.* (2002)

TAB. III.1 – *Plusieurs définitions de la section efficace de diffusion en milieu absorbant*

Sudiarta et Chylek (2001a) montrent que l'efficacité d'extinction Q_{ext} d'une particule telle qu'elle est définie par (III.22) avec le facteur de correction (III.19) de Mundy *et al.* (1974) tend vers 1 dans un milieu absorbant quand le rayon tend vers l'infini, alors qu'elle tend vers 2 quand le milieu hôte n'est pas absorbant. La valeur 2 est due à la contribution d'une part de la section géométrique et d'autre part à la diffraction[5]. Les auteurs pensent que le terme dû à la diffraction devient nul pour des particules de rayon très grand devant la longueur d'onde et que seul le terme dû à la section géométrique est conservé. Nous pensons que la notion de section efficace ou d'efficacité d'extinction d'une particule n'a tout simplement pas de sens en milieu absorbant et que, par conséquent, elle conduit à des résultats qui semblent difficiles à interpréter quand le rayon d'une particule tend vers l'infini.

La seule question qui nous intéresse ici est comment rendre compte de l'atténuation d'un faisceau se propageant dans un milieu absorbant qui contient de nombreux diffuseurs. Autrement

5. Une discussion physique de ce paradoxe est exposée dans le livre de (Bohren et Huffman 1983).

dit, que valent les coefficients de diffusion, d'extinction et la fonction de phase pour un ensemble de diffuseurs en milieu absorbant. Dès lors on pourra modéliser la diffusion multiple par une équation de transfert radiatif.

III.4 Coefficient d'extinction: modèles phénoménologiques

III.4.1 Approche de Kuga

Pour modéliser la diffusion d'ondes électromagnétiques de longueur d'onde millimétrique dans de la neige, Kuga *et al.* (1991) adoptent une approche radiative. La neige est supposée être composée de particules de glaces plongées dans un milieu hôte lui-même composé en partie d'eau liquide et d'air. Ce liant composite est, d'une part absorbant, et d'autre part supposé homogène à ces longueurs d'ondes millimétriques beaucoup plus grandes que les inhomogénéités.

Pour calculer heuristiquement le coefficient d'extinction total, Kuga *et al.* (1991) ont eu l'idée de le séparer en deux contributions:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h''(1-f) + K_{ext,p} \quad \text{(III.24)}$$

$$K_{sca} = K_{sca,p} \quad \text{(III.25)}$$

$$\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}} \quad \text{(III.26)}$$

où $K_{ext,p}$ et $K_{sca,p}$ sont les coefficients d'extinction et de diffusion calculés par un modèle quelconque[6] en supposant toutefois que le liant est non-absorbant. Dans l'expression (III.24), la première contribution à l'extinction est l'absorption du flux dans le liant; la seconde contribution est due à l'absorption et à la diffusion par les particules. Sous l'approximation d'une diffusion indépendante, les expressions (III.24), (III.25) et (III.26) deviennent:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h''(1-f) + \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{ext,p} \quad \text{(III.27)}$$

$$K_{sca} = \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{sca,p} \quad \text{(III.28)}$$

$$\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}} \quad \text{(III.29)}$$

où $C_{ext,p}$ et $C_{sca,p}$ sont les coefficients d'extinction et de diffusion calculés par la théorie de Mie en milieu non-absorbant.

Pour comprendre le raisonnement de Kuga pour établir les formules (III.27), (III.28) et (III.29), considérons respectivement deux cas limites du matériau: tout d'abord, le cas d'un milieu homogène absorbant, puis le cas d'un milieu liant non-absorbant contenant des diffuseurs sphériques disposés aléatoirement dans l'espace. L'amplitude A d'une onde plane qui se propage dans un milieu homogène d'indice $n_h = n_h' + in_h''$ absorbant, s'atténue exponentiellement selon la formule $A = A_0 e^{-\frac{2\pi}{\lambda_0} n_h'' x}$ si x est la direction de propagation de l'onde et A_0 l'amplitude en $x = 0$. Donc, le flux I s'atténue selon la formule $I = I_0 e^{-\frac{4\pi}{\lambda_0} n_h'' x}$ où I_0 est le flux incident en $x = 0$. Par conséquent, dans le cas d'un milieu homogène absorbant, le coefficient d'extinction K_{ext} et le coefficient de diffusion K_{sca} s'écrivent:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h'' \quad \text{(III.30)}$$

$$K_{sca} = 0 \quad \text{(III.31)}$$

6. Que ce soit un modèle qui prenne en compte de la diffusion dépendante ou pas. Kuga, Ulaby, Haddock, et DeRoo (1991) utilisent le modèle QCA (Tsang et Kong 2001; Tsang *et al.* 1985) pour calculer l'extinction et la diffusion par des particules de glace dans un milieu non-absorbant.

Considérons maintenant le cas d'un milieu non-absorbant contenant des diffuseurs sphériques de rayon a absorbant ou non. En régime de diffusion indépendante, les coefficients d'extinction et de diffusion sont linéaires avec la fraction volumique f de particules, et dépendent des sections efficaces d'extinction C_{ext} et de diffusion C_{sca} classiques d'une particule plongée en milieu non-absorbant selon les expressions (III.32) et (III.33) que l'on réécrit:

$$K_{ext} = \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{ext} \quad \text{(III.32)}$$

$$K_{sca} = \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{sca} \quad \text{(III.33)}$$

Ainsi, dans le cas plus général d'un milieu absorbant dans lequel baignent des diffuseurs indépendants, Kuga suppose que l'on peut écrire les coefficients d'extinction, de diffusion et l'albédo selon les expressions (III.27), (III.28) et (III.29). L'extinction due à l'absorption du liant est corrigée d'un facteur $(1-f)$. Le raisonnement pour l'introduction de ce facteur est le suivant: puisque la proportion de matière absorbante a diminué par la présence des diffuseurs contenus dans le milieu en raison d'une fraction volumique f, alors l'absorption devrait par conséquent diminuer d'un facteur $(1-f)$ selon Kuga. Dans le second terme dû à la diffusion et l'absorption des particules, la section efficace d'extinction (de même que la section efficace de diffusion) d'une particule est évaluée comme si la particule était placée dans un milieu hôte non-absorbant d'indice $Re(n_h)$. Il y a au moins deux raisons qui conduisent à penser que la formulation de ce deuxième terme est une approximation. Premièrement, les champs rayonnés par les sphères doivent être modifiés par le simple fait que la sphère est entourée par un milieu hôte d'indice complexe. Par conséquent, les conditions de continuité des composantes tangentielles des champs sont modifiées. Deuxièment, l'amplitude de l'onde incidente décroit le long de la particule au cours de sa propagation, ce qui modifie encore les conditions de continuité des champs. Ces effets sont-ils importants ou non par rapport à l'absorption du liantΓ

Dans la formule de l'extinction (III.27), le seul couplage entre l'absorption du liant d'une part et la diffusion et l'absorption des particules d'autre part, provient du terme $(1-f)$. On peut s'interroger sur la validité d'une telle correction. Nous allons montrer que, cette loi n'est pas correcte dans la limite des très petits diffuseurs devant la longueur d'onde.

Dans la limite du cas statique (encore appelé régime d'homogénéisation) qui peut s'appliquer quand les objets sont supposés très petits devant la longueur d'onde (quand la diffusion est négligeable), la formule de Kuga tends vers:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h''(1-f) \quad \text{(III.34)}$$

quand les diffuseurs sont non-absorbants. La dépendance de l'extinction de Kuga avec la fraction volumique est linéaire. On peut comparer ce résultat à une théorie de milieu effectif (Berthier 1993) car le mélange de très petites particules non-absorbantes dans un milieu absorbant peut être considéré comme un milieu effectif homogène (il n'y a pas de diffusion) d'indice n_{eff}. On peut calculer l'indice effectif du milieu composite et en déduire le coefficient d'extinction:

$$n_{eff} = \sqrt{\epsilon_{eff}} \quad \text{(III.35)}$$

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff}) \quad \text{(III.36)}$$

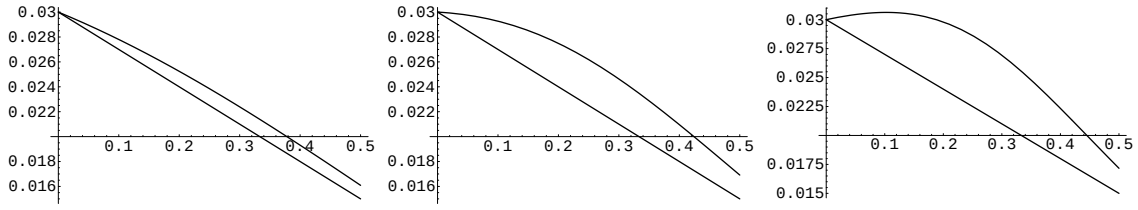
où ϵ_{eff} vérifie l'équation suivante de Bruggeman (1935) valable pour un système 3D avec des inclusions sphériques.

$$\frac{\epsilon_h - \epsilon_{eff}}{\epsilon_h + 2\epsilon_{eff}}(1-f) + \frac{\epsilon_p - \epsilon_{eff}}{\epsilon_p + 2\epsilon_{eff}} f = 0 \quad \text{(III.37)}$$

où $\epsilon_p = n_p^2$ et $\epsilon_h = n_h^2$ sont les permittivités respectives de la particule et du milieu hôte. La solution de cette équation est:

$$\epsilon_{eff} = \frac{(2\epsilon_h - \epsilon_p + 3f(\epsilon_p - \epsilon_h)) + \sqrt{[2\epsilon_h - \epsilon_p + 3f(\epsilon_p - \epsilon_h)]^2 + 8\epsilon_h\epsilon_p}}{4} \tag{III.38}$$

Par exemple, prenons le cas d'un milieu hôte absorbant d'indice $n_h = 1.46 + i * 0.03$ contenant des



(a) $n_p = 2.21$ (b) $n_p = 3.21$ (c) $n_p = 4.21$

FIG. III.7 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (en régime d'homogénéisation) en fonction de la fraction volumique de particules pour différents indices de particules n_p dans un milieu hôte d'indice $n_h = 1.46 + i0.03$ calculée par le modèle de Bruggeman pour des inclusions sphériques. La ligne droite est le résultat obtenu par le modèle de Kuga: $Im(n_h)(1-f)$*

particules non-absorbantes pour différents indices. La comparaison présentée sur la figure (III.7) entre le terme employée par Kuga $Im(nh)(1-f)$ et la partie imaginaire de l'indice effectif montre un désaccord important qui s'accentue avec le contraste d'indice. La diminution de l'absorption du milieu moyen est trop fortement évaluée dans le terme de Kuga. Pour $n_p = 4.21$, l'absorption du milieu a même tendance à augmenter avec la fraction volumique contre toute attente. Rappelons que cette petite étude n'est valable que pour des particules suffisamment petites pour que la diffusion soit négligeable. Nous nous gardons bien de conclure sur une quelconque dépendance de l'absorption du système avec la fraction volumique de particules pour le cas général (par exemple pour le régime de diffusion de Mie) qui n'a rien d'évident *a priori*.

Finalement les approximations nécessaires à l'établissement de la formulation de Kuga peuvent se résumer en 4 points:

- $Im(n_h) << Re(n_h)$ pour que les conditions aux limites sur le diffuseur soient peu modifiées;
- $Im(k_h)a << 1$ pour que l'onde incidente ne s'atténue pas trop fortement le long d'un diffuseur;
- $f << 1$ pour que les effets de diffusion dépendante soient négligeables;
- $|\frac{n_p}{n_h} - 1| << 1$, pour que le contrast d'indice soit faible et que le facteur en $(1-f)$ soit correct ne serait-ce dans le cas d'un régime statique.

L'étude numérique présentée dans la section IV.3 aura pour objectif d'évaluer la limite de validité du modèle de Kuga. Dans le cas vérifiant les deux premiers points (c'est à dire pour un milieu peu absorbant), la section efficace d'extinction de la particule devrait être correctement calculée. Par contre, l'extinction due au liant est mal calculée lors d'un fort contraste d'indice entre les particules et le liant. Nous pensons que le premier terme de la formule de Kuga contribue à une

erreur plus importante que le second terme. Par conséquent, de manière phénoménologique, la formulation suivante devrait être plus réaliste.

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h'' g(f) + \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{ext,p} \tag{III.39}$$

où $g(f)$ est une fonction réelle à déterminer qui dépend du contraste d'indice entre les particules et le liant et de la taille des particules.

Notons que dans l'article de Bruscaglioni *et al.* (1993), les auteurs supposent que le coefficient d'extinction peut s'écrire, avec une hypothèse de diffusion indépendante, sous la forme suivante:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h'' + \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{ext,p} \tag{III.40}$$

Où $C_{ext,p}$ est la section efficace d'extinction due à la particule en milieu absorbant telle qu'elle est définie par Bohren et Gilra (1979) décrit précédemment (Eq. III.12). Il n'y a pas de terme de couplage en $(1-f)$ comme dans la formule de Kuga. En regard de nos conclusions, on ne peut pas affirmer que cette formulation soit plus réaliste que celle de Kuga. Son intérêt est d'inclure la section efficace d'extinction de Bohren et Gilra (1979) du diffuseur en milieu absorbant, ce qui n'était pas proposé par la formule de Kuga.

Pour le chapitre IV, nous avons adapté dans l'annexe D la formulation de Kuga pour un système 2D contenant des diffuseurs cylindriques infinis.

III.4.2 Approche de Fardella

Les idées de Fardella sont décrites en détail dans la thèse de Fardella (1995) et dans un article de conférence (Fardella et Berthier 1994). L'apport essentiel est de permettre d'obtenir à la fois le coefficient d'extinction et le coefficient de diffusion en évitant le passage du calcul des sections efficaces.

Des rapports de flux d'énergie q_{ext} et q_{sca} sont définis:

$$q_{ext} = \frac{W_{ext}}{W_{inc}} \ , \ q_{sca} = \frac{W_{sca}}{W_{inc}} \ , \ q_{abs} = \frac{W_{abs}}{W_{inc}} \ . \tag{III.41}$$

La conservation de l'énergie pour une sphère s'exprime par:

$$W_{abs} = W_{inc} - W_{sca} + W_{ext} \tag{III.42}$$

Par conséquent, on a:

$$q_{sca} + q_{abs} = 1 + q_{ext} \tag{III.43}$$

Plutôt que de raisonner uniquement sur une sphère plongée dans un liant absorbant, Fardella propose de réaliser un bilan d'énergie sur une couche diffusante d'épaisseur infinitésimale (voir Fig. III.8) de taille mésoscopique contenant une petite assemblée de particules. Il exploite par ailleurs les expressions des flux (définis par III.13) W_{inc}, W_{sca} et W_{ext} à travers la surface d'une sphère, calculées sans approximations. L'intensité incidente décroît le long de la couche d'épaisseur dx, par la formule suivante:

$$dI(x) = -K_{ext} I(x) dx \tag{III.44}$$

L'énergie perdue par l'onde collimatée à cause de la couche de surface S est $dI(x)S$. Si la couche ne contient pas de particules, l'énergie perdue est:

$$dI(x)S = -\beta I(x) S dx \tag{III.45}$$

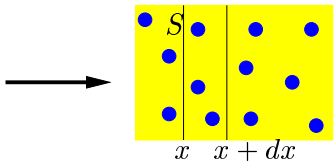


FIG. III.8 – *Couche d'épaisseur dx et de surface S contenant des diffuseurs sur laquelle un bilan d'énergie est calculé*

On suppose que la couche contient N particules et que la diffusion est indépendante. L'énergie absorbée et diffusée par les N sphères est $(W_{sca} + W_{abs})N$. L'énergie qui aurait été absorbée par N sphères de même rayon mais constituées de la matière du milieu hôte est $W_{inc}N$. Ce terme est retranché au précédent sans justification rigoureuse tout comme dans le modèle de Kuga. Ainsi Fardella écrit un bilan d'énergie global:

$$dI(x)S = -\beta I(x)Sdx - [(W_{sca} + W_{abs}) - W_{inc}]N \tag{III.46}$$

Le volume d'une particule est $v_p = \frac{4}{3}\pi a^3$, donc la fraction volumique de particule dans le volume Sdx est:

$$f = N\frac{v_p}{Sdx} \tag{III.47}$$

En utilisant les équations (III.41) (III.44) et (III.47) dans III.46, on obtient:

$$K_{ext} = \beta\left(1 + fq_{ext}\frac{W_{inc}}{V_p\beta I}\right) \tag{III.48}$$

Hespel (1999) montre que le rapport $\frac{W_{inc}}{V_p\beta I} \approx 1$ tant que la longueur d'absorption est petite devant la taille de la particule. Remarquons par ailleurs que cette hypothèse était déjà posée implicitement lors du bilan d'énergie sur la couche puisque l'intensité est supposée constante sur l'épaisseur dx de la couche. Par conséquent, le coefficient d'extinction devient [7]:

$$K_{ext} = \beta(1 + fq_{ext}) \tag{III.49}$$

Cette méthode contourne le problème de la définition d'une section efficace en milieu absorbant au prix d'une approximation finalement identique à celle qui est faite par certains auteurs quand on écrit $C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0}$ en milieu absorbant où I_0 est supposé constant le long de la particule problème. Quand l'absorption du liant tend vers 0, K_{ext} tend vers la solution classique du coefficient d'extinction en milieu non-absorbant sous l'hypothèse d'une diffusion indépendante.

Fardella obtient aussi par son modèle le coefficient de diffusion pour finalement calculer l'albedo.

$$K_{ext} = \beta(1 + fq_{ext}) \tag{III.50}$$
$$K_{sca} = \beta f q_{sca} \tag{III.51}$$
$$\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}} = \frac{fq_{sca}}{(1 + q_{ext})} \tag{III.52}$$

Remarquons que le coefficient d'extinction peut se mettre sous une forme comparable à celle donnée par Kuga:

$$K_{ext} = \beta(1 - f) + f\beta\left(\frac{W_{abs} + W_{sca}}{W_{inc}}\right) \tag{III.53}$$

7. Formule établie à l'origine par Fardella (1995)

Quand on compare la formule de Kuga (Eq. III.27) à celle de Fardella, on s'aperçoit que les différences obtenues sont relativement faibles. On s'attend à une différence importante quand l'absorption augmente, mais le terme d'absorption du liant $\beta(1-f)$ qui est identique dans les deux formulations, devient prépondérant devant l'extinction due à la particule. Des différences entre Kuga et Fardella sur le coefficient de diffusion ne s'observent que quand l'absorption du liant est très importante, i.e. quand l'albedo est petit. Une comparaison entre les deux modèles est présentée pour le cas des cylindres en milieu absorbant en annexe D. La forme de l'absorption du liant en $\beta(1-f)$ est heuristique dans les deux formulations.

III.4.3 Approche de Yang *et al.*

Nous sommes en accord avec deux points concernant les idées d'un récent article (Yang *et al.* 2002).

- Ils estiment que les sections efficaces de diffusion et d'extinction de la particule calculées en champ proche (qu'ils nomment propriétés de diffusion inhérente) ne peuvent pas être utilisées directement pour le calcul des coefficients de diffusion et d'extinction d'un ensemble de particules.
- Ils préfèrent exploiter la valeur des champs diffusés en champ lointain qu'ils définissent comme les propriétés de diffusion apparente.

Le coefficient d'extinction est calculé selon ces auteurs par la formule suivante qui n'est pas plus justifiée que celle de Kuga:

$$K_{ext} = \beta + K_{ext,p} \tag{III.54}$$

où $K_{ext,p}$ est le coefficient d'extinction dû aux particules uniquement défini par:

$$K_{ext,p} = \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} C_{ext,p} \tag{III.55}$$

avec $C_{ext,p}$, la section efficace d'une particule telle que:

$$C_{ext,p} = \sigma_{abs} + \sigma_{sca} \tag{III.56}$$

où σ_{abs} est une expression obtenue en calculant les flux en champ proche de la sphère comme Sudiarta et Chylek (2001b), tandis que σ_{sca} est calculé par les flux diffusés intégrés en champ lointain renormalisés à cause de l'atténuation dans le liant absorbant. Une expression identique de σ_{sca} se trouve dans l'article de Mundy, Roux, et Smith (1974). Une fois de plus ce modèle est phénoménologique.

III.5 Coefficient d'extinction en milieu à pertes par la théorie de la diffusion multiple

Plutôt que de tenter de définir une section efficace d'extinction en milieu absorbant pour trouver le coefficient d'extinction, nous montrons que l'on peut contourner le problème en calculant directement le coefficient d'extinction en appliquant la théorie de la diffusion multiple. L'idée est très simple. Nous avons vu au chapitre II que l'équation de Dyson justifie en toute rigueur l'existence d'un indice effectif n_{eff} pour un champ cohérent dans tout milieu diffusant, absorbant ou non. Or le coefficient d'extinction et l'indice effectif sont simplement reliés par:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff}) \tag{III.57}$$

Partie imaginaire de l'indice effectif et coefficient d'extinction sont donc une seule et même chose. L'indice effectif est relié au nombre effectif k_{eff} etau nombre d'onde dans le vide par la relation $k_{eff} = n_{eff}k_0$, et le nombre d'onde effectif est reliée à l'opérateur de masse par la relation:

$$k_{eff}^2 = k_1^2 + \sum(\mathbf{k}_{eff}) \tag{III.58}$$

La difficulté est maintenant de calculer l'opérateur de masse en fonction des paramètres du milieu. Une expression générale de l'opérateur de masse pour le cas des diffuseurs aléatoirement disposés dans l'espace est donnée au chapitre II. Nous verrons que sous l'approximation des diffuseurs non-corrélés[8], l'indice effectif a une expression analytique (approximation de Foldy-Twersky[9]) qui s'obtient sans aucun problème majeur. L'une des forces de la théorie de la diffusion multiple, est qu'elle offre un cadre formel et rigoureux adapté au problème de la diffusion dépendante quand le système comporte de fortes fractions volumiques de particules diffusantes.

L'approximation qui prend en compte le premier terme corrélé dans l'opérateur de masse est appelée l'approximation de Keller (1964). Ce modèle n'est justifié par l'auteur que pour des ondes scalaires et des diffuseurs ponctuels très petits devant la longueur d'onde. On peut l'étendre heuristiquement au cas de diffuseurs de Mie. D'ailleurs, des comparaisons entre des mesures expérimentales du coefficient d'extinction pour un milieu contenant des particules de latex dans de l'eau éclairé par un laser dans le rouge, et le modèle de Keller, montrent un bon accord pour des particules de taille proche de la longueur d'onde (Hespel *et al.* 2001) quand le milieu diffusant est non-absorbant. Nous avons par conséquent adapté le modèle de Keller en milieu absorbant pour prendre en compte un effet de diffusion dépendante.

La théorie de la diffusion multiple est décrite au chapitre II. Nous avons particulièrement détaillé les notions et les notations nécessaires à l'étude du champ moyen (ou champ cohérent) valable pour un milieu contenant des diffuseurs aléatoirement disposés dans un milieu hôte, qu'il soit absorbant ou non.

III.5.1 Relation entre l'opérateur de diffusion t et la matrice de diffusion S de Mie pour un diffuseur sphérique

Dans la théorie de la diffusion multiple présentée au chapitre II, l'opérateur de masse $\sum$ est développé perturbativement en fonction de l'opérateur $\mathbf{t}$ de diffusion d'une particule qui relie le champ total au champ incident par la relation (en notation):

$$\mathbf{E} \quad = \quad \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G_1 t E}_{inc} \tag{III.59}$$

La théorie de Mie ne fournit pas $\mathbf{t}$, mais la matrice de diffusion S. Le but de ce paragraphe est d'établir le lien entre $\mathbf{t}$ et S en milieu à pertes.

Comme le champ total est la somme du champ incident et du champ diffusé:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{E}_{sca},$$

le champ diffusé est explicitement:

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \int \overleftrightarrow{\mathbf{G_1}}\,(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\,\overleftrightarrow{\mathbf{t}}\,(\mathbf{r}',\mathbf{r}'')\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}'')d^3\mathbf{r}'d^3\mathbf{r}''. \tag{III.60}$$

Pour le calcul de la transformée de Fourier directe et inverse de $\mathbf{t}$ nous avons choisi la convention suivante:

$$\overleftrightarrow{\tilde{\mathbf{t}}}\,(\mathbf{k}',\mathbf{k}'') \quad = \quad \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}}\,(\mathbf{r}',\mathbf{r}'')e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}'}e^{i\mathbf{k}''\mathbf{r}''}d^3\mathbf{r}'d^3\mathbf{r}'' \tag{III.61}$$

$$\overleftrightarrow{\mathbf{t}}\,(\mathbf{r}',\mathbf{r}'') \quad = \quad \int \overleftrightarrow{\tilde{\mathbf{t}}}\,(\mathbf{k}',\mathbf{k}'')e^{i\mathbf{k}'\mathbf{r}'}e^{-i\mathbf{k}''\mathbf{r}''}\frac{d^3\mathbf{k}'}{(2\pi)^3}\frac{d^3\mathbf{k}''}{(2\pi)^3} \tag{III.62}$$

8. L'approximation des diffuseurs non-corrélés est équivalente à l'approximation de la diffusion indépendante
9. Foldy (1945) et Lax (1951)

Quand un diffuseur possède une forme simple, comme par exemple une sphère, il est utile de calculer l'opérateur directement en exploitant le résultat de la théorie de Mie. Pour cela, on peut prendre pour définition de $\mathbf{t}$ la relation (III.60). Le plan incident et le plan de diffusion ainsi que

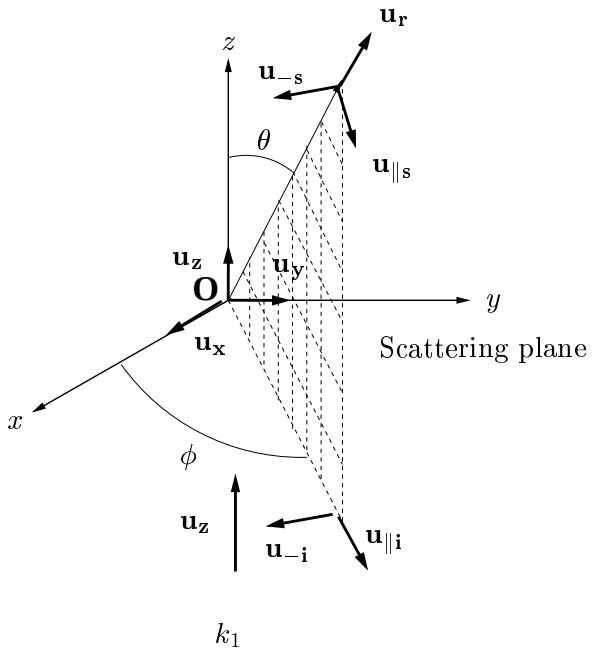


FIG. III.9 – *Définition du plan de diffusion de Bohren et Huffman.*

leurs angles unitaires associés, sont définis par la Fig.III.9 et les relations suivantes:

$$\mathbf{u_{-i}} = sin\phi\mathbf{u_x} - cos\phi\mathbf{u_y} = \mathbf{u_{-s}} \quad \mathbf{u_{\|i}} = sin\phi\mathbf{u_x} + sin\phi\mathbf{u_y} = sin\theta\mathbf{u_r} + cos\theta\mathbf{u_{\|s}}$$
$$\mathbf{u_{-i}} \times \mathbf{u_{\|i}} = \mathbf{u_z} \qquad \mathbf{u_{-s}} \times \mathbf{u_{\|s}} = \mathbf{u_r}$$

Les champs incident et diffus peuvent s'exprimer dans la base de Bohren et Huffman:

$$\mathbf{E_{inc}} = E_{\|i}\mathbf{e_{\|i}} + E_{-i}\mathbf{e_{-i}} \tag{III.63}$$
$$\mathbf{E_{sca}} = E_{\|s}\mathbf{e_{\|s}} + E_{-s}\mathbf{e_{-s}}. \tag{III.64}$$

Comme le vecteur d'onde incident $\mathbf{k_{inc}} = (0, 0, k_1)$ est orienté selon z, le champ incident est de la forme:

$$\mathbf{E_{inc}} = \mathbf{E_0}e^{ik_1z-i\omega t} = \left(E_{0\|}\mathbf{e_{\|i}} + E_{0-}\mathbf{e_{-i}}\right)e^{ik_1z-i\omega t}, \tag{III.65}$$

où $E_{0\|}$ et E_{0-} sont les amplitudes des composantes du champ incident en $\mathbf{r} = 0$ pour les polarisations parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion. Avec ces conventions, la matrice de diffusion S, telle qu'elle est définie par Bohren et Huffman (1983) ou van de Hulst (1981), relie les champs diffusés dans le domaine du champ lointain, et le champ incident par:

$$\mathbf{E_{sca}} = \frac{e^{ik_1r}}{-ik_1r}S_{k_1}(\theta)\mathbf{E_0} \tag{III.66}$$

où l'indice k_1 en dessous de la matrice S indique pour quel nombre d'onde elle doit être calculée et où $cos(\theta) = \mathbf{u_z} \cdot \mathbf{u_r}$. La relation (III.66) est toujours valable quand k_1 est complexe, et S_{k_1} est calculable numériquement très aisément. On peut pour cela utiliser le code que l'on trouve dans le livre de Bohren et Huffman (1983) qu'il faut toutefois adapter au cas où l'indice du liant

est complexe. Aucun problème mathématique ni numérique n'a été remarqué pour le calcul de la matrice S, autre que ceux habituellement rencontrés dans le cas d'un milieu hôte non-absorbant.

Montrons que l'opérateur de diffusion dans l'espace des $\mathbf{k}$ en champ lointain est relié à la matrice de Mie. Dans le cas d'un milieu hôte non-absorbant, il existe une démonstration semblable (Frisch 1968; Ishimaru 1978b). Si on insère l'expression asympotique du tenseur de Green en champ lointain (Eq. A.25) et la forme du champ incident (Eq. III.65) dans l'équation (III.60), alors on obtient:

$$\mathbf{E_{sca}}(\mathbf{r}) = \frac{e^{ik_1 r}}{4\pi r} \overleftrightarrow{\Delta}_{\mathbf{T}} \int e^{-ik_1 \mathbf{u_r}\cdot\mathbf{r}'} d^3\mathbf{r}' \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r}', \mathbf{r}'') e^{ik_1 \mathbf{u_z}\mathbf{r}''} \mathbf{E_0} d^3\mathbf{r}'' \tag{III.67}$$

$$= \frac{e^{ik_1 r}}{4\pi r} \overleftrightarrow{\Delta}_{\mathbf{T}} \overleftrightarrow{\widetilde{\mathbf{t}}}\ (k_1\mathbf{u_r}, k_1\mathbf{u_z})\mathbf{E_0} \tag{III.68}$$

Remarquons que dans un milieu absorbant, le nombre d'onde k_1 est complexe. La transformée de Fourier avec un argument complexe n'est pas rigoureusement une transformée de Fourier. Il s'agit plus précisément d'une transformée de Laplace (Petit 1991). Mais $\mathbf{t}$ dans l'espace des $\mathbf{k}$ est correctement défini, car le support de $\mathbf{t}$ dans l'espace réel est borné au volume de la particule. Par comparaison des équations (III.68) et (III.66), on peut identifier l'opérateur de diffusion et la matrice de diffusion de Mie.

$$\overleftrightarrow{\Delta}_{\mathbf{T}} \overleftrightarrow{\widetilde{\mathbf{t}}}\ (k_1\mathbf{u_r}, k_1\mathbf{u_z}) = \frac{i4\pi S_{k_1}(\theta)}{k_1} \tag{III.69}$$

Dans le cas particulier de la direction avant ($\theta = 0$),

$$\overleftrightarrow{\widetilde{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1}) = \frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} \tag{III.70}$$

Limite de l'opérateur de diffusion pour des particules très petites devant la longueur d'onde

Afin de vérifier la validité de cette relation en milieu absorbant, nous allons l'appliquer au cas des petites particules et comparer l'expression obtenue à celle que nous avons montré au chapitre II. On peut calculer l'opérateur de diffusion pour une particule très petite devant la longueur d'onde par deux méthodes différentes. Une première méthode consiste à utiliser le développement limité de $S(0)$ quand le rayon de la particule tend vers 0 puis utiliser la relation (III.70) . On peut aussi évaluer directement l'opérateur de diffusion à partir de sa définition comme nous l'avons fait dans la section II.5.2 du chapitre II. La comparaison des deux résultats doit être identique. Cela permet de vérifier la validité de la relation (III.70) dans ce cas limite. Dans la direction avant, on a (Bohren et Huffman 1983):

$$S_{k_1}(0) = -ix^3 \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} + O(x^4) \tag{III.71}$$

où $x = k_1 a << 1$ est le paramètre de taille et $m = \frac{n_p}{n_1}$ est le rapport d'indice des particules par rapport au milieu hôte. On obtient sans difficulté l'expression de l'opérateur de diffusion d'une particule à partir de (III.71) et (III.70):

$$\lim_{\frac{a}{\lambda}\to 0} \overleftrightarrow{\widetilde{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1}) = 4\pi a^3 \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \epsilon_1 \tag{III.72}$$

Il est réconfortant de retrouver l'expression (II.75) démontrée précédemment.

III.5.2 Diffusion indépendante en milieu absorbant: approximation de Foldy-Twersky généralisée

Nous avons vu au chapitre II que l'approximation de Foldy-Twersky de l'opérateur de masse peut s'écrire selon l'expression suivante.

$\sum \; = \; \bigcirc$

Opérateur de masse pour une distribution très diluée de diffuseurs (III.73)

En utilisant la relation entre la permittivité effective et l'opérateur de masse (III.58) et l'approximation de Foldy-Twersky (III.73), on obtient une expression de la permittivité effective en fonction de l'opérateur de diffusion d'une particule et de la fraction volumique f.

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + \frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} \frac{\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\,(\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1})}{k_0^2} \tag{III.74}$$

Si on utilise maintenant la relation entre l'opérateur de diffusion d'une particule et la matrice de diffusion S de Bohren et Huffman (III.70), on obtient

$$\boxed{\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3} \frac{1}{k_0^2} \frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}} \tag{III.75}$$

Le coefficient d'extinction s'obtient immédiatement par:

$$\boxed{K_{eff} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(\sqrt{\epsilon_{eff}})} \tag{III.76}$$

L'indice k_1 en dessous de la matrice de diffusion indique que S doit être évaluée pour le nombre d'onde k_1 dans le milieu hôte absorbant. La relation (III.75) constitue un résultat central. Il généralise le modèle de Foldy-Twersky (Le nom du modèle change selon les auteurs [10]) au cas des diffuseurs plongés en milieu absorbant.

Tant que la diffusion peut être supposée indépendante, cette formule du coefficient d'extinction est rigoureuse. Aucun concept phénoménologique contrairement aux autres modèles présentés dans la littérature n'a été nécessaire à son établissement. Le problème théorique du calcul du coefficient d'extinction en milieu absorbant est donc résolu sans ambiguité. Cela n'implique pas qu'il y ait de très fortes différences entre les prévisions des modèles de Kuga et de Foldy-Twersky généralisé. Des comparaisons entre les deux modèles présentés à la fin du chapitre montrent un désaccord qui dépend du rapport d'indice particule sur liant. Si ce rapport est faible, les différences s'observent essentiellement pour des paramètres de taille de particules tels que les particules sont en résonance de Mie. Si ce rapport est fort, très peu de différences sont obtenues, sauf pour des paramètres de taille très petits tels que le régime de diffusion soit proche du régime d'homogénéisation. Nous savions déjà que le modèle de Kuga n'est pas correct dans ce régime.

10. Dans son article, Foldy (1945) donne une expression de la permittivité effective pour le cas de diffuseurs petits devant la longueur d'onde. Puis Lax (1951) l'a généralisé par une méthode rigoureuse pour des diffuseurs de taille quelconque. La formule devrait par conséquent s'appeler la formule de Foldy-Lax. Mais certains autres auteurs comme Ishimaru (1978b) l'a dénomme formule de Foldy-Twersky.

Limite de Foldy-Twersky généralisé pour des particules sphériques très petites: régime d'homogénéisation et prémisses de la diffusion

Pour une fraction volumique fixée, quand le rayon des particules tend vers 0, la permittivité effective tend vers:

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + 3f\epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \tag{III.77}$$

Si les particules et le liant sont non-absorbants, la permittivité effective est réelle. Par conséquent le coefficient d'extinction est nul.

$$K_{ext} = 0 \tag{III.78}$$

Ce régime est appelée régime d'homogénéisation. Remarquons que l'on retrouve la formule de la permittivité effective qu'obtenait Maxwell-Garnet (1904) dans le régime d'homogénéisation pour une faible fraction volumique de diffuseur ϵ_p:

$$\frac{\epsilon_{eff} - \epsilon_1}{\epsilon_{eff} + 2\epsilon_1} = f\frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \Leftrightarrow \epsilon_{eff} = \epsilon_1 + f(2\epsilon_1 + \epsilon_{eff})\frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \tag{III.79}$$

Pour éliminer l'inconnu ϵ_{eff} du coté droit de l'équation, on peut réinjecter l'expression de ϵ_{eff} à l'infini pour obtenir un développement perturbatif en puissance de la fraction volumique. Quand la fraction volumique n'est pas trop forte, on peut garder uniquement le terme linéaire avec la fraction volumique.

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + f3\epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} + O(f^2) \tag{III.80}$$

Ce résultat montre que sous des approximations identiques, i.e. pour des particules très petites devant la longueur d'onde et une faible fraction volumique de diffuseurs, le modèle de Foldy-Twersky et le modèle de Maxwell-Garnet sont équivalents. Comme le modèle de Foldy-Twersky a un domaine de validité plus étendu en terme de taille de particule, on peut analyser la transition entre le régime d'homogénéisation et le régime de diffusion.

Pour qu'apparaissent les prémisses de la diffusion, il faut poursuivre le développement perturbatif (en $\frac{a}{\lambda_0}$) de la matrice S car les ordres supérieurs contiennent des termes complexes, i.e. un coefficient d'extinction non-nul.

$$S_{k_1}(0) = -ix^3 A - ix^5 B + x^6 \frac{2}{3} A^2 + O(x^7) \tag{III.81}$$

$$\text{avec } x = \frac{2\pi a}{\lambda} \text{ , } A = \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \text{ , } B \text{ est une fonction de } m \tag{III.82}$$

On obtient la permittivité effective suivante en injectant (III.81) dans la formule de Foldy-Twersky (III.75).

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + 3f\left[\epsilon_1 A + \left(\frac{2\pi a}{\lambda_0}\right)^2 n_1^4 B\right] + i3f\left(\frac{2\pi a}{\lambda_0}\right)^3 n_1^5 \frac{2}{3} A^2 \tag{III.83}$$

Supposons que le milieu hôte et les particules soient non-absorbants, alors la partie imaginaire de ϵ_{eff} est due uniquement au terme en $\left(\frac{2\pi a}{\lambda_0}\right)^3$. Le terme imaginaire apparaît à cause du phénomène de diffusion. La partie réelle est aussi légèrement affectée. Nous voulons calculer le coefficient d'extinction, donc nous avons besoin d'une expression de la partie imaginaire de l'indice effectif. Pour aboutir à une expression simple, on peut raisonnablement supposer que:

$$\left(\frac{2\pi a}{\lambda_0}\right)^2 n_1^4 B \quad << \quad \epsilon_1 A \tag{III.84}$$

$$Im(\epsilon_{eff}) \quad << \quad Re(\epsilon_{eff}) \tag{III.85}$$

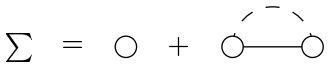
On obtient alors le coefficient d'extinction suivant:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff}) = \frac{4\pi}{\lambda_0} f \left(\frac{2\pi a n_1}{\lambda_0}\right)^3 \left(\frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1}\right)^2 \tag{III.86}$$

Pour donner un ordre de grandeur, prenons le cas d'un système composé de billes de latex $n_p = 1.59$ telles que $\frac{a}{\lambda_0} = \frac{1}{50}$ dans de l'eau $n_h = 1.33$, en raison d'une fraction volumique de $f = 1\%$, éclairé par un laser Helium-Neon dans le rouge tel que $\lambda_0 = 633nm$. On trouve $K_{ext} = 15.6m^{-1}$, soit un libre parcours moyen d'extinction $l_{ext} = 6.4cm$. Ce qui veut dire qu'un verre rempli de cette substance devrait apparaître légèrement trouble. Pourtant la fraction volumique de diffuseur est relativement élevée (la distance inter-centre des diffuseurs est environ $0.7\mu m$) de sorte que l'on aurait pu s'attendre à un milieu beaucoup plus diffusant. Ce *grand* libre parcours moyen s'explique par une très faible section efficace[11] de diffusion pour des particules très petites devant la longueur d'onde. Le coefficient d'extinction dépend fortement, dans ce régime, de la longueur d'onde. Par exemple, dans le bleu pour $\lambda = 0.4\mu m$, on obtient un libre parcours moyen d'extinction plus petit $l_{ext} = 1.6cm$. Comme le milieu diffuse plus dans le bleu que dans le rouge, la lumière réfléchie par diffusion est plus importante dans le bleu que dans le rouge. Le milieu devrait par conséquence apparaître d'une couleur plus proche du bleu que du rouge. La mer et le ciel apparaissent bleus pour les mêmes raisons.

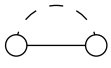
III.5.3 Diffusion dépendante en milieu absorbant: modèle de Keller généralisé

Les effets les plus intéressants de diffusion en milieu absorbant devraient apparaître pour le cas des fortes fractions volumiques de particules. Le modèle de Foldy-Twersky généralisé en milieu absorbant à un défaut: il repose sur l'approximation (III.73) qui néglige les corrélations qui sont à l'origine de la diffusion dépendante. Pour prendre en compte la diffusion dépendante qui apparait pour une forte fraction volumique de diffuseurs, on fait maintenant l'approximation de Keller pour l'opérateur de masse qui est:



Opérateur de masse pour une distribution de particules faiblement contrastées (III.87)

Le premier terme est l'approximation de Foldy-Twersky calculé précédemment. Il faut calculer le second terme que nous appelons l'Opérateur de Diffusion Double Corrélé (ODDC) dans l'espace de Fourier. Ce calcul est détaillé dans l'annexe B, et on obtient dans l'approximation scalaire:

 $(\mathbf{k}) = \left(\frac{f}{4/3\pi a^3}\right)^2 \left(\frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k} \int_0^{+\infty} e^{ikr} g_2(r) sin(kr) dr$

Opérateur de diffusion double corrélé (III.88)

Où g_2 est la fonction de corrélation de paire qui dépend de la fraction volumique f (on trouvera un graphique de cette fonction au chapitre II pour le cas du modèle de Percus-Yevick). Cette formule n'est rigoureuse que dans le cas limite de particules de taille ponctuelle, sphériques, et pour des ondes scalaires. Sa validité pour des particules plus grandes et pour des ondes électromagnétiques n'est pas évidente.

11. La section efficace de diffusion est beaucoup plus petite que la section géométrique de la particule πa^2.

On peut alors obtenir la formule de Keller donnant une équation entre le nombre d'onde effectif pour des diffuseurs de matrice de diffusion S en utilisant (III.58), (III.87) et (III.88).

$$\boxed{k_{eff}^2 = k_1^2 + i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} + \left(i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k_{eff}}\int_0^\infty e^{ik_1 r} sin(k_{eff} r) g_2(r) dr} \quad \text{(III.89)}$$

Pour des fractions volumiques de quelques pour cent, la fonction $g_2(r)$ est avec une bonne approximation peu différente de -1 pour $r < 2a$, et nulle pour $r > 2a$. Dans ce cas, la longueur de corrélation est peu différente de $2a$. Sous cette approximation appelée "gas-pair approximation" en anglais, la formule de Keller devient:

$$k_{eff}^2 = k_1^2 + i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} - \left(i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k_{eff}}\int_0^{2a} e^{ik_1 r} sin(k_{eff} r) dr \quad \text{(III.90)}$$

L'intégrale que contient cette équation est calculable analytiquement si besoin.

Remarquons que l'approximation scalaire pour des ondes électromagnétiques devrait être d'autant plus fausse si le rayon des particules est petit, car le comportement de la fonction de Green scalaire en champ proche en $\frac{1}{r}$ est très différent de celle du tenseur de Green en $\frac{1}{r^3}$. Par conséquent, l'approximation scalaire devrait sous-estimer les effets de ces corrélations. Remarquons par ailleurs que le domaine de validité de l'approximation de Keller a toutes les chances d'être restreint aux faibles contrastes d'indice car dans ce cas, des corrélations liées aux diffusions multiples récurrentes entre les diffuseurs devraient apparaître.

Méthode de résolution

L'équation intégrale pour k_{eff} (III.89) ne peut être résolue analytiquement. Mais comme le second terme est une perturbation de second ordre, on peut suivant Keller calculer k_{eff}^2 dans son approximation locale, i.e. on remplace k_{eff} par k_1 dans ce second terme. Dans ce cas, on a une expression directe du nombre d'onde effectif:

$$k_{eff}^2 = k_1^2 + i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} + \left(i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k_1}\int_0^\infty e^{ik_1 r} sin(k_1 r) g_2(r) dr \quad \text{(III.91)}$$

Si toutefois, on souhaite résoudre l'expression de Keller non-locale (III.89), on peut se demander si la solution de cette équation est unique. Hespel *et al.* (2001) résolvent cette équation par un algorithme d'optimisation adapté pour une équation de $\mathcal{C}$ dans $\mathcal{C}$. Cette méthode demande toutefois de nombreux tests de solution avant de s'en rapprocher. On peut aussi résoudre cette équation par une méthode itérative: on commence pour cela par évaluer k_{eff} à l'ordre de Foldy-Twersky:

$$k_{eff,0}^2 = k_1^2 + i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} \quad \text{(III.92)}$$

puis on injecte $k_{eff,0}$ dans le membre droit de (III.89) pour obtenir $k_{eff,1}^2$:

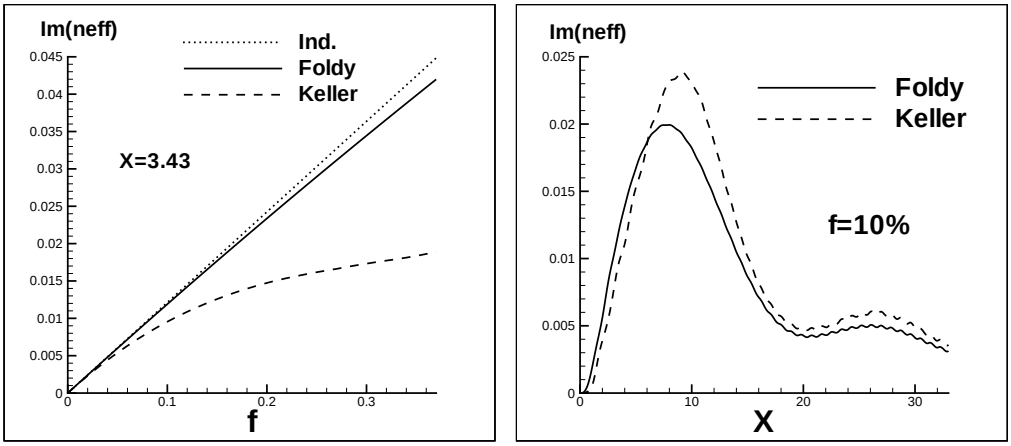
$$k_{eff,1}^2 = k_{eff,0}^2 + \left(i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k_{eff,0}}\int_0^\infty e^{ik_1 r} sin(k_{eff,0} r) g_2(r) dr \quad \text{(III.93)}$$

On peut réitérer cette procédure N fois:

$$k_{eff,N}^2 = k_{eff,0}^2 + \left(i\frac{f}{\frac{4}{3}\pi a^3}\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k_{eff,N-1}}\int_0^\infty e^{ik_1 r} sin(k_{eff,N-1} r) g_2(r) dr \quad \text{(III.94)}$$

jusqu'à ce que l'on ait $k_{eff,N} \approx k_{eff,N-1}$ avec une approximation suffisante. Dans la pratique, tant que le terme d'ordre 2 en f est une perturbation de l'ordre 1, on obtient en moins de $N = 10$ itérations, une valeur du nombre d'onde effectif qui satisfait à l'équation de Keller (III.89).

Quelques effets connus de diffusion dépendante et comportement de la formule de Keller dans un milieu hôte non-absorbant



(a) $a = 0.26\mu m$ ($X = 3.43$), $n_p = 1.59$. *Ind.* désigne le résultat déduit du coefficient d'extinction à partir d'une théorie de diffusion indépendante.

(b) $f = 10\%$, $n_p = 1.59 + i0.001$

FIG. III.10 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (reliée au coefficient d'extinction par* $K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff})$ *) en fonction de la fraction volumique* f *ou du paramètre de taille* $X = \frac{2\pi n_h a}{\lambda_0}$ *lorsque le milieu hôte est non-absorbant. Caractéristiques communes:* $n_h = 1.33$, $\lambda_0 = 0.633\mu m$.

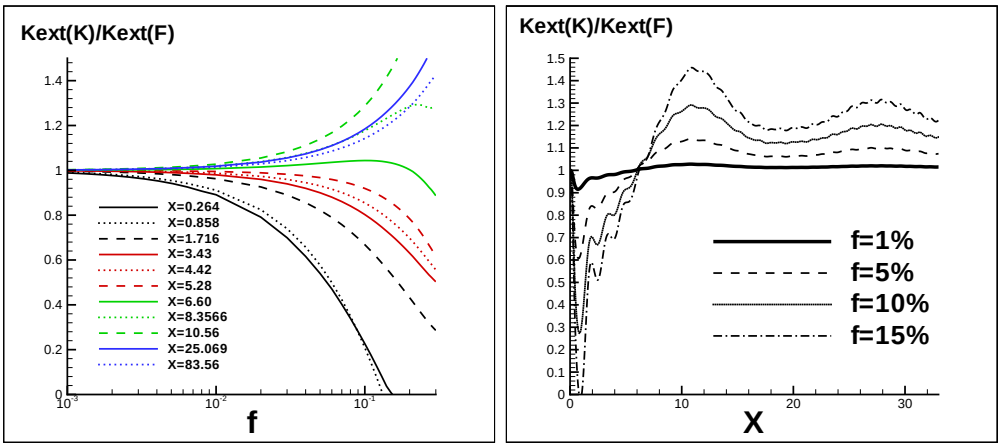
Nous représentons sur la figure III.10, le comportement du coefficient d'extinction obtenu par le modèle de diffusion indépendante (Eq. III.1), l'approximation de Foldy-Twersky (Eq. III.75) et le modèle de Keller (Eq. III.89). Le coefficient d'extinction est calculé en fonction de la fraction volumique pour un rayon fixé, ou en fonction du rayon de la particule pour une fraction volumique fixée. Sur la figure III.10(a), on voit que le résultat de l'approximation de Foldy-Twersky est quasi-équivalent au résultat du calcul de diffusion indépendante proportionnel à la fraction volumique. Pour un paramètre de taille $X = 3.43$, le modèle de Keller prédit un coefficient d'extinction plus faible que celui prédit par la diffusion indépendante. Pour ces indices du milieu hôte et des diffuseurs, on voit sur la figure III.10(b) que la première résonance de Mie apparait pour un rayon proche de $a = 0.6\lambda_0$. Le comportement pour $f = 10\%$ prédit par Keller en fonction du paramètre de taille X donne une résonance légèrement décalée par rapport au résultat de Foldy-Twersky.

Des résultats expérimentaux[12] et des simulations numériques exactes[13] montrent que le coefficient d'extinction en fonction de la fraction volumique n'est plus linéaire dès que f dépasse quelques pour cent. Certaines études montrent que le coefficient d'extinction est plus petit que celui prévu par une théorie de diffusion indépendante quand les particules ont des tailles petites devant la longueur d'onde, et que le rapport d'indice $\frac{n_p}{n_h}$ n'est pas trop fort. Quand la taille des particules s'approche de la longueur d'onde, l'effet s'inverse: l'extinction est plus forte que ce que prévoit la diffusion indépendante.

Hespel *et al.* (2001) ont réalisé une comparaison expérimentale avec le modèle de Keller pour différentes tailles de particules de latex plongées dans de l'eau et différentes fractions volumiques.

12. Ishimaru et Kuga (1982); Drolen, Kumar, et Tien (1987); Mandt, Kuga, et Ishimaru (1992); West, Gibbs, Tsang, et Fung (1994); Gélébard, Ferrand, Schnorenberg, et Avrilier (1995); Gobel, Kuhn, et Fricke (1995); Nashashibi et Sarabandi (1999); Hespel, Mainguy, et Greffet (2001)

13. Tsang, Mandt, et Ding (1992); Lu, Wang, Chew, et Tsang (1993); Lu, Chew, et Tsang (1995); Siqueira et Sarabandi (2000)



(a) $n_p = 1.59$ (b) $n_p = 1.59 + i0.001$

FIG. III.11 – *Rapport entre l'extinction obtenue par le modèle de Keller et celui de Foldy-Twersky, en fonction de la fraction volumique f ou du paramètre de taille $X = \frac{2\pi n_h a}{\lambda_0}$ lorsque le milieu hôte est non-absorbant. Caractéristiques communes: $n_h = 1.33$, $\lambda_0 = 0.633\mu m$.*

L'augmentation ou la diminution de l'extinction prévue par le modèle de Keller (Fig. III.11(a) et III.11(b) par rapport à la diffusion indépendante est bien reproduite dans une certaine mesure. Pourtant, la correction à l'approximation de la diffusion indépendante qu'apporte le modèle de Keller est phénoménologique pour le cas de grosses particules. Il est par conséquent étonnant que cette formule fonctionne. Si un désaccord apparaît pour le cas des petites particules éclairées par une onde électromagnétique, cela ne devrait pas nous étonner puisque la correction de Keller est un modèle scalaire qui a toutes les chances de ne pas fonctionner à cause des corrélations en champ proche mal reproduites par le modèle scalaire.

Pour quelle raison physique le coefficient d'extinction n'est il pas une fonction linéaire de la fraction volumique? Pour commencer, supposons qu'un système soit composé de diffuseurs non-corrélés. Dans ce cas, les ondes diffusées par les particules n'ont pas de phases privilégiées. Après moyenne, ces ondes sont spatialement incohérentes entre elles. Ainsi, la théorie de la diffusion indépendante consistant à sommer de façon incohérente la puissance diffusée par les particules est valable (c'est ce que l'on fait quand on utilise la relation III.1). Quand on dit "sommer de manière incohérente", on sous entend additionner les puissances plutôt que de sommer d'abord les amplitudes. Le calcul de la puissance est donc valable car les ondes sont incohérentes entre elles. Cette sommation implique la linéarité du coefficient d'extinction avec f. Maintenant, considérons un système composé de diffuseurs corrélés du fait, par exemple, de la non-interpénétrabilité de ces diffuseurs. Ces corrélations, d'autant plus importantes que la fraction volumique est importante, brisent cette propriété d'incohérence des champs en moyenne. En d'autres termes les ondes diffusées ont des phases priviligiées qui ont un rôle, même après moyenne. Dans la direction avant en champ lointain, le champ moyen est modifié à cause d'effets d'interférences constructives ou destructives qui subsistent, même après moyenne sur l'ensemble des positions possibles des diffuseurs. Energétiquement, ces effets cohérents sont particulièrement importants car ils modifient la distance sur laquelle la puissance d'une onde électromagnétique collimatée se transforme en une puissance de nature diffuse.

Sur les courbes de l'extinction en fonction de la taille des particules pour différentes fractions volumiques fixées (Fig. III.11(b)), on remarque que la formule de Keller prévoit que la transition entre la diminution et l'augmentation de l'extinction en fonction du rayon a, i.e. quand

$\frac{K_{ext}(Keller)}{K_{ext}(Foldy)} = 1$, semble indépendante de la fraction volumique (en tout cas jusqu'à au moins 15%). Les résultats numériques montrent que le paramètre de taille auquel correspond la transition est très proche de $X = 6$, soit $a \approx 0.72\lambda_0$. Ce rayon devrait par ailleurs satisfaire à l'équation suivante:

$$Im\left[k_{eff}(Keller)\right] = Im[k_{eff}(Foldy)] \tag{III.95}$$

On pourrait se dire que cette équation est satisfaite quand les corrélations sont nulles. C'est à dire quand le terme en f^2 de la formule de Keller (III.89) est nul. Mais on se rend compte, tout au moins dans l'approximation "gas-pair", que ce terme n'est jamais nul[14]. Les corrélations jouent un rôle à la fois sur la partie imaginaire et la partie réelle de l'indice effectif. Par exemple pour $f = 15\%$ et $X = 6$, l'équation (III.95) est satisfaite, mais on a un écart notable entre les parties réelles des deux modèles (on a $Re[k_{eff}(Keller)] \neq Re[k_{eff}(Foldy)]$) dû aux corrélations.

III.6 Comparaison des modèles d'extinctions en milieu absorbant

III.6.1 Comparaison des modèles de Kuga et Foldy-Twersky généralisé en milieu absorbant, en régime de diffusion indépendante

Nous avons montré au début du chapitre que le terme en $(1 - f)$ phénoménologique présent dans la formule de Kuga (III.27) était faux dans le régime d'homogénéisation[15] quand le rapport d'indice des particules sur le liant est fort. Pour le démontrer, nous avons comparé le modèle de Kuga au modèle de Bruggeman valable en régime d'homogénéisation. Dans le cas d'un milieu diffusant, on peut utiliser la formule rigoureuse de Foldy pour calculer les éventuelles erreurs introduites par le modèle de Kuga - tant que le régime de diffusion est indépendant i.e. pour de faibles fractions volumiques. L'ensemble des comparaisons Kuga-Foldy est présenté Fig. III.12.

Comme la formule de Foldy est aussi valable en régime d'homogénéisation, on retrouve que le le terme en $(1 - f)$ du modèle de Kuga n'est pas valable. On le voit sur les figures III.12(e) et III.12(f) pour le cas de diffuseurs fortement contrastés par rapport au liant et pour des diffuseurs petits devant la longueur d'onde. Par contre, toujours pour un fort contraste, on voit sur la figure III.12(d) que les deux modèles donnent sensiblement le même résultat sur une large gamme de paramètre de taille (hormis le cas des petits paramètres de tailles).

Pour le cas d'un rapport d'indice $\frac{n_p}{n_h} = \frac{1.59}{1.33}$ plus faible présenté Fig. III.12(a), III.12(b) et III.12(c), une différence notable apparaît entre le modèle de Kuga et celui de Foldy pour les paramètres de taille proches des résonances de Mie. En revanche, cette fois il y a un bon accord entre les modèles dans le régime d'homogénéisation. Ce n'est pas le terme en $(1 - f)$ qui est responsable du désaccord près des résonances de Mie car le contraste d'indice n'est pas très fort. Kuga utilise le résultat de la matrice de diffusion $S_{Re(k_1)}(0)$ en milieu non-absorbant pour calculer une section efficace. Par contre dans la formule de Foldy, on calcule $S_{k_1}(0)$ en milieu absorbant. Les différences ici sont dues au fait que $S_{k_1}(0) \neq S_{Re(k_1)}(0)$.

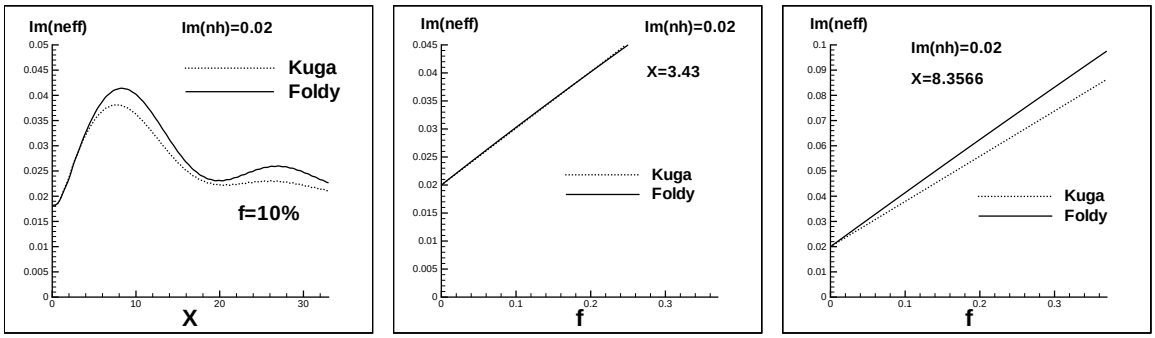
Nous pouvons résumer les résultats obtenus par les deux points suivants:

- Quand le rapport d'indice est fort, les modèles Kuga et Foldy donnent des résultats très proches pour pratiquement toutes les tailles de particules, excepté pour le cas des diffuseurs très petits devant la longueur d'onde, c'est à dire quand le milieu aléatoire est vu par l'onde comme un milieu pratiquement homogène. Dans ce cas, l'écart du modèle de Kuga est dû au terme en $(1 - f)$.

14. La partie imaginaire ou la partie réelle peuvent être nulles, mais elles ne le sont jamais en même temps. On peut tracer le module de $\int_0^{+\inf} g(r)e^{ikr}sin(kr)dr$ avec le modèle de Pecus-Yevick pour voir s'il y a un minimum.

15. Dans le régime d'homogénéisation, il n'y a pas de diffusion de la lumière. L'extinction est uniquement due à l'absorption

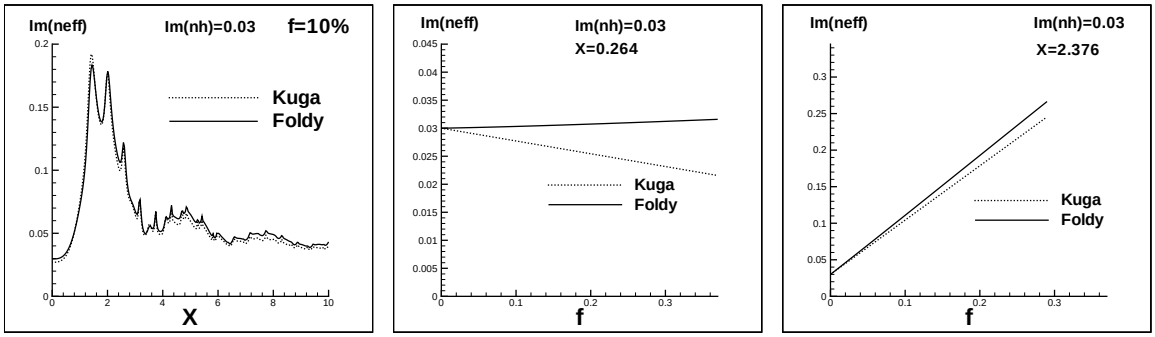
- Quand le rapport d'indice est faible, on a une différence près des résonances de Mie. Cette fois l'écart provient de la modification de la matrice de diffusion en milieu absorbant qui n'est pas prise en compte dans le modèle de Kuga.



(a) $f = 10\%$, $n_p = 1.59$, $n_h = 1.33 + i0.02$.

(b) $a = 0.26\mu m$ $(X = 3.43)$, $n_p = 1.59$, $n_h = 1.33 + i0.02$.

(c) $a = 0.633\mu m$ $(X = 8.357)$, $n_p = 1.59$, $n_h = 1.33 + i0.02$.



(d) $f = 10\%$, $n_p = 2.8$, $n_h = 1.33 + i0.03$.

(e) $a = 0.02\mu m$ $(X = 0.264)$, $n_p = 2.8$, $n_h = 1.33 + i0.03$.

(f) $a = 0.18\mu m$ $(X = 2.376)$, $n_p = 2.8$, $n_h = 1.33 + i0.03$.

FIG. III.12 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (reliée au coefficient d'extinction par* $K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff})$*) en fonction de la fraction volumique* f *ou du paramètre de taille* X*, calculée par les modèles de Kuga et Foldy lorsque le milieu hôte est absorbant.* $\lambda_0 = 0.633\mu m$.

III.6.2 Régime de diffusion dépendante

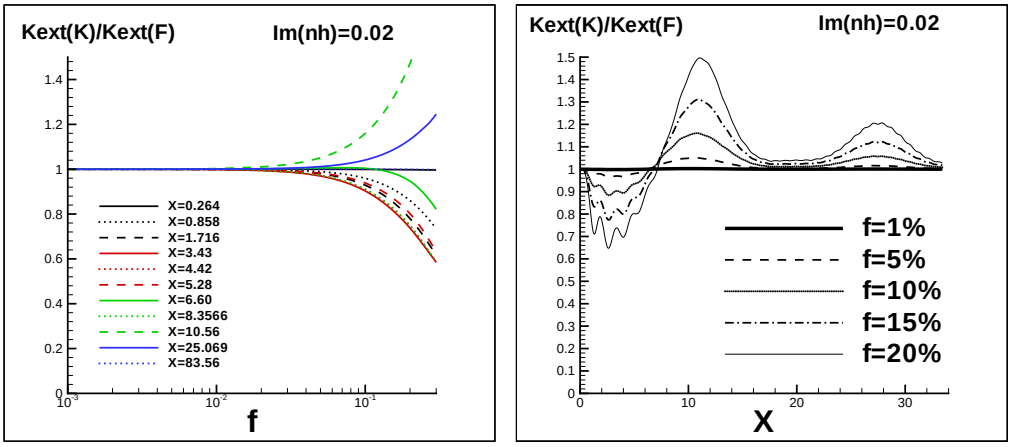
Pour qu'une différence importante apparaisse entre Foldy et Kuga, il faut à la fois que la fraction volumique et l'absorption du liant soient importantes. Le comportement du coefficient d'extinction et sa modélisation quand le milieu hôte est absorbant devrait être d'autant plus intéressant que la fraction volumique de diffuseur est importante. On pourrait s'attendre par exemple à un comportement inhabituel du coefficient d'extinction, du fait que la proportion de matière absorbante diminue pour une forte fraction volumique de diffuseur non-absorbant. Comme cet effet devrait apparaître pour une forte fraction volumique, il est indispensable de prendre en compte le phénomène de diffusion dépendante.

Les comparaisons expérimentales avec le modèle de Keller en milieu non-absorbant sont suffisament encourageantes pour que l'on s'y intéresse en milieu absorbant.

Les corrélations induisent-elles des effets plus faibles de diffusion dépendante en milieu absorbant?

La diffusion dépendante est un phénomène qui est lié aux corrélations sur les positions des diffuseurs. Ils existe des corrélations de différentes portées. La plus courte, celle que prend en compte le modèle de Keller, est, en première approximation, de l'ordre du diamètre des diffuseurs $2a$. Les processus de diffusions multiples récurrentes corrélés ou non, font intervenir des propagations de champs d'un diffuseur à un autre. Ces processus auront des effets uniquement si le champ possède encore une valeur notable après de multiples propagations. Or quand le liant est absorbant, la fonction de Green décroit très rapidement avec les distances. Ainsi, tous les processus de diffusion cohérents qui nécessitent des propagations de champ sur de longues distances, comme la diffusion récurrente, auront probablement des effets amoindris. Les phénomènes cohérents que le modèle de Keller ne prend pas en compte ont de l'importance quand par exemple la diffusion est résonante ou encore quand le rapport d'indice des particules au liant est grand. Comme l'absorption du liant limite ces effets, on devrait pouvoir utiliser le modèle de Keller pour des milieux diffusants plus contrastés que dans un milieu non-absorbant.

Par contre, le modèle de Keller prend en compte une corrélation de courte portée, il n'est donc pas évident que cet effet de courte portée soit notablement réduit dans un milieu absorbant. Dans le terme d'ordre 2 de la formule de Keller, le terme en $e^{ik_1 r}$ (qui provient de la fonction de Green du milieu hôte) pilote l'effet des corrélations. Quand le liant est absorbant, l'amplitude de cette fonction décroit avec r. Ce qui pourrait avoir pour effet de raccourcir la portée des corrélations et, au final, de réduire l'effet de ces corrélations. Pour que cet effet existe, il est nécessaire que la fonction de Green décroisse suffisamment sur l'échelle des corrélations, c'est à dire $2a$ en première approximation. Il faut donc que $\frac{2\pi 2a}{\lambda_0} Im(n_h)$ soit le plus grand possible, ce qui est facilité si le rayon a des particules est grand. Le problème est que cela nécessite que la longueur d'absorption soit de l'ordre de grandeur de la particule. Par conséquent, le coefficient de diffusion sera forcément très faible devant le coefficient d'absorption du système (sauf peut être dans le cas d'une très forte forte fraction volumique où la lumière pourrait se propager plus facilement dans les diffuseurs plutôt que dans la matrice). L'effet cohérent pris en compte par le modèle de Keller ne devrait pas être très affecté par l'absorption du liant.



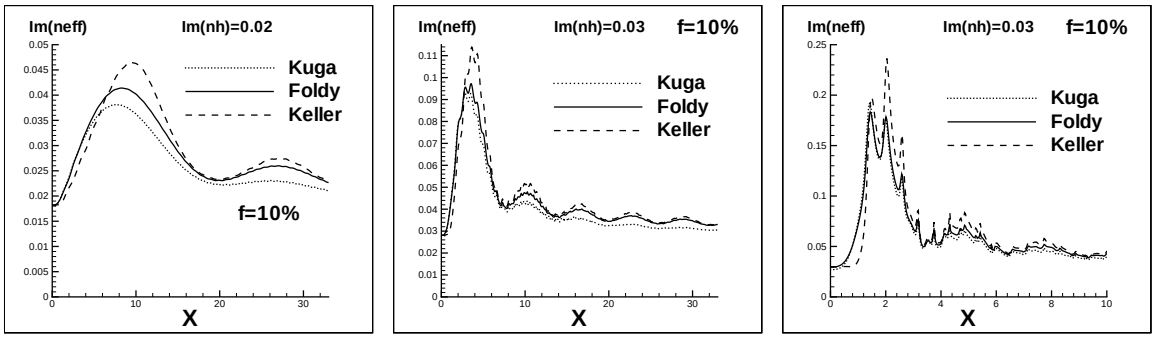
(a) (b)

FIG. III.13 – *Rapport entre l'extinction obtenue par le modèle de Keller et celui de Foldy, en fonction de la fraction volumique f ou du paramètre de taille $X = \frac{2\pi n_h a}{\lambda_0}$ lorsque le milieu est absorbant.* $\lambda_0 = 0.633\mu m$, $n_h = 1.33 + i0.02$, $n_p = 1.59$.

Nous représentons sur la Fig. III.13, le rapport entre le coefficient d'extinction obtenu par la formule de Keller et celui obtenu par la formule de Foldy. Ce rapport est soit calculé pour différents paramètres de taille X fixés, en fonction de la fraction volumique de diffuseur III.13(a), soit calculé pour différentes fractions volumiques fixées en fonction du paramètre de taille III.13(b). La partie imaginaire de l'indice du liant est choisie telle qu'elle soit comparable à la partie imaginaire de l'indice effectif. Ainsi, l'extinction est due, dans une proportion de même ordre de grandeur, à l'absorption du liant et à la diffusion par les particules. Ce rapport mesure directement un écart relatif à la diffusion indépendante. Pour le cas de particules d'indice $n_p = 1.59$ dans un liant d'indice $Re(n_h) = 1.33$, en comparant le cas d'un milieu hôte non-absorbant Fig. III.11(a) au cas d'un milieu hôte absorbant Fig. III.13(a), on peut remarquer que la correction à la diffusion indépendante prévue par la formule de Keller est plus faible quand le milieu est absorbant. Mais il semble que la correction en valeur absolue n'ait pas été modifiée. En valeur relative, cette correction est plus faible tout simplement parce que la part relative de l'extinction due à l'absorption prend une valeur non-négligeable devant la diffusion alors qu'elle était absente dans le cas d'un milieu non-absorbant. Dans le cas d'un milieu non-absorbant, dans la formule de Keller, la diffusion dépendante d'ordre 2 apparaît comme une correction à l'ordre 1 . Par contre dans le cas absorbant, l'ordre 0 ($Im(n_1)$) prend une toute autre importance de sorte que la correction d'ordre 2 devient relativement faible comparée à l'ordre 0.

Quelques exemples du comportement de la formule de Keller en milieu absorbant

Quand on compare le cas non-absorbant Fig. III.11(b) au cas absorbant Fig. III.13(b), le premier constat auquel on aboutit, est que les tendances d'augmentation ou de réduction du coefficient d'extinction ont lieu pour les mêmes tailles de particules bien que l'effet soit relativement amoindri. On peut noter par ailleurs que le modèle de Keller s'écarte systématiquement du modèle



(a) $n_h = 1.33 + i0.03$, $n_p = 1.59$

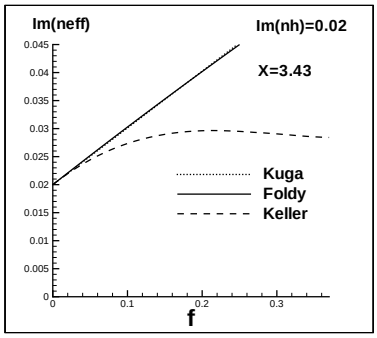
(b) $n_h = 1.46 + i0.03$, $n_p = 2.21$

(c) $n_h = 1.33 + i0.03$, $n_p = 2.8$

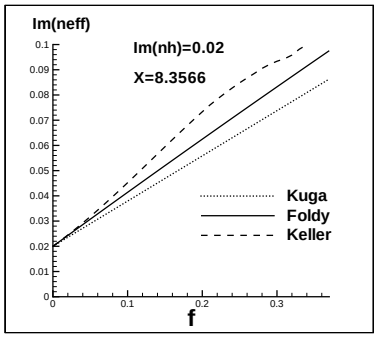
FIG. III.14 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (reliée au coefficient d'extinction par* $K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff})$ *) en fonction du paramètre de taille* $X = \frac{2\pi n_h a}{\lambda_0}$ *pour une fraction volumique fixée* $f = 10\%$ *lorsque le milieu hôte est absorbant.* $\lambda_0 = 0.633\mu m$.

de Foldy pour des paramètres de taille proches des résonances de Mie (Fig. III.13(b) et III.14).

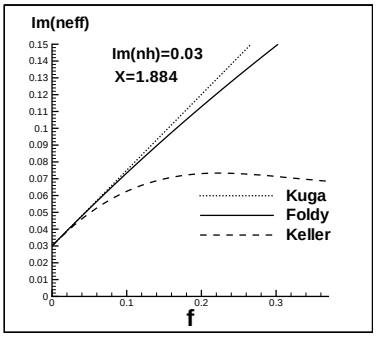
Nous avons montré, en comparant les coefficients d'extinction en fonction de la fraction volumique prévus par les modèles de Foldy et Kuga, que la pente n'est pas toujours correcte. Par exemple, pour le cas présenté des petites particules à fort contraste d'indice (Fig. III.12(e)), le modèle de Kuga prévoit une diminution de l'extinction quand la fraction volumique augmente, tandis que le modèle de Foldy prédit dans le même temps une légère augmentation. Qu'en est-il du comportement du modèle de Keller en milieu absorbantΓ Les résultats du coefficient d'extinc-



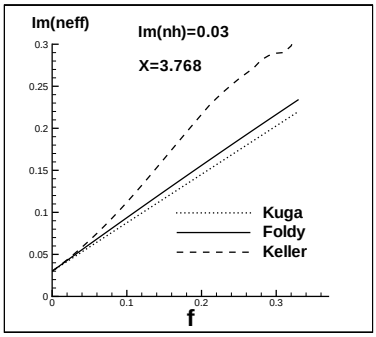
(a) $n_h = 1.33 + i0.02$, $n_p = 1.59$, $a = 0.26\mu m$ ($X = 3.43$).



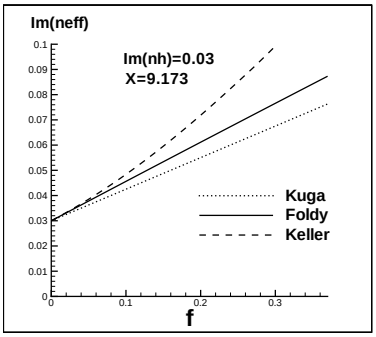
(b) $n_h = 1.33 + i0.02$, $n_p = 1.59$, $a = 0.633\mu m$ ($X = 8.357$).



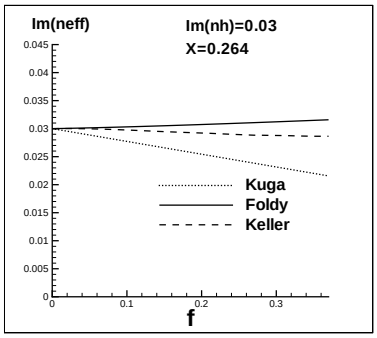
(c) $n_h = 1.46 + i0.03$, $n_p = 2.21$, $a = 0.13\mu m$ ($X = 1.884$).



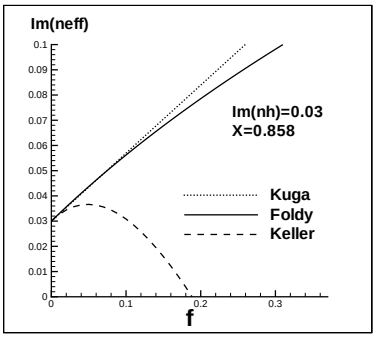
(d) $n_h = 1.46 + i0.03$, $n_p = 2.21$, $a = 0.26\mu m$ ($X = 3.768$).



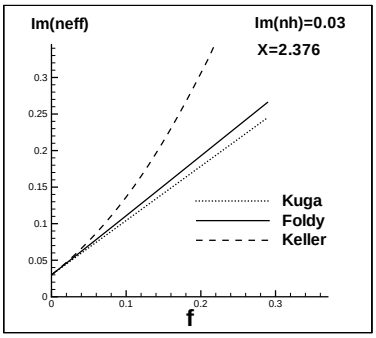
(e) $n_h = 1.46 + i0.03$, $n_p = 2.21$, $a = 0.633\mu m$ ($X = 9.173$).



(f) $n_h = 1.33 + i0.03$, $n_p = 2.8$, $a = 0.02\mu m$ ($X = 0.264$).



(g) $n_h = 1.33 + i0.03$, $n_p = 2.8$, $a = 0.065\mu m$ ($X = 0.858$).



(h) $n_h = 1.33 + i0.03$, $n_p = 2.8$, $a = 0.18\mu m$ ($X = 2.376$).

FIG. III.15 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (reliée au coefficient d'extinction par* $K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff})$*) en fonction de la fraction volumique pour différents paramètres de taille* $X = \frac{2\pi n_h a}{\lambda_0}$ *et pour différents indices de particules et de liants évalués par les modèles de Kuga, Foldy et Keller lorsque le milieu hôte est absorbant.* $\lambda_0 = 0.633\mu m$.

tion en milieu absorbant en fonction de la fraction volumique sont présentés Fig. III.15. Nous ne pouvons pas comparer ces résultats à des mesures expérimentales car il n'en existe pas à notre connaissance. Il faut donc prendre garde à ces résultats car rappelons que les hypothèses qui sont nécessaires à l'établissement de la formule de Keller sont:

- Les diffuseurs doivent être faibles (faible contraste ou loin d'une résonance de Mie) et la fraction volumique ne doit pas être trop élevée parce que les diffusions récurrentes entre les paires de particules et les diffusions corrélées à plusieurs particules ne sont pas prises en compte et pourraient prendre de l'importance si l'absorption n'est pas suffisamment forte;
- le modèle est perturbatif, par conséquent la correction de Keller par rapport au résultat de Foldy doit rester faible;
- les diffuseurs sont considérés petits devant la longueur d'onde;
- l'effet de la corrélation est calculé dans un modèle scalaire.

Dans de nombreux cas présentés Fig.III.15, les systèmes considérés ont des paramètres tels que toutes ces dernières conditions ne sont pas remplies. Par exemple, pour le cas de la Fig.III.15(g), l'écart entre le résultat de la formule de Keller généralisée et celui de la formule de Foldy-Twersky généralisée en milieu absorbant est probablement trop forte pour être correcte.

Toutefois dans le chapitre IV, nous présentons des résultats de calculs numériques exacts (solution des équations de Maxwell) sur un système 2D composé de diffuseurs cylindriques infinis éclairés en incidence normale et aléatoirement répartis dans l'espace. Les modèles analytiques de Foldy et de Keller sont adaptés pour le cas d'un système 2D dans l'annexe E afin qu'ils puissent être comparés aux résultats numériques exacts. Cette étude montre un très bon accord entre le modèle de Keller et le résultat exact pour des particules de tailles proches de la longueur d'onde, même quand la fraction volumique est très forte, tant que le contraste d'indice des particules par rapport au liant n'est pas trop fort et que l'absorption est suffisante. Ce bon accord entre le modèle et les résultats numériques dans le cas 2D est encourageant et permet d'envisager un bon accord dans le cas 3D.

La démonstration de la formule de Keller que nous avons exposée est valable sous l'approximation des très petits diffuseurs. Mais puisqu'elle semble reproduire des résultats expérimentaux 3D en milieu non-absorbant et les résultats issus de simulations exactes 2D en milieu absorbant, il est probable que cette formule puisse être redémontrée pour des particules plus grandes.

III.7 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que les modèles proposés dans la littérature qui tentent de calculer le coefficient d'extinction d'une collection de particules disposées dans un milieu absorbant conduisent tous à des hypothèses phénoménologiques. Pour résoudre ce problème, et notamment éviter de définir la notion de section efficace dans un milieu absorbant, on calcule directement le coefficient d'extinction en évaluant l'indice effectif du milieu diffusant et absorbant. Le milieu effectif et son indice associé décrivent comment une onde collimatée se propage. Notamment, la partie imaginaire de l'indice effectif rend compte de la décroissance de l'onde dans le milieu à cause de la diffusion et de l'absorption. La théorie perturbative de la diffusion multiples d'ondes électromagnétiques par des objets aléatoirement répartis dans l'espace, classifie les processus de diffusions multiples, corrélés ou non, et donne une expression formelle générale de l'indice effectif. Le premier ordre équivalent à l'hypothèse d'une diffusion indépendante, nous donne une expression de l'indice effectif en fonction de la matrice de diffusion d'un diffuseur placé en milieu absorbant et calculé dans la direction avant. Cette expression est une généralisation du modèle de Foldy valable cette fois en milieu absorbant. Nous pensons, grâce à cette formulation, répondre au problème de l'atténuation en milieu absorbant et diffusant.

Une comparaison au modèle phénomélogique de Kuga montre que le modèle de Kuga n'est pas toujours valable. Ces différences s'accentuent et deviennent vraiment intéressantes quand la fraction volumique augmente, i.e. quand l'hypothèse de diffusion indépendante est discutable. Il devient par conséquent nécessaire d'évaluer l'écart à la diffusion indépendante. Pour modéliser les effets de diffusion dépendante, nous avons adapté le modèle de Keller en milieu absorbant. Nous discutons de l'éventualité d'une réduction des effets de diffusion dépendante en milieu absorbant. *A priori*, seuls les effets de diffusion dépendante qui sont liés aux corrélations de longue portée comme la diffusion récurrente à plusieurs particules devraient être réduits dans une proportion absolue. Ce qui implique que le domaine de validité de l'approximation de Keller en milieu absorbant devrait être plus étendu (en terme de fraction volumique et de rapport d'indice particule sur liant) que dans le cas non-absorbant. Par contre la diffusion dépendante lié aux corrélations de courtes portées comme celle que le modèle de Keller tente de calculer ne devrait être que très peu affecté.

Le comportement du coefficient d'extinction calculé par le modèle de Keller en milieu absorbant donne des résultats qui sont qualitativement proches de ceux du cas non-absorbant dans le sens où l'augmentation et la réduction du coefficient d'extinction avec la fraction volumique par rapport à la diffusion indépendante sont prévus pour les mêmes tailles de particules.

Cette étude se limite à l'étude du coefficient d'extinction dans un milieu absorbant. Il serait important de s'intéresser au coefficient de diffusion en milieu absorbant pour que les contributions de diffusion et d'absorption au coefficient d'extinction puissent être séparées. Ainsi on pourra étudier le comportement du coefficient d'absorption en fonction de la fraction volumique. On pourra aussi répondre à cette question qui reste en suspend: "les corrélations ont-elles un rôle sur le coefficient d'absorption".

Chapitre IV

Coefficient d'extinction en milieu absorbant: simulation numérique exacte du problème électromagnétique et modélisation

IV.1 Introduction

IV.1.1 Objectifs

Nous avons décrit dans le chapitre précédent différents modèles de calculs phénoménologiques du coefficient d'extinction et les difficultés théoriques supplémentaires introduites quand le liant est absorbant. Nous avons proposé aussi dans le chapitre précédent des modèles basés sur la théorie rigoureuse de la diffusion multiple d'ondes électromagnétiques.

Nous proposons dans ce chapitre de comparer ces modèles aux résultats exacts de la résolution numérique des équations de Maxwell sur un système diffusant de taille réduite pour différents paramètres intrinsèques du milieu, y compris quand le liant est absorbant.

Parmi les plus proches travaux que l'on puisse trouver dans la littérature, il existe une étude numérique exacte (Sun, Fu, et Chen 1999) de la diffusion par une sphère plongée en milieu absorbant qui montre que la théorie de Mie en milieu diffusant est valable. Une étude expérimentale (Lebedev et Stenzel 1999) évalue le coefficient d'extinction par un aggrégat d'inclusions d'argent dans une matière organique absorbante. Mais il n'existe pas à notre connaissance d'étude similaire à la notre pour un système composé d'une collection de diffuseurs aléatoirement répartis en milieu absorbant.

IV.1.2 Étude d'un milieu diffusant plans parallèles

Le système étudié est une couche contenant des particules aléatoirement distribuées dans un milieu d'indice homogène. Cette couche sépare un espace homogène (le vide) par deux plans parallèles. Ce système, ou plutôt un empilement de ces plans parallèles, est souvent rencontré dans la nature. Par exemple l'atmosphère est un milieu diffusant (sur de grandes échelles) pour la lumière visible et infrarouge. Comme les grandeurs telles que le libre parcours moyen de diffusion ou d'absorption changent avec l'altitude, l'atmosphère peut être modélisée par une succession de couches parallèles[1]. La propagation de la lumière dans la peau ou encore dans une peinture diffusante chargée en particules métalliques ou diélectriques peut aussi être modélisée par un empilement de couches parallèles. Dans le domaine de la télédétection par des ondes micro-ondes,

1. Thomas et Stamnes (1999)

les couches formées par de la neige[2] ou encore par de la végétation telle qu'une forêt[3] sont des milieux modélisés par le même système.

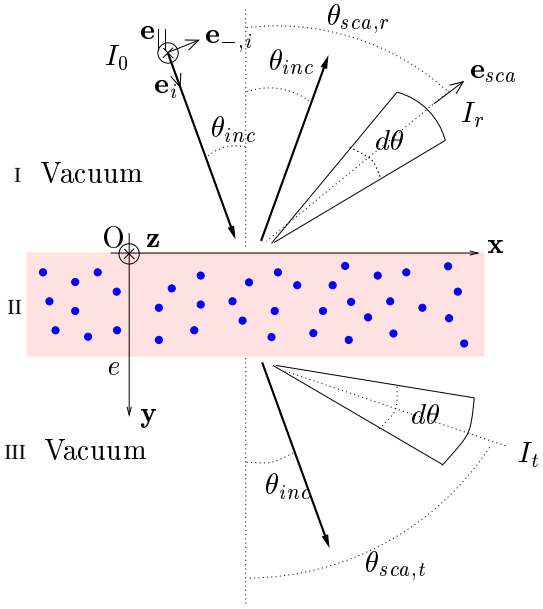


FIG. IV.1 – *Système: couche diffusante 2D (1 direction d'invariance selon Oz)*

Le système représenté par la figure IV.1 a la particularité supplémentaire d'être invariant selon l'axe z. Ce milieu à deux dimensions est moins souvent rencontré dans la nature. Il existe tout de même quelques expériences sur la propagation d'ondes acoustiques[4] ou électromagnétiques dans le domaine micro-onde[5] où le milieu est constitué de longs cylindres parallèles et aléatoirement distribués. Notre but n'est pas d'étudier un système physique existant, mais d'explorer le comportement d'un système idéalisé afin d'isoler les phénomènes physiques essentiels. Les modèles existants et originaux exposés dans le chapitre III seront comparés aux résultats numériques de référence dans le but d'évaluer leurs domaines de validité. Pour des raisons numériques (temps de calcul et place mémoire lié au nombre d'inconnues), la solution d'un calcul électromagnétique exacte est plus aisée dans un cas bidimensionnel alors que les modèles 3D présentés s'adaptent assez facilement au cas 2D (voir annexes D et E). Un certain nombre de conclusions tirées sur la validité des modèles et la compréhension des phénomènes pour des systèmes 2D peuvent s'extrapoler au cas 3D; nous discuterons ce point à la fin du chapitre.

La méthode numérique employée pour résoudre le problème de manière exacte est décrite dans la sections IV.2. La méthode exacte utilisée est une résolution numérique des équations de Maxwell par la méthode des moments. Le terme exact sous-entend qu'aucune approximation autre que la discrétisation d'intégrales n'est employée pour résoudre les équations fondamentales de l'électromagnétisme dans un milieu macroscopique, i.e. quand l'indice réfractif du milieu est bien défini et connu. Une fois cette solution connue, nous précisons dans la section IV.2.2 comment remonter au coefficient d'extinction dans la section IV.2.2. Enfin les résultats numériques et les comparaisons aux modèles sont présentés dans la dernière section IV.3.

2. Tsang, Chen, Chang, Guo, et Ding (2000); Kuga, Ulaby, Haddock, et DeRoo (1991)
3. Castel, Beaudoin, Floury, Le Toan, Caraglio, et Barczi (2001); Ferrazzoli et Guerriero (1996)
4. Tourin, Fink, et Derode (2000); Tourin, Derode, Roux, Van Tiggelen, et Fink (1997)
5. Clayton et Kuga (1995) et Karam, Fung, Lang, et Chauhan (1992)

IV.2 Solution par une méthode électromagnétique exacte

IV.2.1 La méthode exacte pour une couche diffusante 2D-1D périodique

La solution exacte, i.e. la résolution numérique des équations de Maxwell, est impossible en pratique pour un objet aléatoire de taille infinie et éclairé par une onde plane (non localisée dans l'espace). La solution utilisée par Roux *et al.* (2001) consiste à étudier la réponse d'une couche de largeur infinie mais périodique selon cette direction. Le coefficient d'extinction présent dans l'ETR, décrit l'atténuation du champ moyen sur un ensemble de réalisations. Le milieu périodique devient après moyenne invariant par translation. Par conséquent, le champ moyen voit une simple couche homogène. Pour effectuer la moyenne d'ensemble des champs électromagnétiques, notre approche repose sur une méthode de Monte-Carlo. Il s'agit de générer N réalisations du milieu aléatoire, calculer les champs diffusés et effectuer la moyenne d'ensemble. Pour cela, il faut être à même de résoudre le problème de la diffusion pour chaque réalisation de taille finie sans introduire d'effets de bords. Nous discuterons en détail des effets et conséquences de cette périodicité. Le système étudié

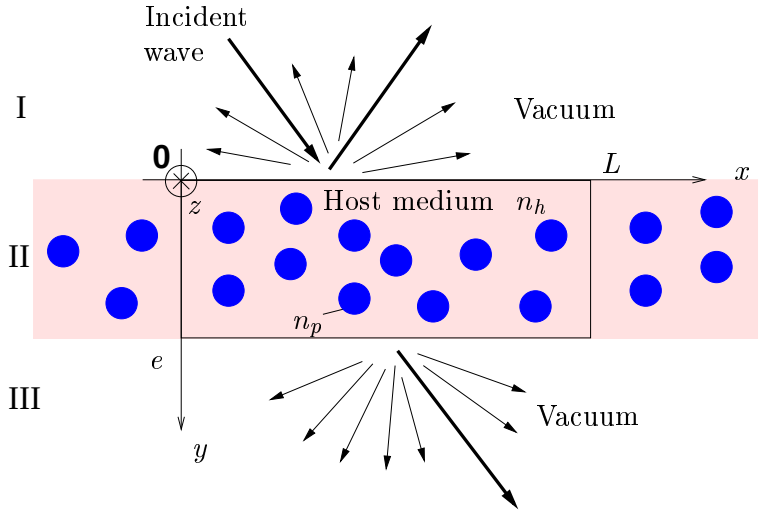


FIG. IV.2 – *Système 2D (1 direction d'invariance selon Oz) avec 1 direction de périodicité (Ox)*

est une couche diélectrique inhomogène d'épaisseur e séparant le vide (voir IV.2). La direction (Oz) perpendiculaire au plan de la figure est une direction d'invariance. Par conséquent, l'indice réfractif n au point $\mathbf{r}$ ne dépend pas de z.

$$n(\mathbf{r}) = n(x, y) \tag{IV.1}$$

La direction Ox est une direction périodique de période L. Ainsi l'indice n a la propriété suivante:

$$n(x + L, y) = n(x, y) \tag{IV.2}$$

Le contenu d'une boîte d'épaisseur e et de largeur L est reproduit périodiquement dans la direction Ox. La boîte est constituée de particules cylindriques infinies (selon 0z) de section circulaires, identiques de rayon a et d'indice n_p. Les particules disposées aléatoirement sont plongées dans un liant d'indice n_h absorbant ou non.

Les particules sont placées les unes après les autres de telle sorte qu'aucune ne puisse dépasser des bords de la boîte. L'emplacement de chaque nouvelle particule est calculé par un générateur de nombre aléatoires. L'emplacement est accepté seulement si la particule n'interpenètre aucun des diffuseurs déja placés. Si tel n'est pas le cas, de nouvelles coordonnées sont calculées par le générateur jusqu'à ce que cette condition soit vérifiée. Selon la façon dont sont disposées les particules

déja positionnées, il existe un taux de remplissage (autour de $f = 40\%$) à partir duquel il devient quasi-impossible de placer une nouvelle particule par cette méthode. Cette limite apparaît bien avant la limite théorique maximale de remplissage lorsque les particules sont parfaitement ordonnées (formant une maille triangulaire équilatérale). Par d'autres méthodes, il doit être possible d'atteindre une plus forte proportion de diffuseurs [6].

Une réalisation du système est déterminée par la position précise de l'ensemble des diffuseurs contenus dans la couche. Nous voulons connaître les champs diffractés pour chaque réalisation de système éclairé par une onde plane. A partir des statistiques des champs diffractés sur un ensemble de réalisations, nous pourrons évaluer les quantités radiométriques suivantes: les luminances réflechies diffuses et cohérentes à l'entrée du système en $y = 0$, et d'autre part les luminances transmises diffuses et cohérentes à la sortie du système en $y = e$.

Le système est éclairé par une onde plane électromagnétique $\mathbf{E}_{inc}$ polarisée (TM) se propageant dans le plan (x0y) que l'on peut écrire sous la forme:

$$\mathbf{E}_{inc} = E_0 \mathbf{e}_{-,inc} e^{i\mathbf{k}_{inc}\mathbf{r}} \tag{IV.3}$$

où $\mathbf{k}_{inc} = k_0 \mathbf{e}_i = \alpha_{inc}\mathbf{e}_x + \gamma_{inc}\mathbf{e}_y$ est le vecteur d'onde incident avec $\alpha_{inc} = k_0 sin(\theta_{inc})$ et $\gamma_{inc} = k_0 cos(\theta_{inc})$ où $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}$; $\mathbf{e}_{-,inc} = \mathbf{e}_z \times \mathbf{e}_i$ est dans le plan de la figure perpendiculaire au vecteur d'onde incident. Comme le milieu est périodique, les champs sont diffractées dans des directions discrètes appelées ordres du réseau (Fig.IV.3). On peut montrer [7] que le champ électrique dans tout l'espace est pseudo-périodique. Il s'écrit comme le produit d'une fonction périodique A par le facteur de phase du champ incident.

$$\mathbf{E}(x,y) = A(x,y) e^{i\alpha_{inc}x} \mathbf{e}_T(x,y) \text{ avec } A(x+L,y) = A(x,y) \tag{IV.4}$$

Où $\mathbf{e}_T(x,y)$ est le vecteur direction du champ total au point (x,y). La fonction périodique se développe sur une base de Fourier dans le milieu I en $y = 0$ et dans le milieu III en $y = e$. Ainsi, le champ électrique s'exprime dans une base de modes de Floquet:

$$\mathbf{E}^I(x, y=0) = \mathbf{E}_{inc}(x, y=0) + \sum_{n=-\infty}^{+\infty} a_n e^{i\alpha_n x} \mathbf{e}_{-I,n} \tag{IV.5}$$

$$\mathbf{E}^{III}(x, y=e) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} b_n e^{i\alpha_n x} \mathbf{e}_{-III,n} \tag{IV.6}$$

avec

$$\alpha_n = \alpha_{inc} + n\frac{2\pi}{L} \tag{IV.7}$$

Les amplitudes des ondes planes diffractées par le réseau a_n et b_n sont les inconnues du problèmes. Les ondes diffractées réfléchies et transmises d'ordre n sont des ondes planes ayant pour vecteurs d'ondes dans le milieu I et III:

$$\mathbf{k}_n^I = \alpha_n \mathbf{e}_x - \gamma_n^I \mathbf{e}_y \text{ et } \mathbf{k}_n^{III} = \alpha_n \mathbf{e}_x + \gamma_n^{III} \mathbf{e}_y \tag{IV.8}$$

avec

$$\gamma_n^I = \sqrt{n_I^2 k_0^2 - \alpha_n^2} \tag{IV.9}$$

$$\gamma_n^{III} = \sqrt{n_{III}^2 k_0^2 - \alpha_n^2} \text{ avec } Im\gamma_n \geq 0 \text{ et } Re\gamma_n \geq 0 \tag{IV.10}$$

6. par exemple en autorisant le déplacement des diffuseurs déja positionnés pour laisser la place à un nouveau diffuseur; ce qui peut correspondre à certaines situations expérimentales

7. Petit (1988)

où n_I et n_{III} sont les indices respectifs des milieux I et III. Dans tous nos cas de calculs, on a $n_I = n_{III} = 1$ de sorte que $\gamma_n^I = \gamma_n^{III} = \gamma_n$. Enfin $e_{-I,n}$ et $e_{-III,n}$ se calculent par:

$$e_{-I,n} = \mathbf{e}_z \times \frac{\mathbf{k}_n^I}{n_I k_0} \text{ et } e_{-III,n} = \mathbf{e}_z \times \frac{\mathbf{k}_n^{III}}{n_{III} k_0} \tag{IV.11}$$

Les angles de diffraction θ_n se calculent par la formule

$$sin(\theta_n) = sin(\theta_{inc}) + n\frac{\lambda_0}{L}. \tag{IV.12}$$

On voit sur la formule précédente que l'écart entre les sinus d'ordres n et $n+1$ est constant. Il existe des valeurs de n telle que $sin(\theta_n) > 1$, donc α_n^2 est plus grand que k_0^2 et par conséquent γ_n est imaginaire pur. Il s'agit d'une onde évanescente comportant une haute fréquence spatiale selon la direction x mais qui ne peut pas se propager dans la direction $-y$ car l'amplitude de l'onde décroit exponentiellement. Si on s'intéresse uniquement aux propriétés radiatives en champ lointain, seuls les ordres n qui vérifient $sin(\theta_n) < 1$ sont à prendre en compte. Le nombre d'ordres N propagatifs d'un réseau de période L est $N = 2Int[\frac{Ln_I}{\lambda_0}] + 1$ qu'il soit éclairé en incidence normale ou non.

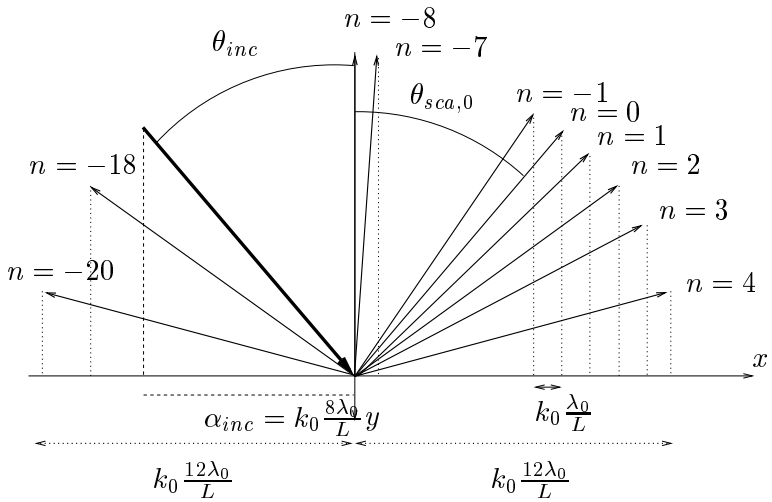


FIG. IV.3 – *Ordres de diffractions dans le cas particulier d'un système de période* $L = 12.4\lambda_0$ *éclairé par une onde incidente telle que* $\alpha_{inc} = k_0 8\frac{\lambda_0}{L}$

En guise d'exemple (voir Fig. IV.3), pour le cas particulier d'un réseau de période $12.4\lambda_0$ éclairé avec un angle d'incidence θ_{inc} tel que $sin(\theta_{inc}) = 8\frac{\lambda_0}{L}$, on a représenté un certain nombre d'ordres propagatifs parmis les 25 existants (de -20 à 4).

Equations intégrales et méthode des moments

La méthode des moments[8] spécifiquement adaptée pour des géométries 2D périodiques a été développée dans le service d'électromagnétisme et infrarouge de la société Dassault Aviation lors de la thèse de Mareschal (1996) basé sur les travaux de Moore *et al.* (1993). Cette méthode a été par la suite adaptée au cas d'une couche diffusante périodique par Thibaud (2000). Nous résumons rapidement le principe de la méthode (dont la base n'a pas été modifiée) nécessaire pour comprendre le rôle des paramètres qui permettent d'assurer une bonne convergence du calcul.

8. Il existe une présentation générale de la méthode des moments dans les livre de Harrington (1968) et de Wang (1991)

Considérons l'exemple de la figure IV.4 représentant une cellule périodisée. Cette cellule est composée de plusieurs domaines fermés possédant chacun un indice homogène. On peut comptabiliser dans cet exemple 8 domaines fermés et leurs contours associés. Les p_i sont les contours de chaque particules d'indice n_p numérotés de 1 à 7. Le contour $\mathcal{C}$ est l'union du contour rectangulaire et des contours de l'ensemble des particules. Ce contour forme le domaine d'indice n_h. Sur chaque

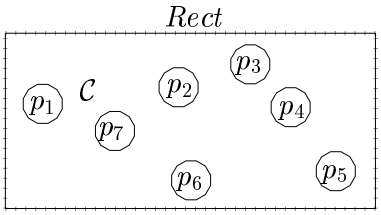


FIG. IV.4 – *Cellule périodique maillée et définition des contours fermée:* $\mathcal{C} = Rect \cup p_1 \cup p_2 \cup p_3 \cup p_4 \cup p_5 \cup p_6 \cup p_7$

contour fermé formant un domaine d'indice homogène, on peut montrer[9] par la méthode de Green que le champ E en un point quelconque $\mathbf{r}$ du contour dépend par le biais d'une équation intégrale de la valeur des champs $E(\mathbf{r}')$ et de sa dérivée normale $\partial_n E(\mathbf{r}')$ sur tous les points $\mathbf{r}'$ du contour. Une équation intégrale de ce type est écrite pour chacun des contours fermés.

La méthode des moments est une méthode mathématique qui permet de mettre le système d'équations intégrales obtenues sous la forme d'une équation matricielle linéaire. Les contours sont discrétisés par un maillage suffisamment fin pour lequel le champ et sa dérivée normale peuvent être considérés constants sur une maille afin d'approximer les intégrales surfaciques en des séries discrètes. Le but est de calculer le champ et sa dérivée normale au centre de chaque maille. Il y a donc au total deux fois plus d'inconnues que de mailles. Une maille se situant sur l'un des diffuseurs se trouve sur deux contours en même temps: celui fermant le domaine de la particule, et celui fermant le domaine d'indice n_h. Ainsi deux équations intégrales peuvent être écrites au centre de chaque maille d'un diffuseur. Par contre sur une maille se situant sur le rectangle, on ne peut écrire qu'une seule équation intégrale. Le nombre d'équations intégrales obtenues est donc inférieur au nombre d'inconnues.

La périodicité du milieu fournit des équations supplémentaires car le champ et sa dérivée normale sur le coté gauche et droit du rectangle sont reliés par la pseudo-périodicité de ces champs.

Dans le domaine I en $y = 0^-$ et le domaine III en $y = e^+$, on peut montrer[10] par un couplage de la méthode des moments et du développement de Rayleigh des champs réfléchis et transmis sur les interfaces supérieure et inférieure, qu'il existe une relation linéaire entre le champ électrique et sa dérivée normale. Puis en utilisant les relations de continuité du champ E aux interfaces et de sa dérivée normale, on obtient les équations manquantes. Remarquons que ce sont les relations de continuité sur l'interface supérieure qui introduisent la forme de la source extérieure (l'onde incidente).

Quelques remarques sur la finesse nécessaire du maillage

Si un objet subit des variations géométriques sur une échelle plus grande que la longueur d'onde d'éclairement, alors le champ varie sur des échelles spatiales de l'ordre de la longueur d'onde. Dans ce cas, le calcul du champ rayonné par cette objet ne nécessite pas de mailler très finement de l'objet. Par exemple des mailles de taille de l'ordre de $\frac{\lambda}{10}$ seront suffisantes pour suivre les variations de la phase du champ. Par contre si les objets maillées sont petits

9. on trouvera dans livre de Poggio et Miller (1973) et dans l'annexe A de la thèse de Thibaud (2000) une démonstration mathématique de ces équations.

10. Moore, Ling, et Liang (1993),Thibaud (2000)

devant la longueur d'onde, il en est autrement. Dans ce cas, le champ varie spatialement sur des échelles plus petites que les variations géométriques de l'objet étudié. Si l'on s'intéresse à la valeur de ces champs en champ proche de l'objet, il est nécessaire de mailler aussi finement que nécessaire. Si par contre, on s'intéresse au champ rayonné en champ lointain, comme seules les champs de basses fréquences spatiales sont propagatifs, on peut souvent se permettre de mailler plus grossièrement. Ce maillage grossier aura pour effet de filtrer uniquement les bases fréquences propagatives. Toutefois, si les objets baignent dans le champ proche des autres objets, ce qui se produit quand les fractions volumiques sont fortes il est nécessaire de mailler plus finement Le contraste d'indice des diffuseurs a un rôle important dans la convergence des résultats. En règle générale, il faut mailler plus finement quand le contraste est plus fort.

Quand les matériaux sont non-absorbants, l'un des critères retenus pour la précision est la vérification de la conservation de l'énergie pour chaque réalisation. Dans la plupart des résultats que nous présentons, les diffuseurs baignent dans un milieu absorbant. Il n'est par conséquent pas possible de vérifier la conservation de l'énergie car l'absorption globale du système ne peut être évaluée par un moyen indépendant. Cependant, il est relativement intuitif de penser, et il a été vérifié, que la convergence du calcul en fonction du nombre de mailles est plus rapidement atteinte dans le cas où le milieu hôte est absorbant. On peut l'expliquer non rigoureusement de la manière suivante: dans un système 2D, la fonction de Green pour un milieu homogène infini d'indice n_j avec une condition d'onde sortante s'écrit:

$$G_j(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \frac{i}{4} H_0^{(1)}(k_j|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|) \text{ avec } k_j = \frac{2\pi n_j}{\lambda_0} \tag{IV.13}$$

où $H_0^{(1)}$ est une fonction de Hankel de première espèce d'ordre 0. La fonction de Green pilote la propagation des ondes diffusées d'une maille à une autre. La décroissance de l'amplitude des champs d'un point source à un autre permet de définir un rayon d'intéraction au-delà de laquelle les points sources ne se voient pratiquement plus. La valeur absolue de la fonction de Green tend asymptotiquement vers

$$|G_j(\mathbf{r},\mathbf{r}')| = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{\lambda_0}{\pi^2|n_h||\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}\, e^{\frac{2\pi}{\lambda_0} Im(n_h)|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \tag{IV.14}$$

Nous représentons sur la figure IV.5. La fonction de Hankel dans un milieu hôte non-absorbant

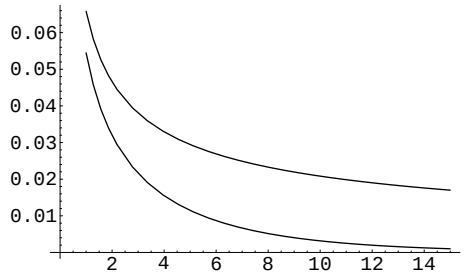


FIG. IV.5 – *Fonction de Green en fonction de* $\frac{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}{\lambda}$ *dans un milieu d'indice non-absorbant* $n_h = 1.46$ *et absorbant d'indice* $n_h = 1.46 + i0.03$

est une fonction qui décroit lentement en $\frac{1}{\sqrt{r}}$ tandis que l'on a une décroissance essentiellement exponentielle dans le cas absorbant. La portée de la diffusion d'une source sur une autre est beaucoup plus faible dans le cas d'un milieu absorbant. De ce fait, la matrice à inverser n'est plus une matrice pleine. Il semble que la méthode des moments converge plus facilement lorsque la fonction de Green a une portée plus courte.

Pour les systèmes étudiés et les résultats numériques présentés, la convergence des résultats numériques est atteinte pour des mailles allant de $\frac{\lambda}{10}$ à $\frac{\lambda}{30}$ selon l'absorption du liant, la fraction volumique de particules ou encore le contraste d'indice des particules par rapport au liant. De nombreux résultats numériques n'ont en revanche pas été présentés car la précision était jugée insuffisante.

Temps de calculs

Les limitations de la méthode des moments sont la place mémoire nécessaire au stockage des matrices et le temps de calcul très important qui s'accroit très vite avec le nombre d'inconnues. Pour les calculs numériques que nous présentons en section IV.3, nous étions limités à une place mémoire maximum de 1Go. Ce qui correspond à une cellule comportant environ 3000 mailles au maximum. Selon les résultats présentés, entre 1 minute et une heure de calcul est nécessaire pour obtenir les amplitudes des ondes diffractées a_n et les b_n pour une seule réalisation de système. Sachant le nombre de réalisations est compris entre 100 et 1000, de 2 heures à 6 jours de calculs sur un processeur IBM SP3 sont nécessaires. Ces temps doivent être comparés au temps d'un calcul par la méthode radiative inférieur à quelques secondes sur une station Sun Ultra5.

Choix des paramètres du système

La limitation du nombre de mailles de la cellule périodique est une contrainte dans le choix de la taille de la boîte, la taille des diffuseurs et la fraction volumique de diffuseurs et la nature des matériaux. Les indices des matériaux des milieux hôtes ou des diffuseurs correspondent à des indices proches de ceux que l'on retrouve dans les expériences de laboratoire dans le visible ou le proche infrarouge. Il s'agit par exemple de particules de ZnS d'indice $n_p = 2.21$ plongées dans un polymère d'indice $n_h = 1.46$ ou de particules de latex $n_p = 1.59$ dans de l'eau $n_h = 1.33$. La taille de la boîte est un facteur très limitant car pour une fraction volumique fixée, plus la boîte est grande, plus elle doit contenir de diffuseurs, et plus nombreuses sont les inconnues du système. Plus grande est la période de la boîte, plus nombreux seront les ordres de propagations et meilleure sera la comparaison avec la méthode approchée. Thibaud (2000) montre dans sa thèse que les propriétés radiatives sont inchangées lorsque la période est supérieure à $10\lambda_0$. Nous avons choisi par conséquent des systèmes dont la période est le plus souvent $12.4\lambda_0$. Nous verrons qu'il apparaît pour des systèmes trop minces des effets de bords gênant pour notre étude. L'épaisseur de la boîte a fait l'objet de nombreux tests. Finalement une épaisseur supérieure à 3 longueurs d'ondes semble nécessaire dans les cas que nous avons étudiés. Si le nombre de particules contenues dans la boîte est fixé, la fraction volumique de diffuseur augmente avec le carré du rayon pendant que le nombre de mailles du diffuseur augmente linéairement. Comme le nombre total de mailles du système est une contrainte, alors il est plus aisé d'obtenir de fortes fractions volumiques avec de grosses particules. Les diamètres des particules ($D = [0.5 - 0.8\lambda_0]$) choisis sont tels que la section efficace de diffusion est proche de la première résonance de Mie.

IV.2.2 Procédure d'identification de l'indice effectif et du coefficient d'extinction

Nous avons rappelé dans le chapitre II, qu'un milieu aléatoire statistiquement homogène possède un indice effectif homogène pour le champ moyen. Autrement dit dans un milieu aléatoire, le champ moyen satisfait à une équation de propagation dans un milieu homogène avec un certain indice effectif. Comme le champ moyen et le champ cohérent sont une seule et même chose, on sait que le champ cohérent se propage dans un milieu d'indice effectif homogène. L'indice effectif est l'inconnue du problème dont nous allons donner une méthode de calcul pour les couches diffusantes étudiées. La partie réelle de l'indice effectif est généralement différente de celle du liant car elle rend compte du retard ou de l'avance de la phase lié à la diffusion multiple de la lumière par

les diffuseurs disposés aléatoirement dans le milieu. La partie imaginaire est non-nulle dès lors qu'il y a diffusion même si le milieu n'est pas absorbant. Cette partie imaginaire rend compte de l'atténuation de l'onde cohérente due à la diffusion. Cette atténuation est due au transfert d'énergie de l'onde cohérente vers l'onde incohérente. Par exemple la lumière directe du soleil s'atténue exponentiellement lors de la propagation dans un nuage pour se transformer en lumière diffuse.

Dans la limite ou les diffuseurs deviennent suffisamment petits pour que la diffusion soit négligeable, la partie imaginaire tend vers 0. Par contre si la fraction volumique demeure importante, la partie réelle sera sensiblement différente de celle du liant. Dans ce régime où il n'y a pas de diffusion appelé régime statique lorsque $\lambda_0 \longrightarrow \infty$, il existe des modèles[11] permettant d'évaluer l'indice effectif du milieu composite. Quand la diffusion apparait, l'indice effectif peut s'évaluer en faisant appel à la théorie de la diffusion multiple[12]. A priori l'indice effectif évalué par les modèles de diffusion multiple devraient converger vers les modèles en régime statique. Cela peut constituer un test d'accord entre les modèles pour des paramètres de système[13] où le domaine de validité des deux approches est supposé commun.

Finalement, connaître la partie imaginaire $Im(n_{eff})$ de l'indice effectif est un moyen détourné pour calculer le coefficient d'extinction K_{ext} car elles sont reliées par:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_{eff}) \tag{IV.15}$$

Ce moyen détourné est intéressant quand la méthode classique du calcul de la section efficace d'extinction d'une particule puis du coefficient d'extinction sous l'hypothèse d'une diffusion indépendante n'est pas applicable. Nous avons vu au chapitre III que lorsque les diffuseurs sont placés dans un milieu hôte absorbant, la section efficace de diffusion pose aussi un problème de définition.

Problème de la géométrie effective pour un milieu diffusant limité

L'une des questions que nous avons été amené à nous poser porte sur la géométrie "vue" par le champ moyen que nous appelons la géométrie effective. Dans un récent article, les auteurs[14] supposent que la géométrie effective de la couche diffusante est une couche mince d'indice homogène (voir Fig. IV.6) qui sépare le vide. Si tel était le cas, cela impliquerait que l'amplitude moyenne

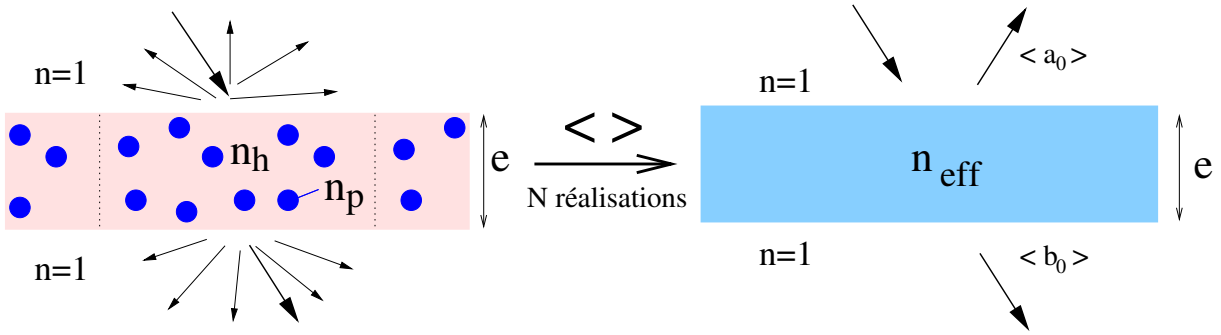


FIG. IV.6 – *Géométrie effective pour le champ moyen pour des diffuseurs petits devant les dimensions caractéristiques de la boite.*

des ondes réfléchies ($< a_n >$) et transmises ($< b_n >$) devraient toutes être nulles sauf pour les

11. Maxwell-Garnet (1904); Bruggeman (1935)
12. voir chapitre II et III pour les modèles de Foldy-Twersky et de Keller généralisés en milieu absorbant
13. par exemple le cas d'une faible fraction volumique de petits diffuseurs devant la longueur d'onde
14. Roux, Mareschal, Vukadinovic, Thibaud, et Greffet (2001)

ordres de diffractions tels que $n = 0$, i.e. les directions spéculaires en réflexion et en transmission. Dans la pratique les amplitudes moyennes sont évaluées par la formule suivante:

$$< a_n >= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} a_{n,i} \tag{IV.16}$$

où i indique le numéro de la réalisation et N est le nombre total de réalisations. Pour un nombre N suffisant, les $< a_n >$ convergent. Mais il est observé que les $< a_n >$ telle que $n \neq 0$ ne convergent pas tous vers 0 contrairement à ce qui était supposé par Roux *et al.* (2001). Bien que $< a_0 >$ prédomine le plus souvent[15] sur les autres ordres de diffractions. Si la norme de l'amplitude moyenne de l'ordre 1 par exemple est 10 fois plus petite que celle de l'ordre 0 (dans les calculs effectués, le rapport 10 est le minimum que nous ayons observé dans la situation la plus défavorable), alors la puissance rayonnée est quand à elle 100 fois plus petite. On peut comprendre pourquoi cela n'a pas été noté auparavant. Le fait que les $< a_n >$ et les $< b_n >$ ne tendent pas vers 0 pour les $n \neq 0$ implique que la géométrie effective n'est pas, contre toute attente, une simple couche mince homogène, mais un réseau. Pour expliquer pourquoi nous avons affaire à un réseau, il faut revenir sur la manière dont sont distribués les cylindres dans la couche. Nous avions indiqué que les cylindres étaient disposés aléatoirement de telle sorte qu'ils ne dépassent pas de la boîte périodique, c'est à dire ni de l'interface inférieure et supérieure, ni de la délimitation gauche et droite de la boîte. Dans la figure IV.7 nous représentons la zone rectangulaire où peuvent se

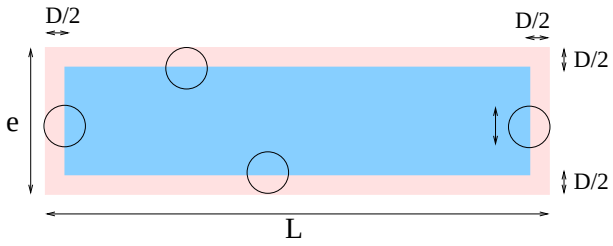


FIG. IV.7 – *La zone foncée délimite la zone permise pour les centres des diffuseurs.*

distribuer les centres des cylindres circulaires. Le volume de la boîte périodique est Le tandis que celle contenant les positions possibles des centres des diffuseurs est $(L - 2a)(e - 2a)$. Ces deux volumes sont sensiblement différents quand le rayon a des diffuseurs n'est pas très petit devant l'épaisseur e et la période L du système. Or la théorie de la diffusion multiple appliquée à l'étude du cohérent (voir II), nous montre que la zone effective est associée à la position possible du centre des diffuseurs. Nous pouvons maintenant dessiner la géométrie effective vue par le champ moyen (voir Fig. IV.8). Nous pouvons noter deux cas où le rôle de la géométrie effective peut être important comparé à la simple couche mince effective. Premièrement, quand le rayon des particules n'est pas négligeable devant la taille de la boîte, la fraction volumique de particule sera plus importante, mais confinée dans une zone plus petite, ce qui implique que l'extinction d'une onde cohérente est plus importante, mais sur une distance plus petite. Deuxièmement, si la fraction volumique de particule est telle que la partie réelle de l'indice effectif s'écarte notablement de celle du liant, alors l'effet réseau se fera ressentir. Ce qui implique que plus d'énergie cohérente sera transportée dans les ordres de diffraction non-nuls.

Problème inverse: identification de l'indice effectif

Dans Roux *et al.* (2001), les parties réelle et imaginaire de l'indice effectif de la couche sont évaluées à partir des facteurs de réflexion et de transmission spéculaires énergétiques R_c et T_c

15. pour un angle d'incidence proche de l'angles de Brewster les ordres 1 et -1 sont souvent les ordres qui contiennent le plus d'énergie

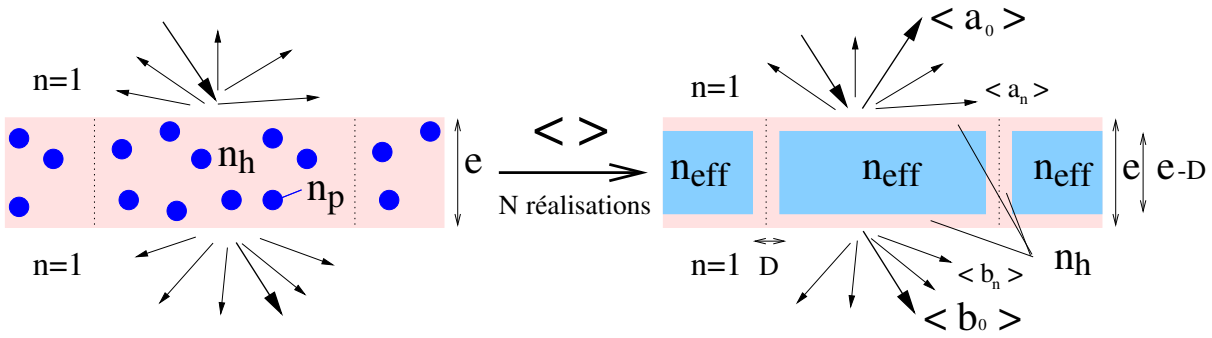


FIG. IV.8 – *La géométrie effective réelle pour le champ moyen est un réseau faiblement contrasté.*

données par la méthode électromagnétique exacte. Par ailleurs, la propagation d'une onde plane dans une couche mince homogène d'indice quelconque n est un résultat analytique classique qui se programme très rapidement, et qui permet de calculer les facteurs de réflexion et de transmission $R(n_{eff})$ et $T(n_{eff})$. Un code d'optimisation est ensuite utilisé pour balayer les valeurs tests de l'indice effectif sur l'espace complexe afin de minimiser la fonction suivante:

$$F(n_{eff}) = (R_c - R(n_{eff})) + (T_c - T(n_{eff})) \tag{IV.17}$$

Ce code donne les valeurs de l'indice effectif qui permettent de retrouver au plus près les facteurs de réflexion et de transmission spéculaires. L'une des diffultés de cette méthode est qu'il n'y a pas forcément une seule solution au problème. D'autre part, la méthode des moments dite exacte à sa propre limite de précision. Il s'agit donc de retrouver R_c et T_c à la précision près de la méthode des moments. La méthode d'identification de l'indice effectif peut selon la géométrie du système s'avérer être une méthode sensible. Elle sera d'autant plus sensible quand le milieu est optiquement mince, i.e. quand la partie imaginaire de l'indice effectif est petite et que le milieu est mince. Une autre limite apparaît pour un milieu optiquement très épais car la précision relative sur le facteur de transmission donné par la méthode des moments est plus faible. Heureusement, on peut choisir des cas intermédiaires pour lesquels la méthode est fiable.

Pour prendre en compte l'effet réseau de la géométrie effective, nous avons modifié la méthode de détermination de l'indice effectif. Nous disposions d'un code développé à l'Ecole Centrale Paris[16] capable de calculer les efficacités énergétiques de diffraction réfléchies $R_n(n_{eff})$, et transmises $T_n(n_{eff})$, du réseau 2D éclairé sans oblicité en polarisation P. La méthode décrite par Lalanne et Morris (1996) est basée sur un algorithme de Chateau et Hugonin (1994) combiné à la méthode de Li (1996) pour le problème du calcul de la transformée de Fourier du produit de deux fonctions discontinues en polarisation P. Nous avons dans la méthode d'identification remplacé le simple code de la couche mince par le code du réseau plus complexe, mais capable de modéliser correctement les propriétés diffractives de la géométrie effective. Puis nous avons choisi de retenir les solutions qui satisfont les conditions suivantes:

$$\frac{|R_{c,0} - R_0(n_{eff})|}{R_{c,0}} \leq Err_1 \tag{IV.18}$$

$$\frac{|T_{c,0} - T_0(n_{eff})|}{T_{c,0}} \leq Err_2 \tag{IV.19}$$

$$\frac{\sum_{n\neq 0} |R_{C,n} - R_n(n_{eff})|}{\sum_{n\neq 0} R_{C,n}} \leq Err_3 \tag{IV.20}$$

$$\frac{\sum_{n\neq 0} |T_{C,n} - T_n(n_{eff})|}{\sum_{n\neq 0} T_{C,n}} \leq Err_4 \tag{IV.21}$$

16. Guinnepain et Cladé (2001)

avec

$$R_{C,n} = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} | < a_n > |^2 \quad \text{(IV.22)}$$

$$T_{C,n} = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} | < b_n > |^2 \quad \text{(IV.23)}$$

Les Err_1, Err_2, Err_3, Err_4 sont les erreurs relatives maximums supposées que l'on change en fonction de la géométrie et des caractéristiques du milieu diffusant. Les conditions IV.19 et IV.20 expriment la précision sur l'énergie réfléchie et transmise spéculairement, tandis que les conditions IV.21 et IV.21 portent sur les énergies diffractées dans les autres ordres.

Les problèmes de sensibilité sont diminués par le nombre d'information supplémentaire exploité. Afin d'être certain de remonter par cette méthode à l'indice effectif correct, nous comparons les solutions obtenues pour différents angles d'incidence pour lesquels l'indice effectif doit être identique.

Comparaison à un modèle

Pour comparer le résultat de l'indice effectif avec un modèle, il est nécessaire de connaitre la fraction volumique de particules contenues dans le milieu effectif. Si N est le nombre de particules contenues dans la boîte, la fraction volumique f s'obtient simplement par:

$$f = \frac{N\pi a^2}{(L-2a)(e-2a)} \quad \text{(IV.24)}$$

alors que si la couche mince en entier avait été choisie comme géométrie effective, alors nous aurions obtenu:

$$f = \frac{N\pi a^2}{Le} \quad \text{(IV.25)}$$

On pourrait objecter que dans le cas où l'épaisseur e se rapproche de $2a$, la fraction volumique calculée par la formule IV.24 peut être supérieure à 1 et diverger (voir Fig.IV.9), ce qui semble n'avoir aucun sens. La quantité physique qui intervient dans la théorie de la diffusion multiple

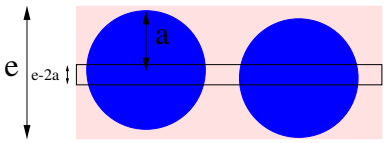


FIG. IV.9 – *Exemple d'un cas où la fraction volumique est plus grande que 1*

pour calculer le coefficient d'extinction, est le nombre de particules par unité de volume. Cette quantité diverge tout comme la fraction volumique, ce qui implique que le coefficient d'extinction diverge par la même occasion. Ce qu'il faut remarquer, c'est que pendant que l'extinction diverge quand e se rapproche de $2a$, la distance sur laquelle l'onde s'atténue égale à $e-2a$ tend vers 0. Le produit des deux $K_{ext} * (e-2a)$ tend vers une constante [17]. L'atténuation du cohérent $e^{-K_{ext}*(e-2a)}$ après le passage des particules prend donc une valeur finie. Il n'y a donc pas de contradiction.

17. Ceci peut être démontré facilement en utilisant l'expression du coefficient d'extinction obtenue par une méthode perturbative (voir par chapitre III pour le cas 3D ou l'annexe E pour le cas 2D).

Remarques sur d'autres méthodes de détermination de l'indice effectif sur un système diffusant de taille finie

Pour calculer l'indice effectif d'un milieu composé d'une assemblée de particules, certains auteurs adoptent une géométrie diffusante de forme sphérique pour un système 3D [18], ou rectangulaire en 2D [19]. Dans le cas 3D, les petites particules sont distribuées aléatoirement dans une plus grande sphère fictive de taille limitée (Fig. IV.10). Le système est éclairé par une onde plane. Le

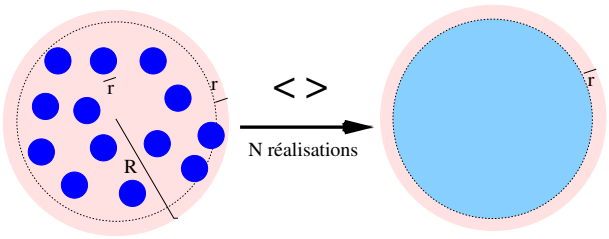


FIG. IV.10 – *Une géométrie diffusante sphérique et sa géométrie effective associée*

champ électromagnétique diffracté est calculé pour de nombreuses réalisations de système [20]. La moyenne des champs diffractés est calculée pour obtenir le diagramme de diffusion moyen de la sphère diffusante. Les auteurs tentent alors de superposer sur ce diagramme moyen le diagramme de diffusion de la grande sphère, avec pour indice homogène l'indice effectif. Le diagramme de la grande sphère homogène se calcule rapidement par la théorie de Mie. L'indice effectif de la sphère est un paramètre d'ajustement. De cette façon, ils obtiennent la partie réelle et la partie imaginaire de l'indice effectif. Dans l'article de Siqueira et Sarabandi (2000), il semble que le rayon de la grande sphère choisi pour calculer la diffusion de Mie est R alors que nous pensons que le rayon de la sphère effective est $(R - r)$ exactement comme dans le cas de nos couches diffusantes étudiées. Quand $R >> r$, l'effet est peu important. Mais comme le calcul électromagnétique est très couteux, il est naturel de choisir un système le plus petit possible. Comme la sphère effective a un rayon plus petit, la fraction volumique est plus importante que celle indiquée par les auteurs et cet effet peut ne pas être négligeable.

La géométrie que nous avons étudié est périodique pour rendre le système infini selon cette direction afin de se comparer au résultat de la méthode radiative sur une couche mince infiniment étendue. Pour mesurer le coefficient d'extinction d'un milieu diffusant nous aurions pu utiliser une autre méthode électromagnétique qui évite d'étudier une géométrie périodique. Saillard et Sentenac (2001) et Sentenac *et al.* (2002) entre autres, limitent la taille du système aléatoire par un éclairement localisé de l'objet (voir Fig.IV.11). L'éclairement a la forme d'un faisceau gaussien construit par une somme d'ondes planes. Le waist (largeur minimale du faisceau) du faisceau Gaussien est choisi suffisamment grand pour que les statistiques de l'objet aléatoire puissent être bien représentées. Dans un milieu aléatoire, il est nécessaire et suffisant que les fonctions de répartitions des objets (ou les fonctions de corrélations) soient bien representées. L'hypothèse d'ergodicité est ensuite utilisée pour évaluer les propriétés moyennes d'une surface de taille plus importante à partir d'un ensemble de réalisations de système. Dans le cas d'une surface rugueuse, la surface maillée est choisie un peu plus grande que le waist. Ainsi les problèmes liés aux effets de bords qui peuvent se présenter dans le cas de l'étude d'une géométrie de taille limitée et éclairée par une onde plane, sont supprimés.

18. Barrowes, Ao, Teixeira, Kong, et Tsang (2000); Siqueira et Sarabandi (2000)
19. Siqueira et Sarabandi (1996); Sarabandi et Siqueira (1997)
20. Les méthodes utilisées pour la résolution du problème électromagnétique sont la méthode des moments en 2D et une méthode de type Matrice T en 3D

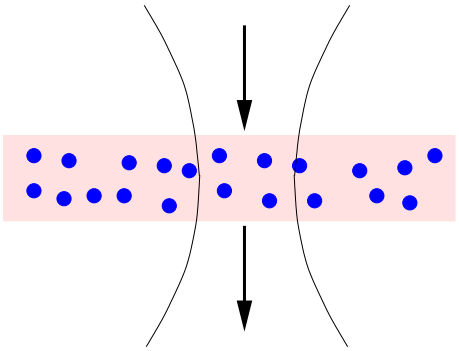


FIG. IV.11 – *Milieu aléatoire éclairé par un faisceau gaussien*

IV.3 Comparaison des modèles d'extinction avec les résultats numériques. Couplage diffusion/absorption en régime indépendant et dépendant.

IV.3.1 Introduction

Pour la première fois à notre connaissance, nous présentons une comparaison entre le coefficient d'extinction obtenu par un calcul électromagnétique exact et des prédictions théoriques pour un système contenant des diffuseurs baignant dans un milieu absorbant. Les prédictions théoriques du coefficient d'extinction en milieu absorbant s'obtiennent par les modèles de Kuga (ou Fardella[21]), de Foldy-Twersky et de Keller généralisés. Le coefficient d'extinction déduit des résultats numériques s'obtient par la méthode d'identification décrite dans la section IV.2.2. Le modèle de Kuga a été adapté pour notre géométrie 2D dans l'annexe D. Les formules de Foldy-Twersky et de Keller 2D sont démontrées dans l'annexe E en appliquant la théorie de la diffusion multiple. A partir de ces modèles, nous obtenons les expressions suivantes:

- Kuga:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h''(1-f) + \frac{f}{\pi a^2} C_{ext,p} \tag{IV.26}$$

  où $C_{ext,p}$ est la section efficace d'un cylindre en supposant le liant non-absorbant.

- Foldy-Twersky généralisée:

$$k_{eff}^2 = k_1^2 + i\frac{f}{\pi a^2} 4 S_{k_1}(0) \tag{IV.27}$$

  où $S_{k_1}(0)$ est la matrice de diffusion de Mie dans la direction avant calculé pour un nombre d'onde k_1 pouvant être complexe.

- Keller généralisée:

$$k_{eff}^2 = k_1^2 + \frac{f}{\pi a^2} i4 S_{k_1}(0) + \left(\frac{f}{\pi a^2} i4 S_{k_1}(0)\right)^2 \int_0^\infty \frac{i\pi}{2} H_0^{(1)}(k_1 r) J_0(k_{eff} r) r g_2(r) dr \tag{IV.28}$$

  où g_2 est la fonction de corrélation d'une paire de diffuseur.

21. Nous avons montré l'équivalence des deux modèles pour le calcul de l'extinction dans l'annexe D

Les coefficients d'extinctions par les modèles de Foldy-Twersky et de Keller généralisés s'obtiennent à partir du nombre d'onde effectif par la relation:

$$K_{ext} = 2Im(k_{eff}) \tag{IV.29}$$

Nous préférons présenter la partie imaginaire de l'indice effectif plutôt que le coefficient d'extinction car elle peut être comparée directement à la partie imaginaire du liant. Pour le modèle de Kuga, la partie imaginaire de l'indice effectif équivalent s'obtient à partir du coefficient d'extinction par la formule suivante. $Im(n_{eff}) = \frac{\lambda_0}{4\pi} K_{ext}$.

La validité de ces modèles dépend de quatre paramètres hormis la forme (l'étude est restreinte au cas de diffuseurs cylindriques à base circulaire):

- le rapport du diamètre des particules D à la longueur d'onde;
- le rapport d'indice des particules à celui du liant $\frac{n_p}{n_h}$;
- la fraction volumique f;
- la partie imaginaire du liant $Im(n_h)$.

Nous pouvons difficilement balayer tout l'espace engendré par ces quatre paramètres. Nous limiterons notre étude pour des milieux dont les paramètres physiques intrinsèques sont proches de ceux que l'on peut trouver par exemple dans une peinture diffusante pour une longueur d'onde dans le domaine de l'optique et le proche infrarouge. Dans les cas présentés, les paramètres sont les suivants:

- $D = 0.5\lambda_0$ ou $D = 0.6\lambda_0$ ou $D = 0.8\lambda_0$;
- $\frac{n_p}{n_h} = \frac{2.21}{1.46} \approx 1.5$ ou $= \frac{1.59}{1.33} \approx 1.2$ ou encore $= \frac{2.21}{1.33} \approx 1.66$;
- $f \epsilon [3\%, 15\%]$ dans de nombreux cas et $f \epsilon [25\%, 40\%]$ dans quelques autres cas;
- $Im(n_h) \epsilon [0.001, 0.1]$.

Lorsque la fraction volumique de particules non-absorbantes plongées en milieu absorbant est importante, les particules non-absorbantes représentent une part non-négligeable de la matière, diminuant par la même occasion la proportion de matière absorbante. Le coefficient d'extinction est la somme du coefficient de diffusion et du coefficient d'absorption. Par le mot "couplage", on sous-entend une modification de la part du coefficient d'absorption dans le coefficient d'extinction de par la présence des diffuseurs. C'est ce que Kuga tente de prendre en compte dans le premier terme dans sa formule de l'extinction en $\frac{4\pi D}{\lambda_0} Im(n_h)(1-f)$. Toutefois, il n'y a aucune raison que le terme en $(1-f)$ soit correct comme nous en avons discuté lors du chapitre III pour un système 3D et dans l'annexe D pour le cas 2D. Ce couplage a toutes les chances de se produire pour de fortes fractions volumiques de diffuseurs. Mais dans cette situation, l'approximation de la diffusion indépendante n'est plus valable, la diffusion devient dépendante. En d'autres termes le coefficient de diffusion n'est plus linéaire avec la fraction volumique de particules. Des résultats expérimentaux[22] et des simulations numériques exactes[23] montrent que pour des petites particules

22. Ishimaru et Kuga (1982); Drolen, Kumar, et Tien (1987); Fraden et Maret (1990); Mandt, Kuga, et Ishimaru (1992); West, Gibbs, Tsang, et Fung (1994); Gélébard, Ferrand, Schnorenberg, et Avrilier (1995); Gobel, Kuhn, et Fricke (1995); Nashashibi et Sarabandi (1999); Hespel, Mainguy, et Greffet (2001)

23. Tsang, Mandt, et Ding (1992); Lu, Wang, Chew, et Tsang (1993); Lu, Chew, et Tsang (1995); Siqueira et Sarabandi (2000)

devant la longueur d'onde le coefficient est plus petit que celui prévu par la théorie de la diffusion indépendante. Cette tendance s'inverse pour une certaine taille de particules.

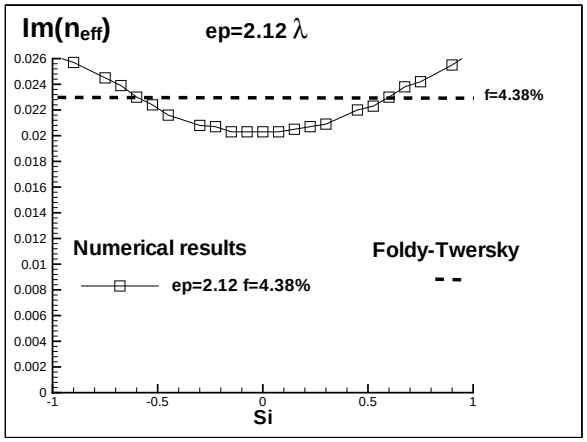
La formule de Keller en milieu non-absorbant prend en compte une certaine classe d'effets cohérents qui rendent compte de certains phénomènes qui introduisent de la diffusion dépendante. Pour ces raisons, le modèle de Keller généralisé en milieu absorbant a été développé en 2D dans l'espoir de reproduire les résultats numériques. Le modèle de Keller nécessite toutefois plusieurs approximations. Les diffuseurs doivent être faibles pour limiter les diffusions récurrentes et ils doivent être petits devant la longueur d'onde. Enfin, le terme correctif par rapport à la formule de Foldy-Twersky est calculé sous une approximation scalaire. Par conséquent, il n'est pas évident qu'elle fonctionne pour les paramètres choisis dans ces simulations.

Les résultats seront présentés en trois parties. La première discute d'un effet de diffusion cohérente lié à la faible épaisseur d'une couche diffusante non-absorbante. Nous montrons qu'il est nécessaire que la couche soit suffisamment épaisse pour que l'effet puisse être négligé. La seconde partie est consacrée à la validation du modèle de Foldy-Twersky généralisé en milieu absorbant en régime de diffusion indépendante et la mise en évidence de la limite du modèle de Kuga ou Fardella. Enfin la troisième partie montre les résultats numériques en milieu absorbant en régime de diffusion dépendante. Nous montrons que le modèle de Keller généralisé en milieu absorbant prédit un coefficient d'extinction qui est en excellent accord avec le résultat de la simulation exacte quand le contraste d'indice des diffuseurs par rapport au liant est faible.

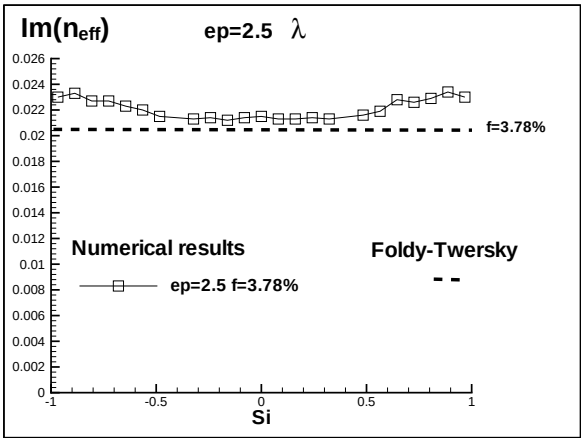
IV.3.2 Etude préliminaire: effets cohérents induits par une fine couche diffusante

Pour réduire les très longs temps de calculs exigés par la méthode des moments lorsqu'on s'intéresse à un système contenant de fortes fractions volumiques de particules, il est naturel de choisir une couche diffusante la plus fine possible pour réduire le nombre de mailles du problème. D'autre part, pour augmenter la précision de l'identification, nous calculons l'indice effectif pour de nombreux angles d'incidence en supposant qu'il ne dépend pas de l'angle d'incidence. Contre toute attente, nous avons observé que le coefficient d'extinction peut dépendre de l'angle d'incidence si l'épaisseur de la couche n'est pas très grande devant la taille des particules. L'origine de cette dépendance tient aux corrélations induites par le confinement dans une boîte d'une part, et par la contrainte de non-recouvrement d'autre part. Il s'agit donc d'un artefact lié à la géométrie. La fonction de distribution des paires de particules (supposées circulaires) dans un milieu infini (par exemple évaluée par le modèle de Percus-Yevik) ne dépend que de la distance qui sépare les particules, i.e. elle ne dépend pas de l'orientation des particules quand le milieu est infini. Par contre, quand l'épaisseur du milieu devient faible par rapport à la taille des particules, la distribution moyenne de la distance projetée dans la direction y séparant les centres de deux particules est différente de celle projetée dans direction x. A la limite où l'épaisseur e tend vers le diamètre des particules, la distance moyenne entre deux particules selon x tend vers 0 sans modification selon la direction y. Ces corrélations *anisotropes* sur la distribution des particules entrainent par conséquent une dépendance angulaire du coefficient d'extinction. Comme nous n'avons aucun modèle précis capable de prendre en compte cet effet, nous avons cherché à évaluer l'épaisseur à partir de laquelle cet effet devient négligeable.

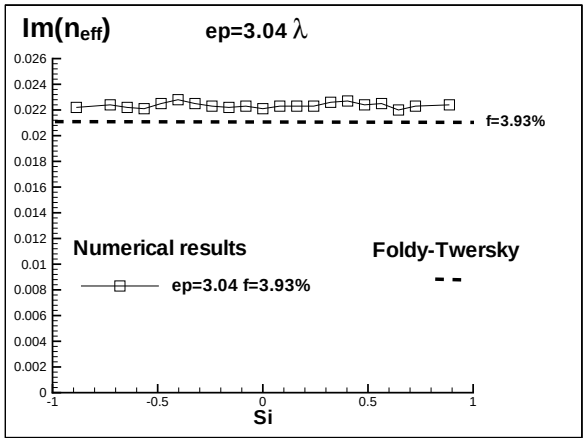
Les résultats pour l'ensemble des systèmes considérés sont présentés sur la figure IV.12. Tout écart du résultat exact par rapport au modèle de Foldy-Twersky, s'explique par un effet de diffusion dépendante puisque c'est un modèle de diffusion indépendante. Sur l'ensemble des figures IV.12, on voit qu'il apparait une dépendance du coefficient d'extinction avec l'angle d'incidence pour les couches de plus faibles épaisseurs. Pour les épaisseurs supérieures ou égales à $3.04\lambda_0$, il n'y a plus de dépendance angulaire du coefficient d'extinction. Par contre le modèle de Foldy-Twersky sous-estime le coefficient d'extinction. Le léger désaccord s'atténue avec l'épaisseur. Il devient négligeable pour $e = 7.6\lambda_0$.



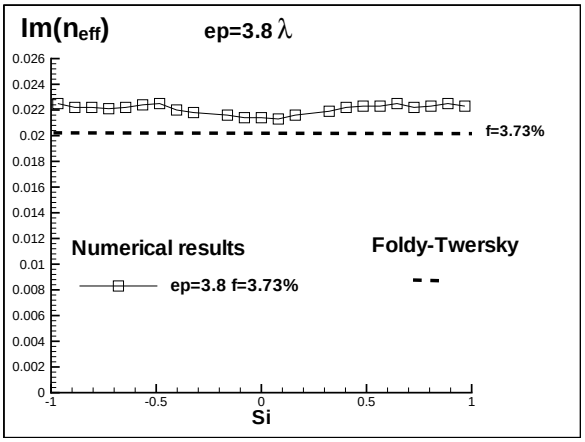
(a) épaisseur= $2.12\lambda_0$



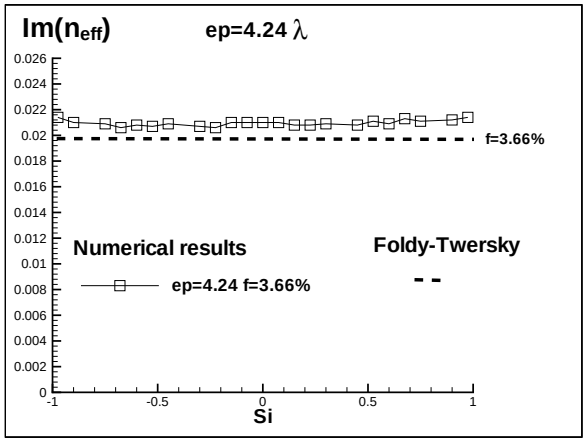
(b) épaisseur= $2.5\lambda_0$



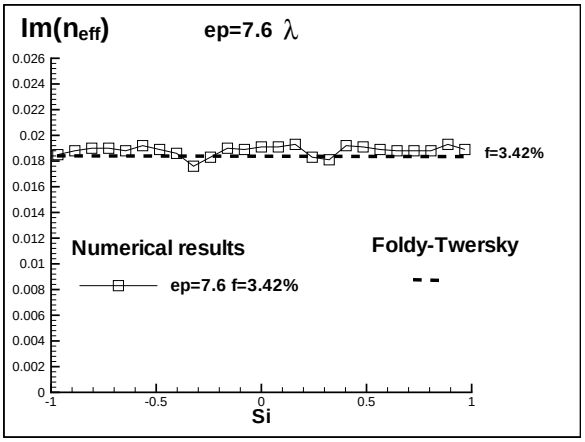
(c) épaisseur= $3.04\lambda_0$



(d) épaisseur= $3.8\lambda_0$



(e) épaisseur= $4.24\lambda_0$



(f) épaisseur= $7.6\lambda_0$

FIG. IV.12 – *Partie imaginaire de l'indice effectif en fonction de l'angle d'incidence en abscisse.* $D = 0.6\lambda_0$, $n_p = 2.21$, $n_h = 1.46$, *polarisation p . Ces courbes mettent en évidence une dépendance du coefficient d'extinction en fonction de l'angle d'incidence pour les plus petites épaisseurs. Cette dépendance devient négligeable à partir de* $e = 3.04\lambda_0$.

IV.3.3 Extinction en régime de diffusion indépendante en milieu absorbant: comparaison des modèles de Kuga et de Foldy-Twersky généralisé.

Il existe des tailles et des rapports d'indice particule sur liant tels que les effets de diffusions dépendante n'apparaissent que pour de très fortes fraction volumiques de particules. C'est le cas pour la série de résultats que nous présentons ici où $D = 0.6\lambda_0$, $n_p = 2.21$ et $Re(n_h) = 1.46$. Ces paramètres sont donc intéressants pour s'affranchir des effets de diffusion dépendante pour des fractions volumiques élevées. En d'autres termes, les paramètres du milieu sont tels que la diffusion dépendante n'entraine ni une augmentation, ni une diminution du coefficient d'extinction avec la fraction volumique par rapport à la diffusion indépendante. L'ensemble des résultats sont présentés Fig.IV.13.

Quand la partie imaginaire du liant $Im(n_h)$ est égale à 0 , 0.001 ou 0.003, nous qualifions le milieu de faiblement absorbant; quand elle est égale à 0.01, 0.03 ou 0.1 nous qualifions le milieu de fortement absorbant.

Les résultats pour la fraction volumique de 3.74% sont représentés sur la figure IV.13(a) pour un liant faiblement absorbant et sur la figure IV.13(b) pour un liant fortement absorbant. Pour cette fraction volumique, Foldy-Twersky généralisé et Kuga donnent des résultats identiques. On voit que, hormis un décalage absolu systématique dans le cas d'un liant faiblement absorbant, les modèles sont en très bon accord avec les résultats numériques. Ce décalage est probablement dû à la trop fine épaisseur du système.

Pour les cas des fractions volumiques de 7.48% Fig.IV.13(c) et IV.13(d), les conclusions sont identiques, sauf pour les cas fortement absorbants, où les prédictions des modèles de Kuga et de Fardella s'écartent légèrement. Tandis que le modèle de Foldy-Twersky généralisé reproduit très bien les résultats numériques, le modèle de Kuga s'en écarte de plus en plus quand la fraction volumique augmente et que l'absorption du liant est forte. On le voit très bien sur les Figures IV.13(e) et IV.13(f) pour les cas respectifs $f = 9.98\%$ et $f = 15.97\%$.

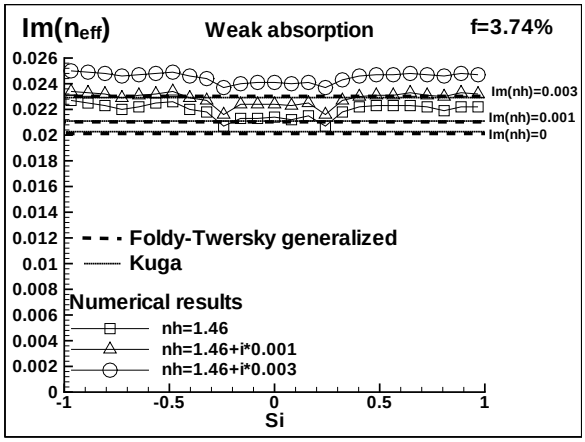
Pour conclure sur ces résultats, dans le cas où la diffusion dépendante est négligeable, le modèle de Foldy-Twersky généralisé est excellent. Le modèle de Kuga s'écarte du résultat exact quand la fraction volumique et quand le liant est très fortement absorbant. La formule de Kuga donne un résultat erroné pour deux raisons:

- La formule de Kuga sous-estime l'extinction à cause du terme en $Im(n_h)(1-f)$ qui n'est pas justifié rigoureusement (selon les conclusions du chapitre III)
- La section efficace de la particule en milieu absorbant est peut-être modifiée par rapport au cas non-absorbant car la quantité $\frac{4\pi D}{\lambda_0} Im(n_h) = 0.75$ et $e^{-0.75} = 0.5$. Par conséquent, la puissance de l'onde incidente décroît d'un facteur 2, ce qui n'est peut être pas négligeable. On peut s'attendre à une différence entre Kuga et Foldy-Twersky généralisé dès que $\frac{4\pi D}{\lambda_0} Im(n_h)$ n'est plus très petit devant 1 ou en d'autres termes, lorsque la taille de la particule est comparable à la longueur d'absorption.

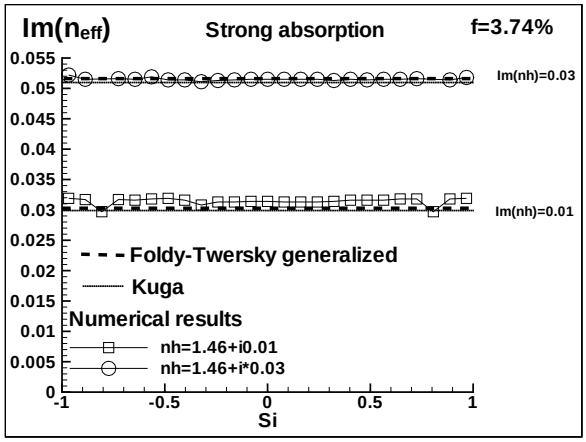
IV.3.4 Couplage extinction/absorption du liant en régime de diffusion dépendante

Dans la majorité des cas, quand la fraction volumique dépasse les quelques pour cents, la diffusion dépendante joue un rôle non négligeable sur le coefficient d'extinction. Les paramètres choisis dans cette partie, i.e. la taille des particules et le rapport d'indice des particules sur le liant sont tels que la diffusion est dépendante.

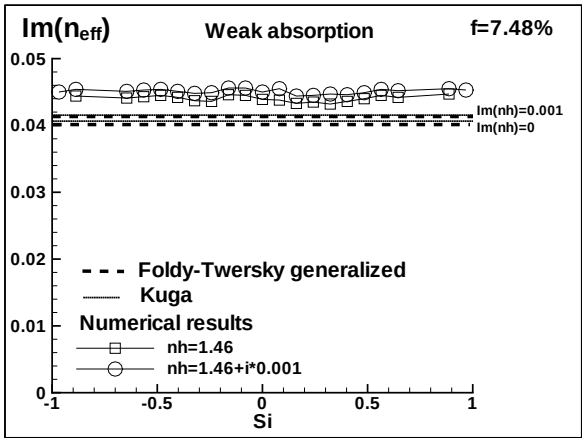
- Diamètre $D = 0.8\lambda_0$; rapport d'indice moyen: $\frac{n_p}{Re(n_h)} = \frac{2.21}{1.46}$.
- Diamètre: $D = 0.5$ où $0.6\lambda_0$; rapport d'indice faible: $\frac{n_p}{Re(n_h)} = \frac{1.59}{1.33}$.



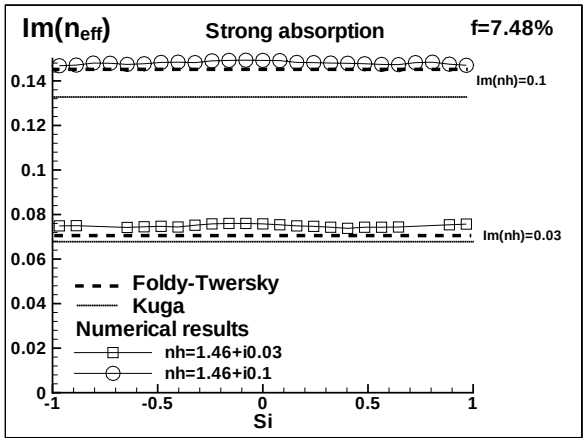
(a) Faible absorption, $f = 3.74\%$, $Maille = \frac{\lambda}{10}$, $e = 3.8\lambda_0$



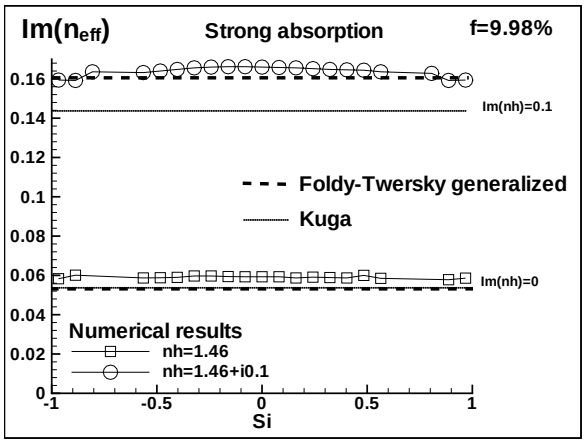
(b) Forte absorption, $f = 3.74\%$, $Maille = \frac{\lambda}{10}$, $e = 3.8\lambda_0$



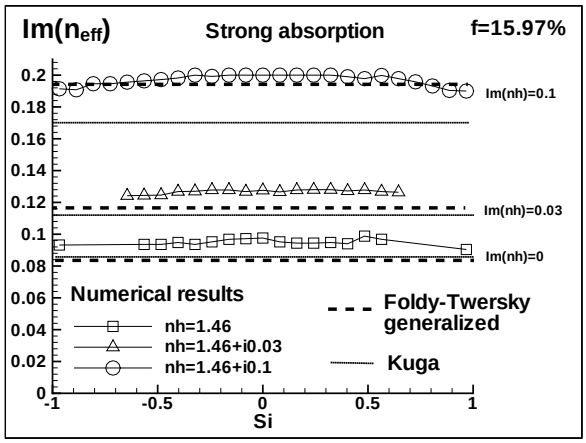
(c) Faible absorption, $f = 7.48\%$, $Maille = \frac{\lambda}{15}$, $e = 3.8\lambda_0$



(d) Forte absorption, $f = 7.48\%$, $Maille = \frac{\lambda}{15}$, $e = 3.8\lambda_0$



(e) Cas sans absorption et fortement absorbant, $f = 9.98\%$, $Maille = \frac{\lambda}{17}$, $e = 3\lambda_0$



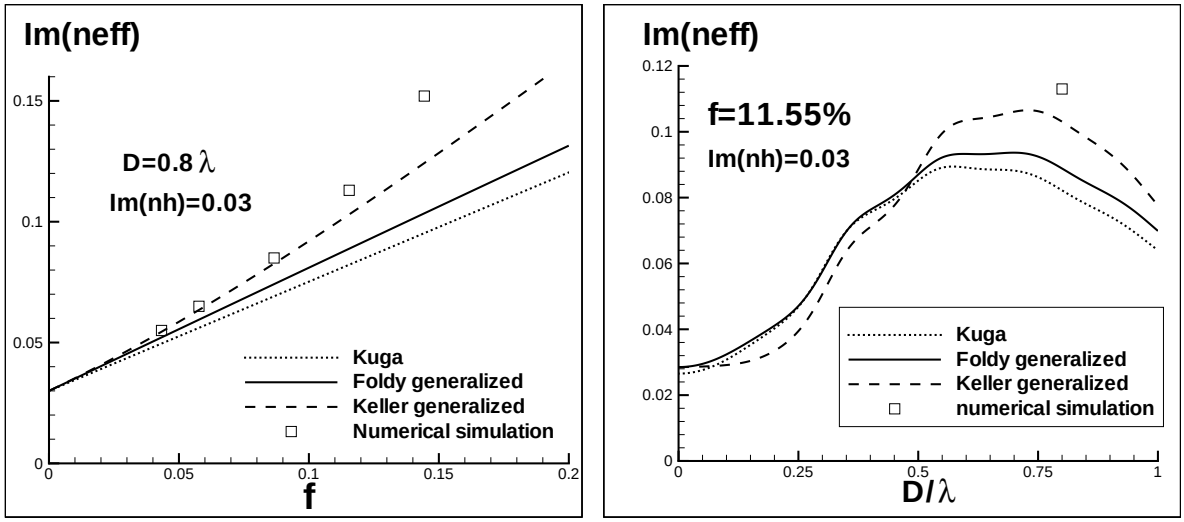
(f) Cas sans absorption et fortement absorbant, $f = 15.97\%$, $Maille = \frac{\lambda}{25}$, $e = 3\lambda_0$

FIG. IV.13 – *Partie imaginaire de l'indice effectif obtenue par les modèles de Kuga et de Foldy-Twersky généralisé en milieu absorbant et par la résolution numérique exactes des équations de Maxwell sur le système complet.* $D = 0.6$, $n_p = 2.21$, $Re(n_h) = 1.46$, $L = 12.4\lambda_0$, *polarisation p*

- Diamètre: $D = 0.5$ où $0.6\lambda_0$; rapport d'indice fort : $\frac{n_p}{Re(n_h)} = \frac{2.21}{1.33}$.

Dans le premier cas, la diffusion dépendante a pour effet d'augmenter le coefficient d'extinction par rapport au cas indépendant tandis que dans les deux autres cas, le coefficient d'extinction est plus petit que celui prévu par la diffusion indépendante.

Cas de particules de diamètre $0.8\lambda_0$ non-absorbantes plongées en milieu absorbant



(a) $D = 0.8\lambda_0$ (b) $f = 11.55\%$

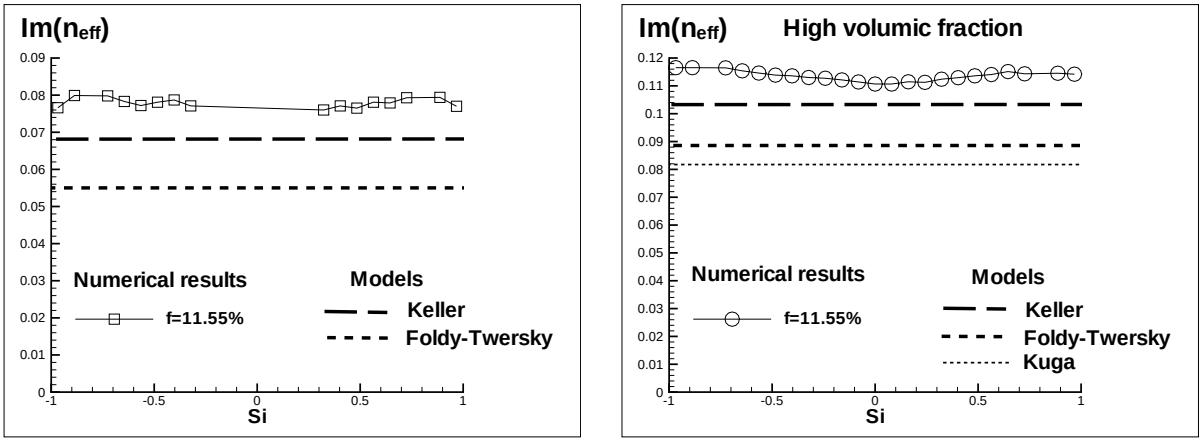
FIG. IV.14 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (équivalente à l'extinction) en fonction de la fraction volumique f en Fig.IV.14(a) pour un rayon fixé et en fonction du diamètre pour une fraction volumique fixée en Fig.IV.14(b). Le liant est absorbant.* $Re(n_h) = 1.46$, $Im(n_h) = 0.03$, $n_p = 2.21$, *polarisation p*

On s'intéresse ici au cas de particules de diamètre $D = 0.8\lambda_0$ plongées dans un milieu hôte absorbant avec $Im(n_h) = 0.03$. Les résultats sont présentés sur les figures IV.15. Pour ce type de particules, la diffusion dépendante a pour effet d'augmenter le coefficient d'extinction par rapport au cas indépendant. On le voit sur la figure IV.15(a) pour le cas de particules en milieu non-absorbant.

Les modèles de Foldy-Twersky généralisé et de Kuga donnent des résultats légèrement différents pour tous les cas présentés même pour le cas de la plus faible fraction volumique. Cette différence ne peut s'expliquer par la différence entre Foldy-Twersky généralisé et Kuga sur le terme en $(1 - f)$. Le désaccord est dû à la différence du résultat de la matrice de diffusion $S_{Re(k_1)}(0)$ en milieu non-absorbant présente dans le modèle de Kuga et la matrice de diffusion $S_{k_1}(0)$ présente dans le modèle de Foldy-Twersky généralisé.

Dans tous les cas, les modèles de Kuga et de Foldy-Twersky généralisé sous estiment les résultats exacts de l'extinction et ce désaccord augmente avec la fraction volumique. La diffusion dépendante est responsable de ce désaccord.

Bien que nous utilisons le modèle de Keller en dehors de ces approximations (les particules sont supposées petites devant la longueur d'onde) quand $D = 0.8\lambda_0$, Keller rétablit dans le bon sens le coefficient d'extinction, mais un désaccord toutefois subsiste pour les fractions volumiques élevées.



(a) $Im(n_h) = 0$ (b) $Im(n_h) = 0.03$

FIG. IV.15 – *Partie imaginaire de l'indice effectif en fonction du sinus de l'angle d'incidence.* $D = 0.8$, $f = 11.55\%$, $Re(n_h) = 1.46$, $n_p = 2.21$, $L = 12.4\lambda_0$ $e = 3.8\lambda_0$, $Maille = \frac{\lambda}{16}$, *polarisation p.*

La comparaison des figures IV.15(b) et IV.15(a) suggère une réponse possible à la question suivante. *L'absorption du liant a- t-elle tendance à diminuer les effets de diffusion dépendante?* La question parait légitime car les effets de diffusion dépendante sont intimement liés aux corrélations sur la position des diffuseurs. Comme la fonction de Green du liant décroît plus rapidement dans un milieu absorbant, l'effet de ces corrélations est diminué *a priori*.

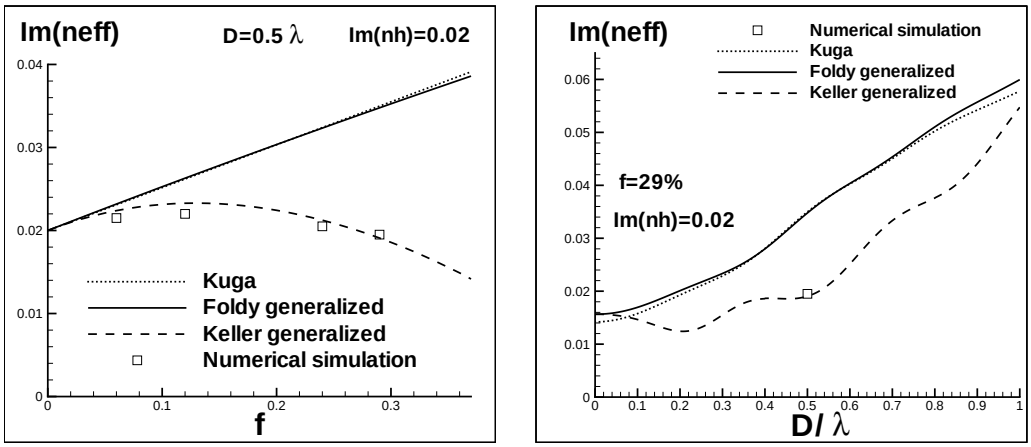
Si on mesure l'effet de la diffusion dépendante par l'écart absolu entre le résultat exact et le modèle de Foldy-Twersky généralisé, alors on voit que cet écart est à peu près identique (0.025) que le liant soit absorbant ou non. L'écart relatif est par contre plus petit dans le cas d'un liant absorbant puisque l'extinction est plus grande quand le liant est absorbant. Par conséquent, on ne peut pas affirmer que les effets de diffusion dépendante soient réduits par l'absorption du liant. L'explication est simple, la fonction de corrélation de paire a une portée de l'ordre du diamètre d'un diffuseur. L'atténuation de l'onde incidente est trop faible sur cette distance pour que la diffusion dépendante soit réduite. Toutefois, les effets cohérents liés à la diffusion multiple d'ondes corrélées entres les diffuseurs voisins sont probablement réduits car ils nécessitent des propagations sur des distances plus importantes. Comme ces corrélations sont difficiles à calculer, ceci est une bonne nouvelle. Par conséquent l'approximation de Keller devrait avoir un domaine de validité plus étendu en terme de fraction volumique et en terme de rapport d'indice particule sur liant quand le liant est absorbant.

Cas de particules faiblement contrastées par rapport au liant

Dans cette partie, les particules d'indice $n_p = 1.59$ sont plongées dans un liant dont la partie réelle de l'indice est $Re(n_h) = 1.33$. Le diamètre des particules est $D = 0.5\lambda_0$ pour toutes les fractions volumiques, sauf pour $f = 43.43\%$ pour lequel $D = 0.6\lambda_0$. La taille des particules et le contraste d'indice sont tels que la diffusion dépendante a tendance à diminuer le coefficient d'extinction par rapport aux prédictions de la diffusion indépendante. La partie imaginaire du liant est égale à 0.02.

Pour ce type de particules, les modèles de Foldy-Twersky généralisé et de Kuga donnent pratiquement les mêmes résultats.

L'évolution de la partie imaginaire de l'indice effectif en fonction de la fraction volumique est



(a) $D = 0.5\lambda_0$ (b) $f = 29\%$

FIG. IV.16 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (équivalente à l'extinction) en fonction du paramètre de taille des particules pour une fraction volumique fixée et pour un liant absorbant.* $Re(n_h) = 1.33$, $Im(n_h) = 0.02$, $n_p = 1.59$, *polarisation p.*

présentée sur la figure IV.16(a). Pour tous ces cas, la diffusion n'est pas très forte comparée à l'absorption puisque l'indice effectif obtenu par la simulation numérique exacte est peu différent de celui du liant. On observe que l'extinction n'augmente pas avec la fraction volumique, elle a même tendance à diminuer à partir de 12%. Le coefficient d'extinction est la somme du coefficient d'absorption et du coefficient de diffusion. Quand le milieu ne contient pas de particule, le milieu ne diffuse pas et l'extinction est due exclusivement à l'absorption. Le fait que l'extinction totale n'augmente pas quand la fraction volumique augmente, montre que le coefficient d'absorption diminue puisque le coefficient de diffusion n'est pas nul en présence de diffuseurs. Il est probable que la part du coefficient d'absorption dans le coefficient d'extinction diminue avec la fraction volumique car le volume de matière non-absorbante augmente. Pour $f = 29\%$, notons que l'extinction donnée par la simulation exacte semble plus petite ou égale[24] à l'extinction qu'il y aurait sans particule due uniquement à l'absorption du liant.

Dans tous ces cas le modèle de Foldy-Twersky généralisé surestime le coefficient d'extinction à cause de la diffusion dépendante. Un très bon accord entre le modèle de Keller en milieu absorbant et les résultats numériques exacts est observé. Il est étonnant que le modèle de Keller fonctionne une fois de plus. Il est probable que les prédictions de ce modèle soient correctes pour des diamètres de particules proches de $D = 0.5\lambda_0$. Pour cette raison, nous représentons Fig.IV.16(b), pour une fraction volumique $f = 29\%$, la partie imaginaire de l'indice effectif en fonction du diamètre des particules autour de $D = 0.5\lambda_0$. Nous avons relancé un autre cas de calcul pour $D = 0.6\lambda_0$ et $f = 43.43\%$. Le résultat présenté Fig. IV.17 montre que les modèles de Foldy-Twersky généralisé et Kuga surestiment la valeur de l'extinction d'un facteur d'environ 2.5 alors qu'il y a un excellent accord avec le modèle de Keller. Ce qui confirme qu'il doit exister un domaine de taille de particule pour lequel le modèle de Keller est correct. Pour cette fraction volumique, la partie imaginaire de l'indice effectif est plus petite que celle du liant.

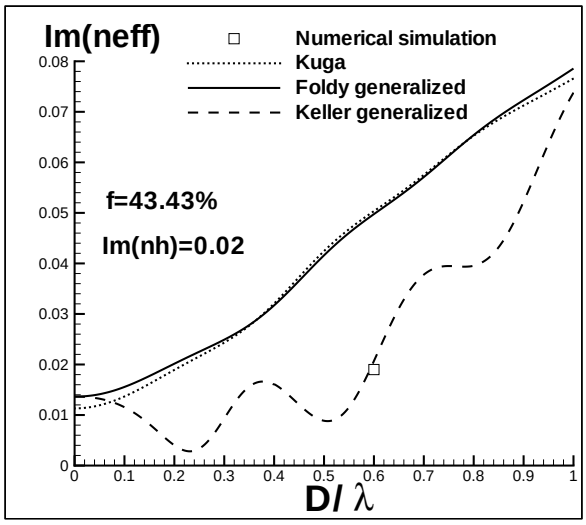
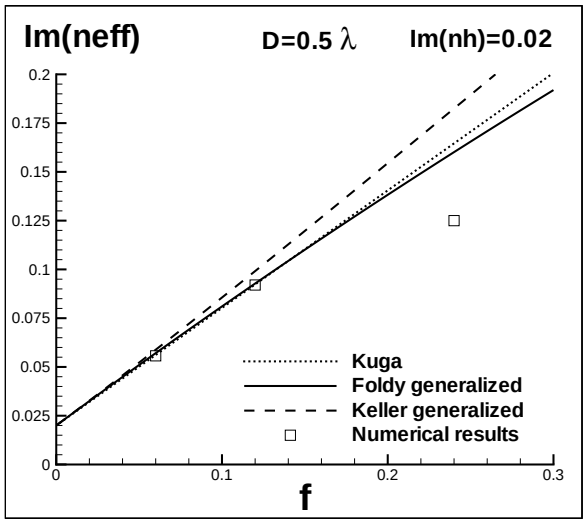
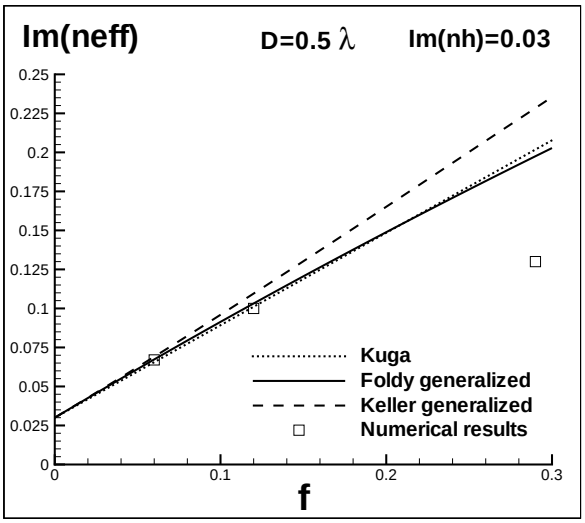


FIG. IV.17 – *Partie imaginaire de l'indice effectif en fonction du diamètre D des particules pour une fraction volumique fixée en milieu absorbant. $f = 43.43\%$, $n_h = 1.33 + i * 0.02$, $n_p = 1.59$, $L = 12.4\lambda_0$, $e = 3.8\lambda_0$, $Maille = \frac{\lambda}{11}$ polarisation p. Le résultat exact pour $D = 0.6\lambda_0$ montre que le coefficient d'extinction dans un milieu diffusant peut être plus petit que s'il n'y avait pas de diffuseur quand le milieu liant est absorbant.*



(a) $Im(n_h) = 0.02$



(b) $Im(n_h) = 0.03$

FIG. IV.18 – *Partie imaginaire de l'indice effectif en fonction de la fraction volumique. $Re(n_h) = 1.33$, $Im(n_h) = 0.02$, $n_p = 2.21$, $D = 0.5\lambda_0$, polarisation p*

Cas de particules plus fortement contrastées par rapport au liant

Prenons le cas de particules de diamètre de particule $D = 0.5\lambda_0$, avec un rapport d'indice particule sur liant $\frac{n_p}{Re(n_h)} = 1.66$ plus fort que précédemment. Pour la figure IV.18(a), la partie imaginaire de l'indice du liant vaut 0.02, tandis qu'elle vaut 0.03 pour la figure IV.18(b). Pour les fractions volumiques de 6% et 12%, et pour les deux types absorptions du liant, les trois modèles sont en accord avec les simulations numériques.

Pour le cas $f = 24\%$ et $Im(n_h) = 0.02$ et pour $f = 29\%$ et $Im(n_h) = 0.03$, aucun des modèles ne prédit correctement le coefficient d'extinction, et le modèle de Keller est celui qui surestime le plus les valeurs. La diffusion dépendante est responsable de ces désaccords et le modèle de Keller ne permet pas de rendre compte de ces effets pour ce type de particules.

Le trop fort contraste d'indice pour cette taille de particule, est probablement la cause du désaccord. On sait théoriquement que le modèle de Keller néglige d'une part les corrélations de paires dues aux diffusions multiples récurrentes, et celle d'ordre plus élevé concernant des corrélations à plus de deux diffuseurs. On sait que ces corrélations sont plus faibles *a priori* quand les diffuseurs diffusent moins. L'absorption limite aussi l'effet de ces corrélations puisqu'elle réduit les évènements de diffusion multiple. L'hypothèse d'une diffusion faible est donc nécessaire à l'établissement de la formule de Keller et elle devrait être d'autant plus valable en milieu absorbant. La Fig.IV.3.4 montre que le diamètre $D = 0.6\lambda_0$ correspond à une diffusion proche de la première résonance de Mie. Les corrélations d'ordre plus élevés que celle que le modèle de Keller prend en considération ont sans doute une importance non-négligeable sur la valeur de l'extinction.

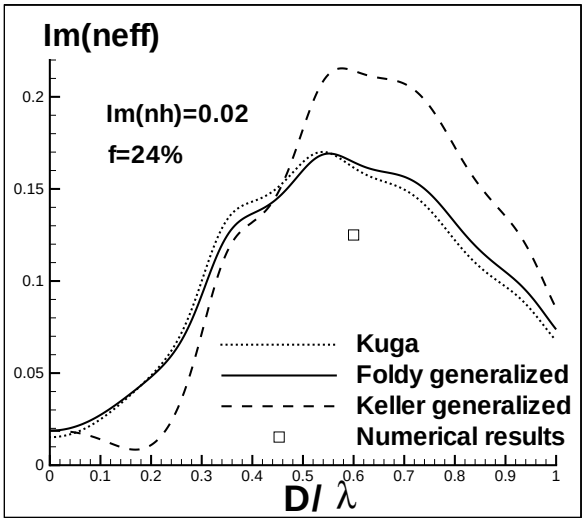


FIG. IV.19 – *Partie imaginaire de l'indice effectif en fonction du rayon des particules. Le liant est absorbant.* $Re(n_h) = 1.33$, $Im(n_h) = 0.02$, $n_p = 2.21$, $f = 24\%$, *polarisation p*

Peut-on extrapoler ces résultats au cas 3D par exemple pour un ensemble de diffuseurs sphériques. La fonction de Green 2D décroît beaucoup plus lentement que la fonction de Green 3D en champ lointain. Par conséquent le rôle des corrélations de champ lointain devrait être plus faible en 3D, et le domaine d'application du modèle de Keller en terme de rapport d'indice particule sur liant pourrait être plus étendu.

Il est étonnant que le modèle de Keller ait aussi bien reproduit certains résultats numériques. Dans une prochaine étude, il devrait être intéressant de reprendre la démonstration de la formule de Keller pour tenter d'éviter l'approximation des petits diffuseurs afin de montrer que cette

24. A cause de l'incertitude liée aux erreurs numériques, on ne peut affirmer que l'extinction est vraiment plus petite que celle du liant

formule devrait être valable pour des diffuseurs de taille plus importante.

IV.4 Conclusion

Nous avons, dans ce chapitre, comparé le coefficient d'extinction obtenu d'une part par une méthode exacte, et d'autre part par le modèle phénoménologique de Kuga (qui est équivalent au modèle de Fardella) et les modèles que nous avons développé: ceux de Foldy-Twersky et de Keller généralisés en milieu absorbant. La méthode dite "exacte" est la résolution numérique exacte des équations de Maxwell pour un milieu absorbant contenant des diffuseurs aléatoirement disposés dans l'espace. La géométrie du milieu diffusant retenue et étudiée est une fine couche composée d'un liant et de particules qui séparent le vide en deux espaces semi-infinis. Une étude paramétrique exacte sur des systèmes diffusants à trois dimensions contenant un nombre suffisant de diffuseurs fortement diffusants est encore hors de porté des ordinateurs actuels. Cette étude s'est donc restreinte au cas d'un système à deux dimensions. Une direction est choisie invariante par translation. Nous avons bénéficié de l'expérience acquise par d'autres auteurs [25] pour la résolution numérique des équations d'ondes sur ce type de géométrie avec une condition supplémentaire: une direction de périodicité. Nous avons détaillé la méthode statistique employée pour traiter un ensemble de réalisations de systèmes. Notamment, la moyenne statistique du champ total est exploitée pour obtenir l'indice effectif du milieu diffusant. Comme le coefficient d'extinction est, à un facteur près, la partie imaginaire de l'indice effectif, nous obtenons de cette manière la quantité physique souhaitée. Puis nous précisons, par rapport aux auteurs précédents, le rôle de la périodicité lors de l'identification de l'indice effectif. Nous avons par conséquent développé une nouvelle méthode d'identification plus précise qu'auparavant.

Les modèles de Foldy-Twersky et de Keller généralisés en milieu absorbant, et le modèle de Kuga, présentés au chapitre III pour le cas d'un système 3D sont explicités pour le cas d'un système 2D dans l'annexe E pour les modèles de Foldy-Twersky et de Keller, et dans l'annexe D pour le modèle de Kuga. Nous avons démontré en particulier que le modèle de Kuga est faux dans la limite des grandes longueurs d'onde et que par conséquent sa validité est douteuse pour le cas d'un milieu diffusant.

Ces modèles 2D sont comparés au résultat du coefficient d'extinction en milieu absorbant obtenu par la méthode exacte. Nous avons montré que les solutions théoriques proposées sont valables pour certains paramètres du milieu diffusant dans le cas 2D. Cette comparaison a pu mettre en évidence les défauts du modèle de Kuga et un bon accord du modèle de Foldy-Twersky généralisé tant que le régime de diffusion est indépendant. Dans le régime de diffusion dépendante, le modèle de Keller, malgrés ses hypothèses restrictives telles que des particules petites devant la longueur d'onde et une approximation scalaire, donne d'excellents résultats pour le cas de diffuseurs de diamètre proche de la longueur d'onde tant que le rapport d'indice particule sur liant n'est pas trop fort.

25. Mareschal (1996) et Roux, Mareschal, Vukadinovic, Thibaud, et Greffet (2001)

Chapitre V

Coefficients de diffusion et d'absorption d'un milieu absorbant contenant des diffuseurs non-absorbants

V.1 Introduction

La décroissance exponentielle d'un faisceau collimaté dans un milieu diffusant est décrit par le coefficient d'extinction K_{ext}. Les chapitres précédents traitent du problème du calcul de ce coefficient quand des diffuseurs sont plongés dans un milieu absorbant. La décroissance du faisceau est due à l'absorption du liant ou des particules, et à la diffusion des particules. On définit la part de l'une et de l'autre en écrivant:

$$K_{ext} = K_{sca} + K_{abs} \tag{V.1}$$

Bien que nous ayons vu comment calculer le coefficient d'extinction, nous ne connaissons pas la proportion due à l'absorption ou à la diffusion par les particules. Cette distinction permettera d'évaluer l'albedo du milieu moyen; c'est un paramètre essentielle de l'équation de transfert radiatif (ETR). Connaitre l'absorption moyenné par unité de volume, permettra par la même occasion d'évaluer l'émissivité d'un élément de volume. Ce problème d'ordre fondamental n'a à notre connaissance jamais été résolu rigoureusement. Même en régime de diffusion indépendante, des doutes subsistent sur les expressions des coefficients de diffusion et d'absorption connues, car les théories font appel à la notion de section efficace [1] dont la définition n'est pas triviale en milieu à pertes. Le problème est encore plus complexe lorsque la fraction volumique de diffuseurs devient importante car le phénomène de diffusion dépendante prend de l'importance. D'autre part, quand on insère une collection de particules non-absorbantes de fraction volumique f baignant dans un milieu absorbant, la part du volume absorbant dans le milieu diminue et devient $(1-f)$. Le comportement du coefficient d'absorption pour de fortes fractions volumiques de diffuseur est une question importante. On peut se demander si le coefficient d'absorption suit une loi en $(1-f)$, ce qui n'a rien d'évident. Nous avons étudié au chapitre III pour le cas de sphères et dans l'annexe D pour le cas de diffuseurs cylindriques infinis le coefficient d'absorption en fonction de f dans le régime d'homogénéisation [2]. Nous avons montré dans ce régime sans diffusion, que la loi en $(1-f)$

1. Les tentatives de définition d'une section efficace en milieu absorbant sont exposées dans les articles suivant:Mundy *et al.* (1974); Chylek (1977); Fardella et Berthier (1994); Quinten et Rostalski (1996); Sudiarta et Chylek (2001b); Yang *et al.* (2002). Fardella (1995) calcul un coefficient de diffusion tout en évitant de définir une section efficace, mais introduit d'autres approximations finalement équivalentes

2. Dans le régime d'homogénéisation, les particules sont très petites devant la longueur d'onde de l'éclairement. Dans ce régime, comme le coefficient de diffusion est nul, alors les coefficients d'extinction et d'absorption sont

n'est correcte que pour des particules dont l'indice est proche de celui du liant. Le comportement peut être très différent quand les particules ont un indice fortement contrasté par rapport au liant. En présence de diffusion, le problème se complique.

Nous avons vu aux chapitres III et IV que l'on peut éviter de définir une section efficace d'extinction en milieu absorbant en évaluant directement la décroissance du champ moyen, c'est à dire le champ cohérent ou le champ moyen. Mais l'étude du champ moyen n'est pas suffisante pour séparer l'absorption de l'extinction. Nous pensons que la clé du problème se situe dans l'étude de la fonction de corrélation du champ. Pour calculer rigoureusement le coefficient de diffusion en milieu absorbant, il faudrait reprendre tout le calcul vu au chapitre II du lien entre l'équation de Bethe-Salpether (EBS) qui régit la fonction de corrélation du champ, et l'ETR qui régit la luminance dans un milieu diffusant. Il devrait être possible de relier le coefficient de diffusion à l'opérateur intensité (contenu dans l'EBS) tout au moins sous l'approximation d'une diffusion indépendante (ou encore la "ladder approximation" dans la théorie ondulatoire de la diffusion multiple).

Dans l'attente du résultat de cette étude, nous pouvons toutefois nous attaquer au problème par un autre moyen. Au sens de la radiométrie généralisée, l'étude de la fonction de corrélation du champ revient simplement à étudier la luminance diffuse.

Nous allons étudier dans ce chapitre les propriétés radiatives d'une couche diffusante absorbante par deux méthodes. Par la première, le problème est résolu exactement par la résolution numérique des équations de Maxwell. La seconde méthode consiste à résoudre l'ETR avec des paramètres modélisés qui tente de prendre en compte à la fois l'absorption du liant et le problème de la diffusion dépendante. Considérons une couche absorbante qui ne contient pas de particules. Soit T, la part

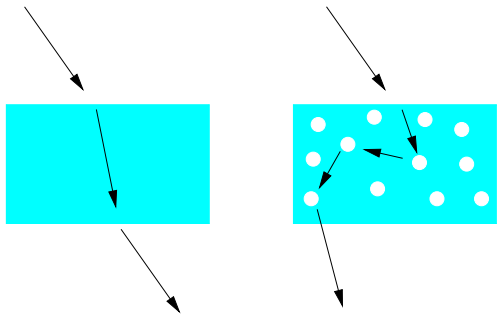


FIG. V.1 – *La couche mince absorbante contenant des diffuseurs non-absorbants (à droite) transmet-elle plus d'énergie que la couche mince homogène et absorbante (à gauche)?*

de l'énergie transmise par cette couche homogène. Est-il possible que ce facteur de transmission puisse augmenter lors de l'ajout de particules non-absorbantes. La transmission globale peut elle augmenter par un effet de type "percolatif" des particules non-absorbantes. En d'autres termes, dans quelles conditions - en terme d'indice de taille et de fraction volumique - la lumière peut-elle profiter des trous d'absorption pour se propager plus facilementΓ

Notons qu'il n'est pas évident que le facteur T augmente simplement parce que le volume absorbant diminue. Il ne faut pas oublier qu'il y a dans le même temps un autre effet en compétition. En présence de particules (voir la figure droite V.1), les chemins sont déviés, une ou plusieurs fois. La distance parcourue par la lumière avant la sortie du système est donc plus importante, et la probabilité d'absorption et de réflexion augmente.

Si ce phénomène d'exaltation du facteur de transmission existe, peut-on trouver les paramètres de l'ETR qui puissent reproduire le résultat électromagnétiqueΓ

Avant de répondre à ces questions par la comparaison de l'ETR à la méthode électromagnétique exacte, nous introduisons dans un premier temps la définition des quantités radiométriques pour

identiques.

un système 2D. Puis nous rappelons les principes qui conduisent à l'établissement de l'ETR 2D puis sa méthode de résolution. Enfin nous décrivons la résolution numérique des équations de Maxwell et comment on peut relier les statistiques des champs aux quantités radiométriques afin de comparer les deux résultats.

V.2 Définition des quantités radiométriques pour un système 2D

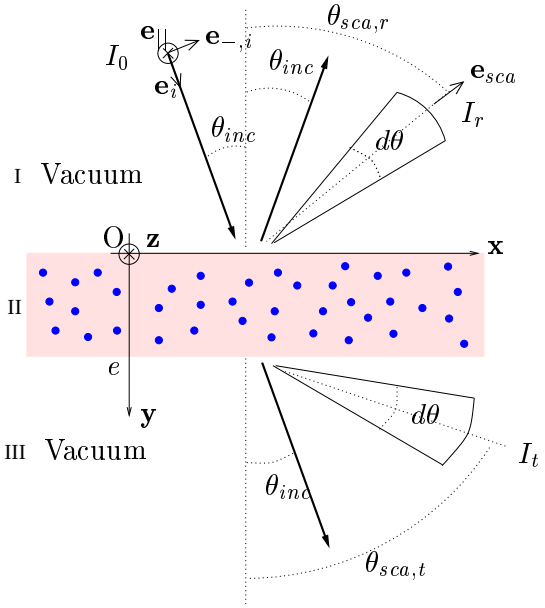


FIG. V.2 – *Système: couche diffusante 2D (1 direction d'invariance selon Oz)*

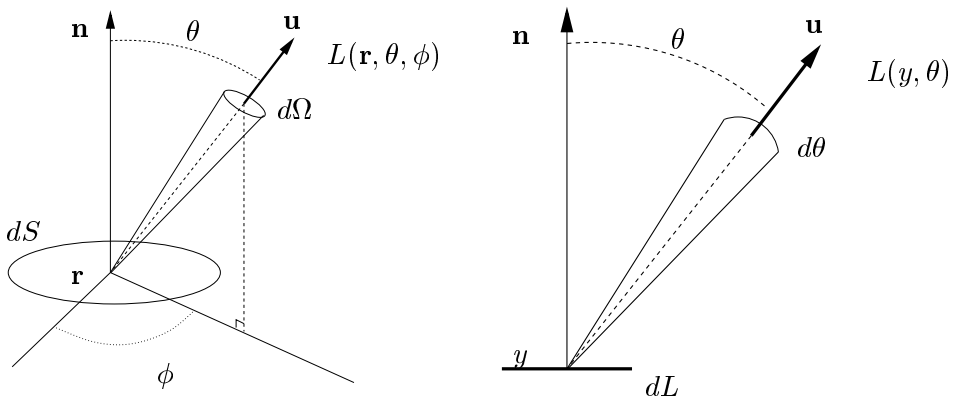
Le milieu est éclairé par une onde collimatée monochromatique qui se propage dans le plan d'incidence perpendiculaire aux cylindres (sans oblicité) dans la direction $\mathbf{e}_i$ formant un angle θ_{inc} avec la normale à la surface d'entrée. Dans ce cas particulier, les polarisations linéaires p (le champ électrique est dans le plan d'incidence) et s (le champ électrique est orthogonal au plan d'incidence dans la direction $\mathbf{e}_{\parallel} = \mathbf{z}$) sont indépendantes et peuvent être traitées séparément.

L'une des quantités radiométriques que nous cherchons est la luminance diffusée par le système. Rappelons que pour un système à 3 dimensions quelconques (statistiquement non uniforme), la luminance L se définit comme une puissance moyenne rayonnée $< dP >$ à travers une surface infinitésimale dS centrée en un point $\mathbf{r}$, orientée par une normale $\mathbf{n}$, et se propageant dans une direction $\mathbf{u}$ dans un angle solide infinitésimal $d\Omega$ centré autour de $\mathbf{u}$ (voir Fig.V.3 a). La luminance est reliée à $< dP >$ par la relation:

$$< dP(\mathbf{r}, \mathbf{u}) >= L(\mathbf{r}, \mathbf{u}) cos(\theta) dS d\Omega \tag{V.2}$$

où $cos(\theta) = \mathbf{n} \cdot \mathbf{u}$; et $cos(\theta)dS$ est la surface réellement vue dans la direction $\mathbf{u}$. L'unité de la luminance est dans ce cas une puissance par unité de surface et d'angle solide $[Wm^{-2}sr^{-1}]$. Comme le système considéré est 2D et a la particularité d'être statistiquement uniforme dans la direction x, et comme le milieu est éclairé par une luminance collimatée uniforme (la couche est uniformément éclairée), alors la luminance (voir Fig.V.3 b) ne dépend ni de z, ni de x. D'autre part, l'angle solide $d\Omega$ dans le cas 3D se réduit à un angle $d\theta$ dans le cas 2D et la surface dS devient un segment infinitésimal dL. Ainsi, la luminance L est reliée à la puissance rayonnée $< dP >$ par la relation:

$$< dP(y, \mathbf{u}) >= L(y, \mathbf{u}) cos(\theta) dL d\theta \tag{V.3}$$



(a) Cas générale 3D

(b) Cas pour une couche 2D statistiquement homogène éclairée uniformément

FIG. V.3 – *Définition de la luminance*

L'unité de la luminance $L(y,\theta)$ se réduit par conséquent à une puissance par unité de longueur et d'angle $[Wm^{-1}rad^{-1}]$. La luminance incidente L_{inc}, qui est collimatée dans la direction formant un angle θ_{inc} avec la normale à la couche s'écrit dans le vide:

$$L_{inc}(\theta) = \frac{F_0}{cos(\theta_{inc})}\delta(\theta_{inc} - \theta) \tag{V.4}$$

où F_0 est la densité de flux incident $[Wm^{-1}]$ reliée au vecteur de Poynting Π d'une onde plane par $F_0 = |\Pi|cos(\theta_{inc})$.

La solution complète du problème peut être décrite par la BRDF diffuse (fonction de distribution bidirectionnelle de la réflectance) et la BTDF diffuse (fonction de distribution bidirectionnelle de la transmittance) qui relie les luminances diffusées réfléchie et transmise respectivement à la luminance incidente:

$$L_{sca}(y=0,\theta_{sca}) = \int BRDF(\theta_{sca},\theta_{inc})L_{inc}(\theta_{inc})cos(\theta_{inc})d\theta_{inc}\ , \quad \frac{\pi}{2} > \theta_{sca} > 0 \tag{V.5}$$

$$L_{sca}(y=e,\theta_{sca}) = \int BTDF(\theta_{sca},\theta_{inc})L_{inc}(\theta_{inc})cos(\theta_{inc})d\theta_{inc}\ , \quad \pi > \theta_{sca} > \frac{\pi}{2} \tag{V.6}$$

L'unité de la BRDF et de la BTDF est par conséquent le rad^{-1}. Pour simplifier les notations on écrit par la suite $\rho''(\theta_{sca},\theta_{inc}) = BRDF(\theta_{sca},\theta_{inc})$ et $\tau''(\theta_{sca},\theta_{inc}) = BTDF(\theta_{sca},\theta_{inc})$. La notation $''$ rappelle que la fonction dépend de deux angles. En insérant la luminance incidente dans les expressions (V.5) et (V.6), on obtient

$$L_{sca}(y=0,\theta_{sca}) = \rho''(\theta_{sca},\theta_{inc})F_0 \tag{V.7}$$

$$L_{sca}(y=e,\theta_{sca}) = \tau''(\theta_{sca},\theta_{inc})F_0 \tag{V.8}$$

Dans le milieu I, une partie de la luminance réfléchie est de nature diffuse (L_{sca}), tandis qu'une autre partie que nous notons $L_{r,c}$ est collimatée dans la direction spéculaire. Dans une approche phénoménologique, la luminance collimatée réfléchie correspond à la partie de la luminance incidente qui a été réfléchie spéculairement (qui suit les loi de Snell-Descartes), mais qui n'a pas été diffusée. Plus rigoureusement, la théorie de la diffusion multiple (voir chapitre II), nous apprend que la luminance collimatée est la partie de la lumière réfléchie qui a conservé la propriété de

cohérence spatiale de l'onde incidente. De même, dans le milieu III, une partie de la luminance transmise est diffuse (L_{sca}) tandis que l'autre est collimatée ($L_{r,c}$). Les facteurs de réflexions R_c et de transmissions spéculaires T_c sont définis par les rapports suivants:

$$R_c = \frac{L_{r,c}}{L_{inc}} \tag{V.9}$$

$$T_c = \frac{L_{t,c}}{L_{inc}} \tag{V.10}$$

Deux autres quantités physiques importantes appelées facteurs de réflexion et de transmission hémisphériques diffus sont définies par:

$$\rho'(\theta_{inc}) = \int_0^{\pi} \rho''(\theta_{sca}, \theta_{inc}) cos(\theta_{sca}) d\theta_{sca} \tag{V.11}$$

$$\tau'(\theta_{inc}) = \int_0^{\pi} \tau''(\theta_{sca}, \theta_{inc}) cos(\theta_{sca}) d\theta_{sca} \tag{V.12}$$

où l'intégration s'effectue sur les directions du demi-espace supérieur pour la réflexion et du demi-espace inférieur pour la transmission. Elle exprime simplement le rapport entre la puissance réfléchie (respectivement transmise) dans toutes les directions et la puissance incidente. Notons que la conservation de l'énergie implique que l'absorptivité a' directionnelle du système vérifie:

$$R_c + T_c + \rho' + \tau' = 1 - a' \tag{V.13}$$

V.3 Le modèle des transferts Radiatifs 2D

Roux (1999) a développé pendant sa thèse un code permettant de résoudre l'équation de transfert radiatif pour la géométrie étudiée. Le détail de la méthode est exposée dans sa thèse. Nous rappelons l'équation de transfert radiatif 2D et la méthode numérique permettant sa résolution. Par rapport au travail de Roux (1999) les paramètres de l'ETR sont calculés par nos modèles originaux. Le calcul du coefficient d'extinction est par exemple décrits en annexe E valable en milieu absorbant en régime de diffusion indépendant et dépendant.

Pour étudier l'influence des pertes dans la matrice, notons que Simon (1995) à résolu l'ETR dans le cas d'un système 3D par une méthode de type Monte-Carlo avec différentes paramètres d'entrées évalués phénoménologiquement sous l'hypothèse d'une diffusion indépendante. Ce qui a permis de mettre en évidence la sensibilité du résultat par rapport aux paramètres d'entrées.

V.3.1 L'équation de transfert radiatif 2D

La démonstration de l'ETR pour le cas 2D est identique au cas 3D (voir chapitre I). L'équation intégro-différentielle pour la luminance, valable en tout point $\mathbf{s}$ du milieu diffusant et pour toutes directions $\mathbf{u}$ est:

$$\frac{dL(\mathbf{s},\mathbf{u})}{ds} = -K_{ext} L(\mathbf{s},\mathbf{u}) + \frac{K_{sca}}{2\pi} \int_0^{2\pi} p(\mathbf{u}',\mathbf{u}) L(\mathbf{s},\mathbf{u}') d\mathbf{u}' \tag{V.14}$$

ou $p(\mathbf{u}',\mathbf{u})$ est la fonction de phase. Dans le cas 2D, $\mathbf{u}'$ et $\mathbf{u}$ sont dans le même plan.

Soit $\theta^{II} \in [0, 2\pi]$ l'angle définie par la figure V.4 donnant la direction de propagation d'une luminance particulière dans le milieu II. On peut exprimer l'équation précédente dans un système de coordonnées sans dimensions et des paramètres sans dimensions. Pour cela est définie la profondeur optique $\tau = K_{ext} y$, et l'albedo $\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}}$. En utilisant la relation $dy = cos\theta^{II} ds$, et en divisant l'équation (V.14) par K_{ext}, on obtient:

$$cos\theta^{II} \frac{dL(\tau,\theta^{II})}{d\tau} = -L(\tau,\theta^{II}) + \frac{\varpi}{2\pi} \int_0^{2\pi} p(\theta'^{II},\theta^{II}) L(\tau,\theta'^{II}) d\theta'^{II} \tag{V.15}$$

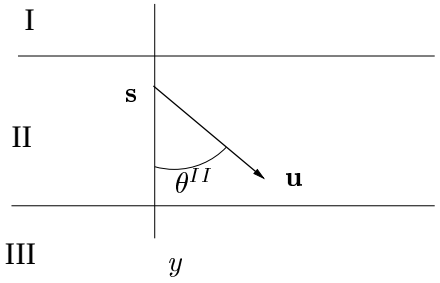


FIG. V.4 – *Définition de l'angle* θ^{II}

V.3.2 Facteurs de réflexion et de transmission cohérents

La source de diffusion n'est pas explicite dans l'équation précédente. Pour faire appaître la source extérieure, il est utile de séparer la luminance collimatée de la luminance diffuse.

$$L(\tau, \theta^{II}) = L_{sca}(\tau, \theta^{II}) + L_c(\tau, \theta^{II}) \tag{V.16}$$

L'expression de la luminance collimatée s'obtient facilement à partir de l'indice du liant n_h, de l'épaisseur de la couche e et du coefficient d'extinction. Il suffit de résoudre le problème du calcul analytique d'une onde se propageant dans une couche réfléchissante homogène d'indice $n = Re(n_h) + iIm(\frac{K_{ext}\lambda}{4\pi})$ où la partie imaginaire ajoutée à l'indice du liant décrit la décroissance de l'onde collimatée dans le milieu. Soit θ_0^I l'angle d'incidence dans le milieu I et θ_0^{II} l'angle de la luminance collimatée descendante dans le milieu II. Ces angles sont reliés par les lois de la réfraction de Snell-Descartes.

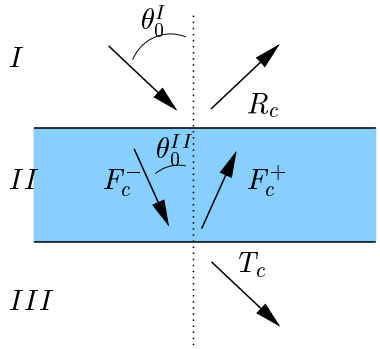


FIG. V.5 – *Notations pour les luminances spéculaires.*

Dans le milieu II, la luminance collimatée I_c se décompose en la somme de deux flux collimatés descendant F_c^- et montant F_c^+.

$$I_c(\tau, \theta^{II}) = F_c^- \delta(\theta_0^{II} - \theta^{II}) + F_c^+ \delta(\pi - \theta_0^{II} - \theta^{II}) \tag{V.17}$$

avec

$$F_c^- = \frac{F_0}{cos\theta_0^I} T_{12}(\theta_0^I) \Gamma e^{-\frac{\tau}{cos\theta_0^{II}}} \tag{V.18}$$

$$F_c^+ = \frac{F_0}{cos\theta_0^I} T_{12}(\theta_0^I) \Gamma R_{23}(\theta_0^{II}) e^{\frac{\perp 2\tau_m + \tau}{cos\theta_0^{II}}} \tag{V.19}$$

où $\tau_m = K_{ext} e$ est l'épaisseur optique de la couche et

$$\Gamma = \left[1 - R_{23}(\theta_0^{II}) R_{21}(\theta_0^{II}) e^{-\frac{2\tau_m}{cos\theta_0^{II}}}\right]^{-1} \tag{V.20}$$

est le facteur de réflexion multiple dans la couche. Les formules négligent les effets d'interférences. Elles sont valables si la longueur de cohérence temporelle $\frac{c}{\Delta\nu}$ est plus petite que l'épaisseur de la couche.

Par ailleurs, les expressions exactes des facteurs de réflexion et de transmission spéculaires sont:

$$R_c = R_{12}(\theta_0^I) + T_{12}(\theta_0^I)\Gamma R_{23}(\theta_0^{II})T_{21}(\theta_0^{II})e^{\frac{\perp 2\tau_m}{cos\theta_0^{II}}} \quad (V.21)$$

$$T_c = T_{12}(\theta_0^I)\Gamma T_{23}(\theta_0^{II})e^{-\frac{\tau_m}{cos\theta_0^{II}}} \quad (V.22)$$

V.3.3 ETR pour la luminance diffuse

Si l'on insère la luminance (V.16) dans (V.15), on obtient une ETR pour la luminance diffuse.

$$\begin{aligned} cos\theta^{II}\frac{dI_{sca}(\tau,\theta^{II})}{d\tau} &= -I_{sca}(\tau,\theta^{II}) + \frac{\varpi}{2\pi}\int_0^{2\pi} p(\theta'^{II},\theta^{II})I_{sca}(\tau,\theta'^{II})d\theta'^{II} \\ &+ \frac{\varpi}{2\pi}p(\theta_0^{II},\theta^{II})F_c^- + \frac{\varpi}{2\pi}p(\pi-\theta_0^{II},\theta^{II})F_c^+ \end{aligned} \quad (V.23)$$

V.3.4 Méthode de résolution de l'ETR

Il existe plusieurs techniques pour résoudre cette équation. La méthode des ordonnées discrètes, a été introduite par Chandrasekhar (1960). L'idée est de discrétiser l'intégrale sur les angles θ'^{II} par une quadrature. Dans notre cas, Roux (1999) a utilisé une double quadrature de Gauss prouvée comme étant la plus efficace[3], c'est à dire celle demandant le moins de discrétisation. L'équation intégrodifférentielle (V.23) se transforme par la méthode des ordonnées discrètes en un système linéaire d'équations différentielles. La méthode de résolution du système utilisée est identique au cas d'un système 3D[4]. Après discrétisation, on range les luminances dans des vecteurs du type:

$$[\mathbf{I}] = \begin{bmatrix} I(\tau,\theta_1) \\ I(\tau,\theta_2) \\ \vdots \\ I(\tau,\theta_n) \end{bmatrix}$$

L'équation (V.23) se réduit à un système d'équation différentielle sous la forme:

$$\frac{d[\mathbf{I}]}{d\tau} = \mathbf{M}[\mathbf{I}] + [\mathbf{S}] \quad (V.24)$$

où $\mathbf{M}$ est un opérateur matriciel et $[\mathbf{S}]$ est un vecteur contenant les sources. On cherche alors une solution particulière. La solution générale s'écrit à l'aide d'un développement sur les modes propres de $\mathbf{M}$. Les valeurs propres correspondent à des longueurs de décroissance de la luminance dans le milieu. On obtient la solution dans le milieu diffusant en imposant les conditions aux limites. Enfin on applique les conditions de continuités des luminances diffuses pour calculer les luminances émergentes en $\tau = 0$ et en $\tau = \tau_m$.

Cette méthode numérique est répétée pour de nombreux angles d'incidences, afin d'obtenir toutes les propriétés radiatives du système considéré:

- les BRDF et BTDF diffuses $\rho''(\theta_{inc},\theta_{sca})$ et $\tau''(\theta_{inc},\theta_{sca})$,
- les facteurs de réflexion et de transmission hémisphériques diffus $\rho'(\theta_{inc})$ et $\tau'(\theta_{inc})$,
- et les facteurs de réflexion et de transmission spéculaires $R_c(\theta_{inc})$ et $T_c(\theta_{inc})$.

3. Kumar, Majumdar, et Tien (1990)

4. Voir le livre de Thomas et Stamnes (1999) et l'article de Stamnes, Tsay, Wiscombe, et Jayaweera (1988) ou encore le chapitre VII

V.4 Méthode exacte: résolution des équations de Maxwell

V.4.1 Système considéré

Nous avons déjà décrit dans le détail au chapitre IV le système considéré par la méthode électromagnétique exacte. Il s'agit d'une boîte rectangulaire d'épaisseur e et de largeur L grande devant la longueur d'onde qui est reproduite périodiquement dans la direction de la largeur. L'axe z est une direction d'invariance, et l'onde incidente est dans le plan du rectangle. Pour une réalisation statistique du système, les diffuseurs sont disposés aléatoirement dans la boîte. Le système est donc un réseau qui diffracte les ondes propagatives dans les directions discrètes permises par la loi des réseaux.

V.4.2 La méthode des moments

Les équations de Maxwell sont réécrites pour ce système à deux dimensions sous la forme d'intégrales de contours fermés autour des particules et de la boîte. Ces équations sont résolues par la méthode des moments. Cette méthode consiste à discrétiser les intégrales puis de mettre les inconnues du problème sous la forme d'une équation matricielle linéraire aisément soluble numériquement. Par cette méthode sont calculées les amplitudes des champs sur la ligne d'entrée de la couche en $y = 0$ sur et sur la ligne inférieure en $y = e$. Pour cette réalisation particulière, par une transformée spatiale des champs sur ces lignes, on obtient l'amplitude des ondes planes réfléchies a_n en $y = 0$ et transmises b_n en $y = e$ dans les directions discrètes du réseaux.

$$\mathbf{E}^I(x, y = 0) = \mathbf{E}_{inc}(x, y = 0) + \sum_{n=-\infty}^{+\infty} a_n e^{i\alpha_n x} \mathbf{e}_{-I,n} \tag{V.25}$$

$$\mathbf{E}^{III}(x, y = e) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} b_n e^{i\alpha_n x} \mathbf{e}_{-III,n} \tag{V.26}$$

où α_n est la projection du vecteur d'onde sur l'axe x.

$$\alpha_n = \alpha_{inc} + n\frac{2\pi}{L} \tag{V.27}$$

Les vecteurs d'onde réfléchis $\mathbf{k}_n^I$ et transmis $\mathbf{k}_n^{III}$ d'ordre n sont donnés par:

$$\mathbf{k}_n^I = \alpha_n \mathbf{e}_x - \gamma_n \mathbf{e}_y \tag{V.28}$$

$$\mathbf{k}_n^{III} = \alpha_n \mathbf{e}_x + \gamma_n \mathbf{e}_y \tag{V.29}$$

Comme les vecteurs d'ondes ont tous pour norme k_0, alors la composante selon l'axe y vérifie la relation suivante:

$$\gamma_n = \sqrt{k_0^2 - \alpha_n^2} \text{ avec } Im(\gamma_n) \geq 0 \text{ et } Re(\gamma_n) \geq 0 \tag{V.30}$$

Dès que $\alpha_n^2 > k_0^2$, alors γ_n est complexe. Il existe donc un nombre limité d'ordre n tel que l'onde soit propagative dans la direction y.

Cette procédure est répétée pour de nombreuses réalisations de système i.e. de nouvelles dispositions aléatoires des diffuseurs dans la boîte. Les statistiques des amplitudes des ondes planes réfléchies et transmises par la couche sur l'ensemble des réalisations sont ensuites exploitées pour le calcul des puissances diffusées. Les facteurs de réflexions et de transmissions cohérents s'obtiennent comme nous l'avons indiqué au chapitre IV par les formules:

$$R_c(\mathbf{u}_{inc}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} | < a_n > |^2 \tag{V.31}$$

$$T_c(\mathbf{u}_{inc}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} | < b_n > |^2 \tag{V.32}$$

V.4.3 Quantités radiométriques à partir des statistiques des champs

Nous avons pour objectif de comparer les résultats issus de la solution de l'ETR avec les résultats obtenus par la méthode électromagnétique: nous devons calculer les BRDF et les BTDF diffuses en fonction des statistiques des champs. Dans l'annexe F est détaillé le calcul de la luminance et de la BRDF pour un système à deux dimensions et périodique selon une direction. Nous montrons que la périodicité implique que la luminance ait une dépendance en x si $< a_{n+p} a^*_{n-p} >$ n'est pas nul pour $p \neq 0$. L'uniformité du milieu en moyenne dans la cellule primitive implique que le milieu soit en moyenne invariant par translation. Par conséquent la luminance ne doit pas dépendre de x. Dans ce cas, la BRDF diffuse en $y = 0$ et la BTDF diffuse en $y = e$ sont:

$$\rho''_{sca}(\mathbf{u}_n, \mathbf{u}_{inc}) = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \frac{k_0 L}{2\pi} \left(\left\langle |a_n^2| \right\rangle - |\left\langle a_n \right\rangle|^2 \right) \quad \text{(V.33)}$$

$$\tau''_{sca}(\mathbf{u}_n, \mathbf{u}_{inc}) = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \frac{k_0 L}{2\pi} \left(\left\langle |b_n^2| \right\rangle - |\left\langle b_n \right\rangle|^2 \right) \quad \text{(V.34)}$$

Les facteurs de réflexion et de transmission hémisphériques incohérents se déduisent simplement en calculant les expressions (V.11) et (V.12):

$$\rho'_{sca}(\mathbf{u}_{inc}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{Re(\gamma_n)}{\gamma_{inc}} (< |a_n^2| > - |< a_n >|^2) \quad \text{(V.35)}$$

$$\tau'_{sca}(\mathbf{u}_{inc}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{Re(\gamma_n)}{\gamma_{inc}} (< |b_n^2| > - |< b_n >|^2) \quad \text{(V.36)}$$

Nous avons indiqué des sommations sur un nombre infini d'ordre n, alors qu'il suffit de sommer uniquement sur les ordres propagatifs tels que $Im(\gamma_n) = 0$.

La manière dont sont disposés les diffuseurs dans une cellule n'est pas en réalité uniforme comme nous le prétendons au dessus. Nous l'avons montré au chapitre IV. Les diffuseurs sont placés dans la boite de tel sorte qu'ils ne puissent la dépasser. Par conséquent, il existe une bordure tout autour de la cellule ou la probabilité de présence du centre d'une particule est nulle. Pour l'étude du champ cohérent, nous avons pu prendre en compte le rôle de cette bordure et calculer correctement les coefficients de réflexion et de transmission cohérents. Pour le calcul des luminances incohérentes et la comparaison avec le résultat de l'ETR, nous sommes contraint de négliger cet aspect. Toutefois, l'effet de cette bordure est de second ordre dans les cas que nous allons présenter car cette bordure est relativement petite comparée à l'épaisseur et la largeur des systèmes considérés.

V.5 Etude des coefficient de diffusion et d'absorption: comparaison de l'ETR avec une solution électromagnétique exacte

V.5.1 Systèmes étudiés et principe de l'étude

Nous allons considérer le cas de particules de diamètre $D = 0.5\lambda_0$ plongées aléatoirement dans de l'eau absorbante $n_h = 1.33 + i0.02$. Les fractions volumiques sont comprises entre $f = 0$ et $f = 25\%$. Si la matrice ne contient pas de diffuseurs, le libre parcours moyen d'absorption est $l_{abs} = 4\lambda_0$. Pour les simulations numériques, deux indices de particules sont choisis: le cas où $n_p = 1.59$, et le cas où $n_p = 2.21$. Pour fixer les ordres de grandeurs, quand $f = 20\%$, les libres parcours moyens de diffusion sont respectivements de l'ordre de $12\lambda_0$ et $0.9\lambda_0$ pour ces deux indices. Ces libres parcours moyens doivent être comparés à l'épaisseur de la couche $e = 3.8\lambda_0$ (voir Tab.V.5.1). Dans le cas des particules faiblement diffusante $n_p = 1.59$, le milieu est optiquement relativement mince, tandis qu'il est plutôt épais pour le cas des particule d'indice $n_p = 2.21$. Dans le

Régime de diffusion	n_p	$L_{sca}(f = 20\%)$	$L_{abs}(f = 0\%)$	ep
Cas 1: simple	1.59	$12\lambda_0$	$4\lambda_0$	$3.8\lambda_0$
Cas 2: multiple	2.21	$0.9\lambda_0$	$4\lambda_0$	$3.8\lambda_0$

TAB. V.1 – *Comparaison des libres parcours moyen de diffusion et d'absorption par rapport à l'épaisseur de la couche pour les deux cas considérés. Autres caractéristiques des systèmes étudiés:* $n_h = 1.33 + i0.02$ *et* $D = 0.5\lambda_0$

premier cas, la diffusion est donc plutôt majoritairement simple tandis qu'elle est majoritairement multiple dans le second cas. Nous présentons en annexe G le résultat de la BRDF et de la BTDF pour les deux indices de particules obtenues par la méthode électromagnétique. Deux phénomènes cohérents que Roux (1999) et Thibaud (2000) ont mis en évidence pour d'autres paramètres du milieu diffusant sont retrouvés: le trou de la diffusion vers l'avant en régime de diffusion simple et le phénomène de la rétrodiffusion exaltée dans la direction arrière. L'observation de ces effets cohérents prouvent que la diffusion est simple dans le premier cas et multiple dans le second cas.

Nous avons montré au chapitre IV que le coefficient d'extinction pouvait ne pas augmenter avec la fraction volumique de diffuseur quand les diffuseurs sont plongés en milieu absorbant.

Qu'en est -il de l'évolution avec la fraction volumique des coefficients de diffusion et d'absorption?

Le coefficient d'extinction est la somme des coefficients de diffusion et d'absorption. L'étude du champ cohérent permet d'identifier le coefficient d'extinction, mais on ne peut pas distinguer la part de l'absorption et la part de diffusion. Par contre, en étudiant le flux diffusé incohérent, nous pensons pouvoir remonter au coefficient d'absorption. L'idée est la suivante. Nous présentons dans cette partie, une comparaison du bilan énergétique obtenus par les résolutions de l'ETR et des équations de Maxwell[5] sur un ensemble de réalisations pour différentes fractions volumiques. Nous chercherons quels sont les paramètres de l'ETR qui permettent de retrouver le résultat électromagnétique exact. On pourra alors grossièrement évaluer la tendance du coefficient d'absorption avec la fraction volumique.

Comme la méthode d'obtention des paramètres de l'ETR est différente pour les cas de particules d'indices $n_p = 1.59$ et $n_p = 2.21$, nous séparons les résultats et la discussion en deux paragraphes.

V.5.2 Cas de particules faiblement contrastées par rapport au liant

Les paramètres de l'ETR sont calculés par deux approches, d'une part par le modèle de Kuga en diffusion indépendante, et d'autre part par un modèle dit de diffusion dépendante.

Le modèle de Kuga en régime de diffusion indépendant en milieux à pertes est décrit pour le cas 2D dans l'annexe D. Comme il s'agit de l'unique moyen décrit dans la littérature (hormis le modèle de Fardella dont nous avons montré la quasi-équivalence) en milieu absorbant, nous avons choisi de présenter ce résultat bien que nous savons par avance qu'il y a peu de chance que cette méthode fonctionne pour de fortes fractions volumiques.

Pour prendre en compte la diffusion dépendante, nous avons choisi de calculer les paramètres de l'ETR de la manière suivante:

- Le coefficient d'extinction est calculé par le modèle de Keller généralisé en milieu absorbant. Le coefficient d'extinction est correctement évalué parce que nous avons montré au chapitre IV que ce modèle est en excellent accord avec la simulation numérique exacte[6] pour ce type

5. On peut se demander comme West, Gibbs, Tsang, et Fung (1994) si écrire une équation différentielle telle que l'ETR a un sens dans un système aussi petit. Roux *et al.* (2001) ont répondu à la question en montrant qu'il existe un très bon accord entre le résultat donné par le modèle radiatif et le calcul électromagnétique exact pour le cas d'une couche diffusante épaisse de l'ordre de quelques longueurs d'ondes.

6. On parle ici de la méthode exacte d'identification du coefficient d'extinction décrite dans le détail au chapitre IV. A partir des statistiques du champ moyen i.e. les facteurs de réflexion et de transmission cohérents obtenues par

de particule.

- Comme seul le liant est responsable de l'absorption dans le coefficient d'extinction, nous allons supposer que l'on peut obtenir le coefficient de diffusion par la formule de Keller en milieu non-absorbant. Ceci revient a effectuer deux hypothèses. Premièrement, on suppose que l'absorption du liant ait peu d'effet sur le coefficient de diffusion. En d'autres termes, on suppose que le coefficient de diffusion en milieu absorbant peut être calculé par un modèle en milieu non-absorbant. Deuxièmement, on espère que le résultat de Keller en milieu non-absorbant donne une valeur correcte du coefficient de diffusion. Le très bon résultat obtenu en milieu absorbant du coefficient d'extinction nous réconforte dans cette hypothèse.

- Faute de mieux, la fonction de phase est calculée par sa formule en régime de diffusion indépendante avec toutefois la prise en compte de l'effet de l'absorption du liant. Cette formule obtenue en annexe C est:

$$p(\theta) = \frac{2\pi|S_{k_1}(\theta)|^2}{\int_0^{2\pi}|S_{k_1}(\theta)|^2 d\theta} \tag{V.37}$$

  La fonction de phase joue un rôle important sur la répartition des flux diffusés par un élément de volume mésoscopique. Notamment, le libre parcours moyen de transport est lié à l'anisotropie de la fonction de phase. Nous espérons toutefois que l'erreur introduite par son évaluation en régime de diffusion indépendant aura un effet négligeable sur le bilan énergétique globale de la couche.

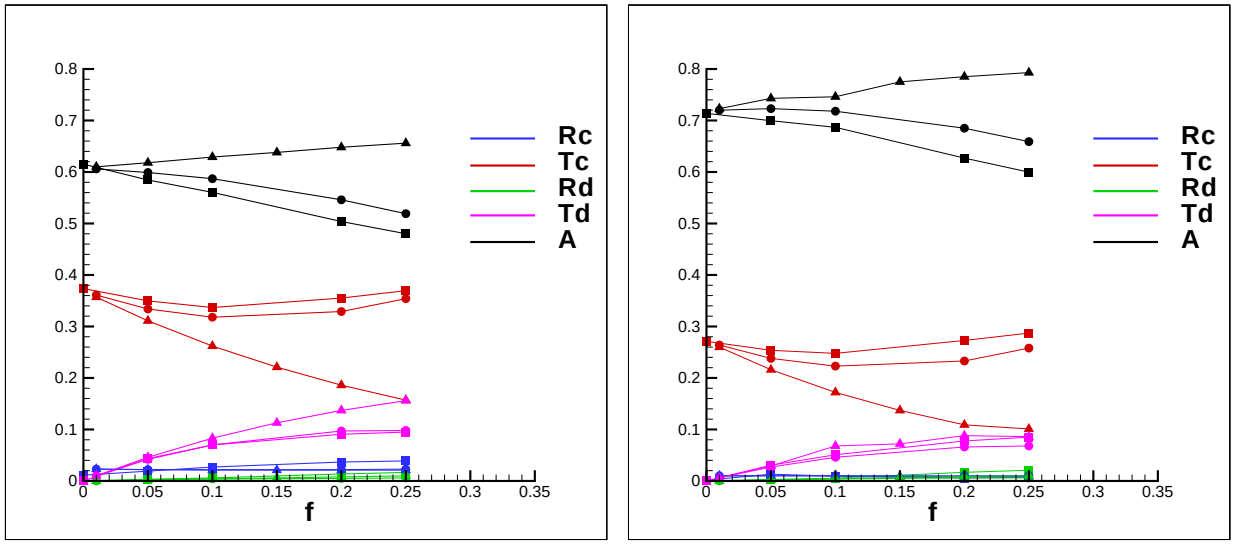
- Les facteurs de réflexion et de transmission aux interfaces supérieures et inférieures pour les luminances diffuses nécessaires aux conditions aux limites de l'ETR et pour obtenir des luminances émergentes, sont calculés sans prendre en compte la modification de l'indice effectif à cause de la présence des diffuseurs. Cet effet cohérent n'est donc pas pris en compte dans notre modèle.

Les résultats des facteurs de réflexion et de transmission cohérents et incohérents de la couche sont présentés Fig.V.6. On voit que les facteurs obtenues obtenus par la solution de l'ETR résolue avec les paramètres de Kuga (symboles triangulaires) s'écartent notablement des résultats obtenuent par la Méthode Electromagnétique (EM) (symboles carrés) pour des fractions volumiques supérieurs à 10%. Ceci est guère étonnant puisque nous savions dès le départ que pour ce système, la diffusion dépendante a un rôle important.

Maintenant, si on compare le résultat de l'ETR avec les paramètres que nous avons décrit (symbole circulaire) pour prendre en compte la diffusion dépendante et le résultat de EM, alors on voit que globalement, les facteurs énergétiques qu'ils soient diffus ou cohérents sont globalement identiques. Nous concluons que la méthode de calcul des paramètres de l'ETR est correcte pour ce milieu.

Notons que l'absorption globale du système chute quand la fraction volumique de particule augmente, alors que l'ETR en régime de diffusion indépendant par le modèle de Kuga prévoit une augmentation. Comme la partie réfléchie est négligeable devant la partie transmise, alors l'absorptivité $A \approx 1 - T_c - T_d$ est pilotée par la partie transmise. Nous savons que pour ce cas, le coefficient d'extinction a tendance à légèrement augmenter puis à diminuer avec la fraction volumique. C'est pour celà que l'on observe que la partie transmise cohérente T_c a tendance à chuter puis à remonter avec la fraction volumique. Le facteur de transmission diffus T_d lui ne fait qu'augmenter avec la fraction volumique de diffuseur. Cela est dû au fait que le coefficient de diffusion augmente avec la fraction volumique. Comme $K_{ext} = K_{sca} + K_{abs}$, cela implique que le coefficient d'absorption diminue avec la fraction volumique, ce qui n'est jamais observé dans le cas

la solution numérique exacte des équations de Maxwell, on remonte à l'indice effectif de la couche diffusante puis au coefficient d'extinction.



(a) $\theta_{inc} = 0^o$ (b) $\theta_{inc} = 62.5^o$

FIG. V.6 – *Facteurs énergétiques en fonction de la fraction volumique de particules dans un milieu hôte absorbant. R_c et T_c désignent respectivement les facteurs de réflexion et de transmission cohérents. R_d et T_d sont respectivement les facteurs de réflexion et de transmission hémisphériques incohérents. Les résultats des deux méthodes sont présentées. -le résultat de la simulation électromagnétique exacte (symboles carrés) -et la solution de l'ETR avec les paramètres du modèle de Kuga en diffusion indépendante (symboles triangulaires) ou avec les paramètres qui tentent de prendre en compte la diffusion dépendante (symboles circulaires).* $n_h = 1.33 + i * 0.02$, $n_p = 1.59$, $D = 0.5\lambda_0$, $e = 3.8\lambda_0$.

d'un milieu hôte non-absorbant contenant des particules absorbantes. Cette chute du coefficient d'absorption avec la fraction volumique peut paraitre évidente, parce que la proportion de matière absorbante chute. La lumière se propage plus facilement dans les diffuseurs non-absorbant que dans la matrice. Mais il ne faut pas oublier qu'il y a dans le même temps un autre effet en compétition. Quand il n'y a pas de diffuseurs, la lumière se propage tout droit. Elle prend le chemin le plus court pour traverser la couche. En présence de particules, les chemins sont déviés, une ou plusieurs fois. La distance parcourue par la lumière avant la sortie du système est donc plus importante, et la probabilité d'absorption augmente.

Pour le système considéré les sections efficace de diffusion ne sont pas très fortes. Les événements de diffusion multiple sont par conséquent peu nombreux, et par conséquent la lumière est peu déviée de sa trajectoire. Dans ce cas, la lumière profite des trous d'absorption que sont les particules et le coefficient d'absorption devrait diminuer avec la fraction volumique. Ainsi pour $f = 25\%$, on voit sur la figure V.6 que le coefficient de transmission globale $T = T_c + T_d$ est plus fort que s'il n'y avait pas de particules dans la couche.

Puisque l'ETR avec les paramètres prenant en compte la diffusion dépendante reproduit correctement le résultat électromagnétique, nous allons supposer que le coefficient de diffusion est correctement calculé par la formule de Keller en milieu non-absorbant. Nous pouvons donc calculer le comportement du coefficient d'absorption en fonction de la fraction volumique car $K_{abs} = K_{ext} - K_{sca}$. Le résultat est présenté sur la figure V.7. On voit que coefficient d'absorption peut diminuer avec la fraction volumique. Pour ce type de particule, le coefficient d'absorption est une fonction quasi-linéaire de la fraction volumique. On peut écrire le coefficient de diffusion sous la

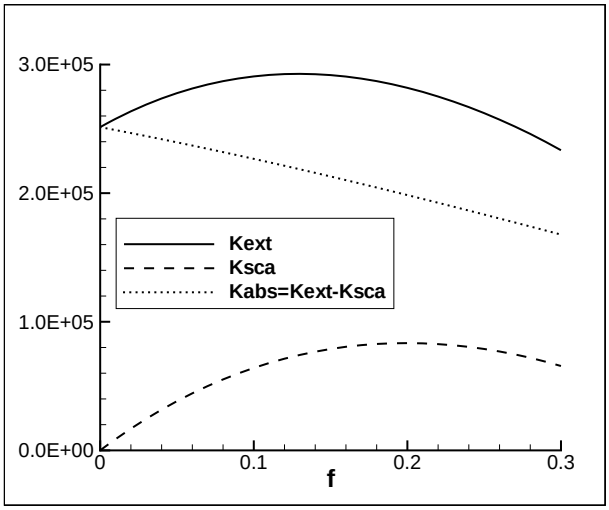


FIG. V.7 – *Evolution des coefficients d'extinction, de diffusion et d'absorption (en m^{-1}) en fonction de la fraction volumique f de particule de diamètre $D = 0.5\lambda_0$ d'indice $n_p = 1.59$ plongées dans un liant absorbant d'indice $n_h = 1.33 + i0.02$. Le coefficient d'extinction est calculé par le modèle de Keller généralisé. Le coefficient de diffusion est calculé par le modèle de Keller avec le même liant hormis l'absorption.*

forme:

$$K_{abs} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_h)(1 - \alpha f) \tag{V.38}$$

où α est un coefficient à déterminer. Rappelons que Kuga pour son modèle, écrivait implicitement $\alpha = 1$. À partir de la courbe de l'absorption Fig.V.7, on trouve par ajustement $\alpha \approx 1.14$. Tant que le rapport d'indice particule sur liant, n'est pas très fort et quand la diffusion est faible devant l'absorption, il est probable que le coefficient α ne s'écarte pas trop de 1.

V.5.3 Cas de particules fortement contrastées par rapport au liant

Considérons un système identique au précédent à la différence que les particules ont un indice $n_p = 2.21$. Rappelons que contrairement au système précédent où le régime de diffusion était essentiellement simple, dans ce cas, la diffusion est fortement multiple. Le résultat de la simulation électromagnétique exact des luminances diffuses présenté en annexe G le prouve. On voit Fig.G.4 pour le cas des fractions volumique de 5% et 20% que la luminance diffusée dans la direction de l'onde incidente est exaltée pratiquement d'un facteur deux. Cette exaltation est due au phénomène de rétrodiffusion cohérente qui ne peut se produire que si la lumière est diffusée de multiples fois. D'autre part, la disparition du trou de diffusion vers l'avant Fig.G.1(b) est aussi liée à la présence de diffusion multiple.

Nous avions déjà étudié au chapitre IV par la méthode exacte le coefficient d'extinction d'une telle collection de particules. Nous savons que le modèle de Keller généralisé en milieu absorbant ne permet pas de retrouver le coefficient d'extinction pour ce système. Nous ne pourrons donc pas utiliser ce modèle pour prévoir le coefficient d'extinction.

Les paramètres de l'ETR seront calculés de la façon suivante:

- Nous allons utiliser, les valeurs exactes obtenues au chapitre IV (par la solution électromagnétique du champ moyen) du coefficient d'extinction pour les différentes fractions volumiques étudiées.

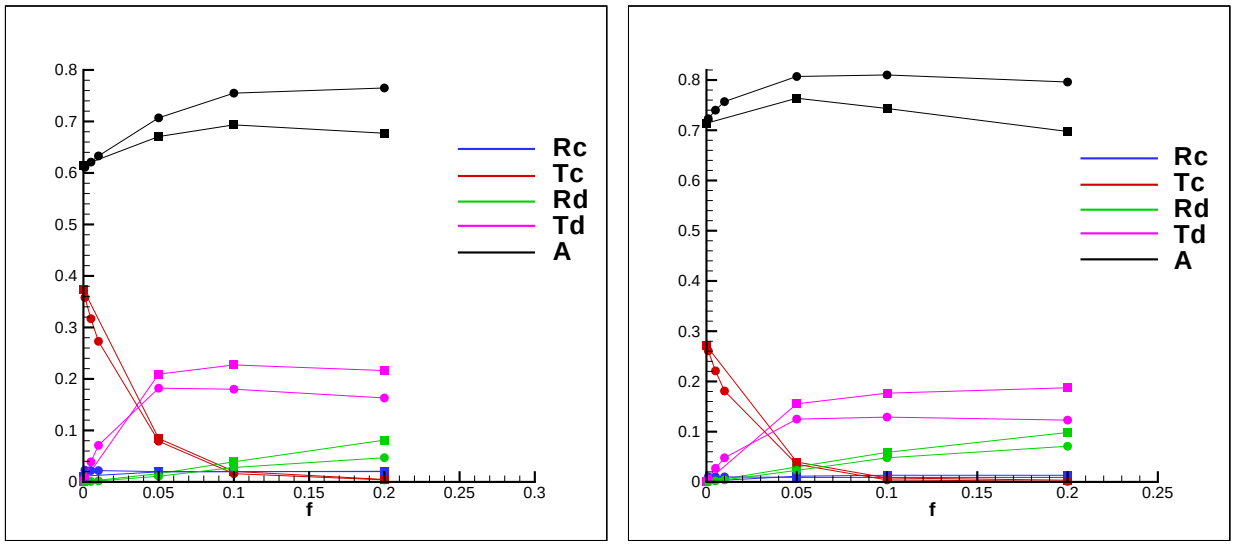
- Le coefficient de diffusion est évaluée par la formule suivante:

$$K_{sca} = K_{ext} - \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_h) \tag{V.39}$$

  Ce qui suppose un découplage entre l'absorption du liant et la diffusion.

- La fonction de phase est calculée comme précédemment par la formule (V.37).

- Enfin la modification des facteurs de Fresnel aux interfaces pour les conditions aux limites due à la modification de l'indice effectif du milieu diffusant n'est pas prise en compte.



(a) $\theta_{inc} = 0^o$ (b) $\theta_{inc} = 62.5^o$

FIG. V.8 – *idem Fig.V.6 sauf diffuseurs plus contrastés par rapport au liant:* $n_p = 2.21$. *Les résultats de la simulation électromagnétique exacte sont présentés par les symboles carrés, tandis que ceux du modèle radiatif avec les paramètres qui tentent de prendre en compte la diffusion dépendante sont présentés par les symboles circulaires.*

Sur la Fig.V.8, on voit qu'un désaccord important apparait entre l'approche radiative et le résultat exacte. Mis à part le coefficient d'extinction, les paramètres de l'ETR sont donc incorrectement calculés.

Comme les particules ont un indice plus important, la modification de l'indice effectif (essentiellement la partie réelle) pour les fortes fraction volumiques joue probablement un rôle. Par exemple pour $f = 20\%$, l'étude du champ cohérent par la solution exacte montre que $Re(n_{eff}) \approx 1.47$. Les facteurs de réflexions spéculaires pour les luminances diffuses dans l'approche radiative sont donc modifiées. En incidence normale, cette modification est peu importante. Par contre près de l'angle de réflexion totale (du milieu diffusant vers l'extérieur), les facteurs sont très différents.

Les facteurs de réflections R_d et de transmission diffus T_d obtenus par la méthode electromagnétique sont globablement plus fort que ceux prévu par l'ETR. Cela implique que le coefficient de diffusion est probablement plus fort que nous le pensions. La formule (V.39) n'est donc pas correcte. Ce qui implique que le coefficient de d'absorption est plus faible que prévu.

Par rapport au cas précédent, le coefficient de R_d commence à jouer un rôle important sur la bilan énergétique. Le coefficient de transmission cohérent T_c devient quant à lui négligeable pour les fractions volumiques supérieures à 10% car le le milieu est optiquement épais. Pour de fortes

fractions volumiques $A \approx 1 - R_d - T_d$. Malgrés le liant absorbant, la proportion de lumière diffusée est relativement importante. Dans le cas où $\theta_{inc} = 62.5^o$ présenté Fig.V.8(b), on peut comparer le cas où $f = 0$ et le cas où $f = 20\%$. Dans le cas sans diffuseur $f = 0$, l'énergie rayonnée est exclusivement cohérente. La proportion d'énergie cohérente réfléchie et transmise est égale à 0.28 (le reste est absorbé). Tandis que dans le cas où $f = 20\%$, l'énergie rayonnée qui n'est pratiquement que sous forme diffuse, est dans une proportion d'environ 0.28. Ce résultat est vraiment étonnant, car cela implique que toute l'énergie cohérente s'est transformée en énergie diffuse. Or, puisque le libre parcours de diffusion est environ 4 fois plus petite que l'épaisseur du système, la diffusion multiple est importante. On s'attendait à une perte plus importante due à la forte accroissement des chemins optiques parcourus par la lumière avant de ressortir. Cela implique que la diminution de matière absorbante joue un rôle très important: la lumière profite des trous d'absorptions que constitue les particules pour se propager plus librement.

Le coefficient de diffusion calculé par la formule (V.39) est sous estimé. Nous avons relancé la résolution de l'ETR avec cette fois ci la formule suivante pour le calcul du coefficient de diffusion.

$$K_{sca} = K_{ext} - \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_h)(1 - f) \tag{V.40}$$

Pour le cas de la fraction volumique $f = 20\%$ à la solution exacte, on voit sur le Tab.V.2 que la formulation (V.40) améliore les résultats.

	R_d	T_d	A
Méthode électromagnétique Exact	0.098	0.187	0.697
ETR avec Eq. (V.39)	0.071	0.123	0.796
ETR avec Eq. (V.40)	0.092	0.159	0.739

TAB. V.2 – $f = 20\%$

V.5.4 Conclusion

Finalement pour les deux contrastes d'indice de particules différents et pour cette taille de particule, le coefficient d'absorption semble correctement calculé par

$$K_{abs} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(n_h)(1 - f) \tag{V.41}$$

Cela implique que dans les systèmes étudiés et pour une fraction volumique suffisante, la lumière sous forme diffuse profite des zones non-absorbantes pour se transporter plus facilement. Mais, on pourrait difficilement prétendre que la formule (V.41) soit générale pour toutes les tailles de particules et tous les rapports d'indices particule sur liant.

V.6 Conclusions

Nous avons présenté dans ce chapitre une comparaison de l'ETR avec une solution électromagnétique exacte. Nous avons décrit dans le détail les deux méthodes utilisées et le moyen de les comparer. Cette comparaison a eu pour but de connaître le comportement du coefficient d'absorption d'un milieu liant absorbant contenant des diffuseurs aléatoirement répartis dans l'espace. Cette étude est complémentaire à l'étude du coefficient d'extinction en milieu absorbant que nous avons mené aux chapitres III et IV bien que nous ne disposions pas cette fois de support théorique rigoureux.

Les fractions volumiques étudiées sont telles que le milieu présente de la diffusion dépendante. D'autre part, le volume de matière non-absorbante chute par la présence des diffuseurs non-absorbant. Nous avons montré que l'énergie transmise par une couche mince absorbante peut

être augmentée par l'ajout de diffuseurs non-absorbants. Cette augmentation est due à la chute du coefficient d'absorption en raison de la présence de particules. Lorsque la fraction volumique est suffisante, la lumière profite des zones non-absorbantes constituées par les particules pour se propager plus facilement. Toutefois, ce phénomène est en compétition avec la diffusion multiple qui a tendance à allonger la distance parcourue par la lumière avant la sortie du système absorbant; ce qui peut avoir pour effet d'augmenter le facteur d'absorption globale du système.

Nous n'avons étudié qu'un seul diamètre de particules pour deux rapports d'indice particule sur liant différents. Bien que la dépendance du coefficient d'absorption avec la fraction volumique donnée par le formule (V.41) soit bien suivie dans les deux cas de calcul, il est difficile de prétendre qu'il s'agit d'une loi générale.

Pour pallier ce manque d'information, il serait intéressant d'entreprendre une étude expérimentale sur une couche diffusante absorbante. Le milieu absorbant pourrait être constitué d'eau mélangé avec un peu de bleu de méthylène pour le rendre absorbant. Les diffuseurs couramment utilisés sont des billes de latex d'indice $n_p = 1.59$ ou des billes de $Ti0_2$ d'indice plus élevé.

Il faudrait pour cela disposer de deux bancs de mesures. L'un aurait pour but la mesure de l'atténuation d'un faisceau cohérent i.e. la mesure du coefficient d'extinction, comme par exemple celui utilisé dans la thèse de Hespel (1999)[7]. L'autre banc mesurerait les flux diffusés réfléchis et transmis comme celui utilisé par Da Silva (2001). L'idéal serait d'étudier le phénomène pour de nombreuses longueurs d'ondes. Des résonances de l'énergie transmise qui dépendent probablement de la taille des particules, de leur indice et de la fraction volumique devraient apparaître. Il faudra ensuite résoudre le problème inverse de la détermination des paramètres de l'ETR. Puisque le coefficient d'extinction est directement mesuré, il s'agirait de déterminer la fonction de phase et le coefficient de diffusion (ou le coefficient d'absorption).

7. Voir aussi Hespel, Mainguy, et Greffet (2001)

Chapitre VI

Modélisation du coefficient d'extinction d'un milieu dense contenant de fortes fractions volumiques de particules sphériques résonantes

VI.1 Introduction

Le problème de la modélisation de la diffusion dépendante, notamment le calcul du coefficient d'extinction d'un milieu contenant de fortes fractions volumiques de diffuseurs sphériques de taille comparable à la longueur d'onde n'est pas un problème complétement résolu. Le rôle des corrélations sur la position des diffuseurs est primordial. Prendre en compte ces phénomènes même numériquement est un défi difficile. La grande majorité des modèles se limite au cas de particules de taille très petite devant la longueur d'onde car cette approximation facilite grandement les calculs. C'est le cas par exemple du modèle quasi-analytique de Keller (1964). Les diffusions multiples entre les proches diffuseurs corrélés augmentent quand les diffuseurs ont de fortes sections efficaces. C'est le cas des diffuseurs en régime de diffusion de Mie et/ou des particules d'indices fortement contrastés par rapport au liant.

Nous proposons dans ce chapitre de concilier ce que nous apprend la théorie de la diffusion multiple pour des objets répartis aléatoirement dans l'espace (Frisch 1968) avec les progrès récents de la méthode numérique appelée matrice des Transfert (ou matrice T). La méthode des matrices T est une méthode numérique capable de calculer les champs diffusés par une petite collection de diffuseurs. Nous comptons utiliser ce résultat pour calculer le coefficient d'extinction dans des milieux où les corrélations entre les paires de diffuseurs ont un rôle non-négligeable.

VI.1.1 Retour à la théorie de la diffusion multiple d'ondes électromagnétiques

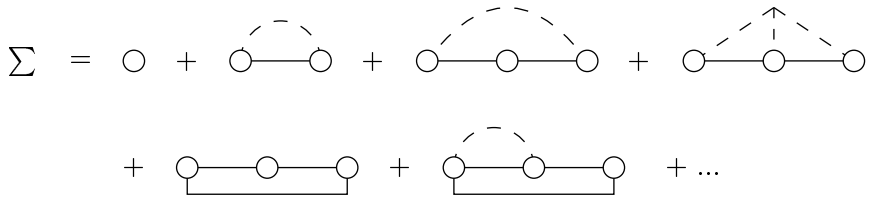
Nous avons vu au chapitre II que le coefficient d'extinction s'obtient en prenant la partie imaginaire de l'indice effectif. Pour un milieu diffusant statistiquement homogène, l'indice effectif du milieu diffusant caractérise la propagation du champ moyen. Comme le champ moyen est le champ cohérent, la propagation de la phase et la décroissance d'une onde collimatée dans un milieu diffusant sont connues dès lors que l'indice effectif est évalué. A partir de l'équation de Dyson, on peut relier l'indice effectif n_{eff} et le nombre d'onde effectif k_{eff} à l'opérateur de masse

par la formule suivante:

$$n_{eff} = \frac{k_{eff}}{k_0} \text{ avec } k_{eff}^2 = k_1^2 + \widetilde{\Sigma}\,(k_{eff}) \tag{VI.1}$$

où $k_1 = n_1 \frac{\omega}{c}$ est le nombre d'onde dans le milieu hôte; n_1 est l'indice du milieu hôte.

Nous avons vu aussi pour un ensemble de N diffuseurs identiques aléatoirement répartis dans un volume V avec une condition de non-interpénétrabilité des diffuseurs, que l'opérateur de masse peut se développer sous la forme suivante:



Opérateur de masse (VI.2)

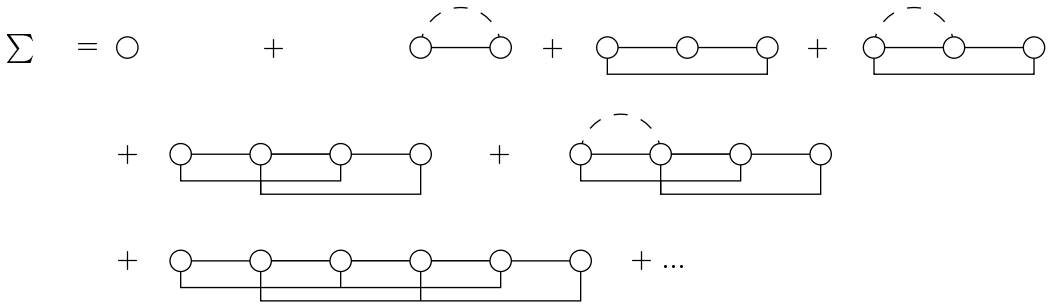
Cette décomposition perturbative est due au développement en essaim de la densité de probabilité. Nous renvoyons le lecteur au chapitre II pour les notations.

Cet opérateur n'est calculable ni analytiquement, ni numériquement à notre connaissance. Il faut faire des approximations.

VI.1.2 Approximation des diffuseurs corrélés par paires

Nous avons exploité les approximations de Foldy et de Keller aux chapitres III, IV et V qui consistent à ne garder respectivement que le premier terme et les premier et second termes de l'opérateur de masse. Nous allons dans ce chapitre décrire comment aller plus loin.

Il est possible de calculer numériquement dans un temps très court (quelques minutes au maximum sur une station actuelle) l'opérateur de masse sous l'approximation suivante:



Approximation de second ordre l'opérateur de masse.

Nous avons conservé par rapport à l'opérateur de masse complet entier, uniquement les termes qui ne concernent que une et deux particules. Ce sont les termes proportionnels à $\frac{N}{V}$ et $\frac{N(N-1)}{V^2} \approx (\frac{N}{V})^2$. Cet opérateur contient des diagrammes appelés par van Tiggelen et Lagendijk (1994) des diagrammes de diffusions multiples récurrentes. Cette approximation des diffuseurs corrélés par paires négligent les corrélations concernant plus de deux diffuseurs, mais prend en compte toutefois toutes les diffusions multiples récurrentes entre les paires de diffuseurs qui n'étaient pas pris en compte dans l'approximation des faibles diffuseurs (l'approximation de Keller). Pour de fortes fractions volumiques, nous pensons par conséquent pouvoir traiter le cas de diffuseurs de sections efficaces beaucoup plus important que ne le permet l'approximation de Keller. Nous pouvons également prendre en compte l'aspect vectoriel de la diffusion.

On peut décomposer l'opérateur de masse en deux termes:

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\Sigma}}(\mathbf{k}) = \frac{N}{V}\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_1(\mathbf{k}) + \frac{N(N-1)}{V^2}\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_2(\mathbf{k}) \tag{VI.3}$$

où l'opérateur $\mathbf{t_1}$ est l'opérateur de diffusion qui relie le champ diffusé par une seule particule au champ incident; c'est aussi le premier diagramme de l'opérateur de masse. L'opérateur $\mathbf{t_2}$ est défini par cette dernière relation.

On pose $n = \frac{N}{V}$, le nombre de particules par unité de volume. L'opérateur de masse devient alors:

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\Sigma}}(\mathbf{k}) = n\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_1(\mathbf{k}) + n^2\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_2(\mathbf{k}) \tag{VI.4}$$

Nous savons calculer $\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_1(\mathbf{k})$ puisqu'il est relié à la matrice de diffusion de Mie d'une particule sphérique par la relation:

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_1(\mathbf{k}) = \frac{i4\pi S_1(0)}{k_1} \tag{VI.5}$$

Nous exploiterons la méthode numérique appelée matrice de Transfert (ou encore matrice T) appliqué à un système composé d'une paire de sphères. Nous allons montrer que $\mathbf{t}_2$ peut être relié au résultat numérique de la diffusion par deux sphères.

VI.2 Lien entre la diffusion par une collection de particules et la diffusion par une paire de particules

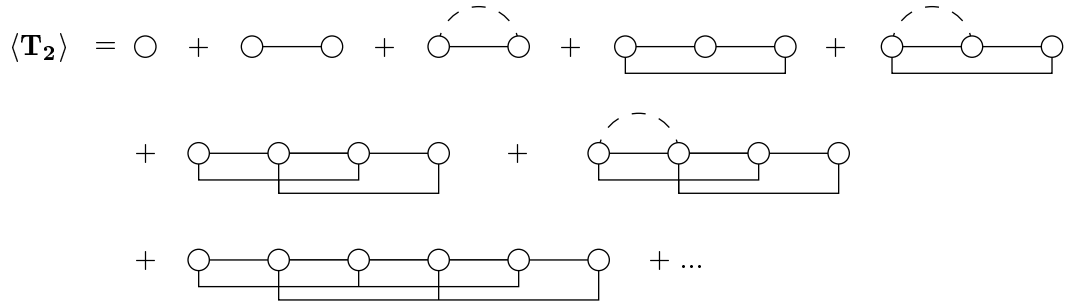
VI.2.1 Définition de l'opérateur $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$

Considérons un système de volume V constitué uniquement de deux particules. Nous introduisons un opérateur que nous définissons comme étant le cas particulier de l'opérateur $\langle \mathbf{T} \rangle$ (celui de la diffusion multiple) avec cette fois $N = 2$. Cet opérateur relie le champ diffusé au champ incident par la relation:

$$\langle \mathbf{E} \rangle = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G}_1 \langle \mathbf{T}_2 \rangle \mathbf{E}_{inc} \tag{VI.6}$$

Le signe <> indique qu'il s'agit du résultat moyenné sur toutes les positions possibles des deux particules sur tout le volume V. On impose que cette moyenne soit pondérée par la densité de probabilité jointe à une particule $P_1 = \frac{1}{V}$ et deux particules $P_2 = \frac{1}{V^2}(1 + g_2)$ dans un ensemble de N particules dans un volume V. La fonction g_2 est la fonction de corrélation de paire présentée au chapitre II pour un ensemble de N particules dans un volume V. Par conséquent la moyenne est définie comme si les deux particules considérées étaient disposées aléatoirement dans un milieu contenant N particules.

La représentation diagrammatique de $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ est celle de $\langle \mathbf{T} \rangle$ retranchée de tous les diagrammes mettant en jeu plus de deux diffuseurs identiques.



Opérateur $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$

Comme, il n'y a que deux particules, devant les diagrammes sont cachés les facteurs $\frac{2}{V}$ pour le premier et $\frac{2(2-1)}{V^2}$ pour les autres.

VI.2.2 Lien entre $\langle \mathbf{t}_2 \rangle$ et $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$

L'opérateur $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ et l'opérateur de masse sous l'approximation du second ordre ont une forme similaire à quelques différences près. Notamment $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ contient l'opérateur $\mathbf{0-0}$ qui n'est pas présent dans l'opérateur de masse. Cet opérateur que nous appelons l'opérateur de diffusion double non-corrélé devra par conséquent être retranché.

L'opérateur $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ peut s'exprimer en fonction de $\mathbf{t}_1$, $\mathbf{t}_2$ et $\mathbf{0-0}$ simplement en observant les formes diagrammatiques de $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$, $\mathbf{t}_1$, et $\mathbf{t}_2$:

$$<\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_2> (\mathbf{k}) = \frac{2}{V} \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_1 (\mathbf{k}) + 0 \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{-}} 0 (\mathbf{k}) + \frac{2(2-1)}{V^2} \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_2 (\mathbf{k}) \tag{VI.7}$$

Remarquons que pour que la relation entre $< \mathbf{T}_2 >$ et $\mathbf{t}_2$ existe, parce que nous avons défini la moyenne de $\mathbf{T}_2$ comme si les deux particules étaient placées dans un milieu à N particules. Le lien n'aurait pu être établi si on ne prenait pas en compte le rôle des autres particules sur les positions possible d'une paire de particules.

Nous montrons dans l'annexe B que l'opérateur $\mathbf{0-0}$ peut se mettre sous une forme analytique et s'exprime en fonction de la matrice de diffusion d'une sphère de Mie dans la direction avant pour un nombre d'onde incident k_1. Cette relation est (cas où $N = 2$):

$$0 - 0 (\mathbf{k}) = \frac{2}{V^2} \frac{1}{k^2 - k_1^2} \left(\frac{i4\pi S_1(0)}{k_1} \right)^2 \tag{VI.8}$$

Par ailleurs, nous allons montrer comment on obtient numériquement l'opérateur $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ à partir du résultat de la diffusion par une paire de particules. Finalement, la seule inconnue du problème est $\mathbf{t}_2$ que l'on obtient à partir de (VI.7).

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_2 (\mathbf{k}) = \frac{V^2 <\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_2> (\mathbf{k})}{2} - V \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}_1 (\mathbf{k}) - 0 \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{-}} 0 (\mathbf{k}) \tag{VI.9}$$

VI.2.3 Comment obtenir $\langle \mathbf{T}_2 \rangle$ à partir du résultat de la diffusion d'une paire de particules?

Définition de $\mathbf{T}_2$ et $S_{2,\boldsymbol{\rho},k_1}(\theta)$

Supposons que le centre d'une paire de particule soit placé à l'origine d'un repère cartésien. Soit $\boldsymbol{\rho}$ le vecteur reliant le centre des deux particules. Soit $\mathbf{T}_{2,\boldsymbol{\rho},0}$ l'opérateur qui relie pour un ρ fixé, le champ diffusé du champ incident par la relation suivante:

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \int \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G_1}} (\mathbf{r} - \mathbf{r}') \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}_{2,\boldsymbol{\rho},0} (\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}'') d^3\mathbf{r}' d^3\mathbf{r}'' \tag{VI.10}$$

L'indice 0 précise que la paire de particule est centrée à l'origine d'un référentiel.

Pour la même paire de particule, soit $S_{2,\boldsymbol{\rho},k_1}(\theta)$ la matrice de diffusion qui relie le champ diffusé en champ lointain avec le champ incident dans le repère de Bohren et Huffman (1983) par la relation suivante:

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \frac{e^{ik_1(r-z)}}{-ik_1 r} S_{2,\boldsymbol{\rho}}(\theta) \mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}) \tag{VI.11}$$

où les champs incident et diffusés s'expriment dans le plan de diffusion. La méthode des matrices T est utilisée pour obtenir numériquement $S_{2,\boldsymbol{\rho}}(\theta)$ pour chaque $\boldsymbol{\rho}$.

Comme pour le cas d'un diffuseur sphérique, on peut montrer que $\mathbf{T}_{2,\boldsymbol{\rho},0}$ et $S_{2,\boldsymbol{\rho}}$ sont reliés par la relation:

$$\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_{2,\boldsymbol{\rho},0}(\mathbf{k_1}) = i4\pi\frac{S_{2,\boldsymbol{\rho}}(0)}{k_1} \tag{VI.12}$$

La matrice $S_{2,\boldsymbol{\rho}}(0)$ est une quantité calculable exactement numériquement par la méthode de la matrice des transfert que nous décrivons à la fin de ce chapitre.

Moyennes

Dans un système de coordonnées sphériques, le vecteur $\boldsymbol{\rho}$ peut être écrit comme:

$$\boldsymbol{\rho} = (\rho, \theta_p, \phi_p) \tag{VI.13}$$

L'opérateur $\mathbf{T}_{2,\boldsymbol{\rho},\mathbf{R}}$ d'une paire de particules centrée en $\mathbf{R}$ est relié à l'opérateur centré en 0 par la relation:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}_{2,\boldsymbol{\rho},\mathbf{R}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') = \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}_{2,\boldsymbol{\rho},0}(\mathbf{r}' - \mathbf{R}, \mathbf{r}'' - \mathbf{R}) \tag{VI.14}$$

Afin d'obtenir $\langle\mathbf{T}_2\rangle$, nous devons moyenner sur toutes les orientations (θ_p, ϕ_p), sur toutes les distances $|\boldsymbol{\rho}|$ inter-centres via la fonction de corrélation de paires de particules, et sur toutes les positions des centres des particules. Cette moyenne s'écrit:

$$<\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}_2>(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') = \int \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}_{2,\boldsymbol{\rho},\mathbf{R}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'')P_2(\rho)d^3\boldsymbol{\rho}d^3\mathbf{R} \tag{VI.15}$$

avec

$$P_2(\rho) = \frac{1}{V^2}\left[1 + g_2(\rho)\right] \tag{VI.16}$$

où $g_2(\rho)$ est la fonction de corrélation de paire. On sait que:

$$<\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_2>(\mathbf{k}', \mathbf{k}'') = \int <\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}_2>(\mathbf{r}', \mathbf{r}'')e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}'}e^{i\mathbf{k}''\mathbf{r}''}d^3\mathbf{r}'d^3\mathbf{r}'' \tag{VI.17}$$

Par injection des équations (VI.14), (VI.15) et (VI.16) dans (VI.17) et (VI.12) on obtient [1]:

$$\boxed{<\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_2>(\mathbf{k}_1) = \frac{i4\pi}{k_1} < S_2 > (0)} \tag{VI.18}$$

avec

$$\boxed{< S_2 > (0) = \frac{1}{V^2}\int S_{2,\boldsymbol{\rho}}(0)[1 + g_2(\rho)]\rho^2 sin(\theta_p)d\rho d\theta_p d\phi_p} \tag{VI.19}$$

Nous avons donc obtenu une expression de la moyenne de $\mathbf{T}_2$ en fonction de quantités que nous savons calculer, i.e. la moyenne de la matrice S_2 sur toutes les orientations et sur toutes les distances pondérées par $[1 + g_2(\rho)]$.

1. On a aussi utilisé la relation suivante due à la moyenne sur la variable $\mathbf{R}$ (les centres des particules).

$$<\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_2>(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = (2\pi)^3\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') <\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{T}}}_2>(\mathbf{k})$$

Cela est la conséquence de l'invariance par translation du milieu en moyenne.

VI.2.4 Expression du nombre d'onde effectif et du coefficient d'extinction

Nous pouvons maintenant exprimer le nombre d'onde effectif uniquement en fonction de quantités connues. Si on injecte dans la relation entre le nombre d'onde effectif et l'opérateur de masse (VI.1) les relations (VI.4) et (VI.8), et si on utilise (VI.5), (VI.12) et (VI.18), on obtient une équation pour le nombre d'onde effectif:

$$k_{eff}^2 - k_1^2 = n\frac{i4\pi}{k_1}S_1(0) + n^2\left[\frac{V^2}{2}\frac{i4\pi}{k_1}\left\langle S_2 - 2S_1\right\rangle(0) - \left(\frac{i4\pi}{k_1}S_1(0)\right)^2\frac{1}{k_{eff}^2 - k_1^2}\right] \tag{VI.20}$$

On multiplie (VI.20) par $k_{eff}^2 - k_1^2$ pour obtenir une équation polynomiale d'ordre 2:

$$\left(k_{eff}^2 - k_1^2\right)^2 + B\left(k_{eff}^2 - k_1^2\right) + C = 0 \tag{VI.21}$$

avec

$$B = -ni4\pi\frac{S_1(0)}{k_1} - n^2\frac{V^2}{2}\frac{i4\pi}{k_1}\left\langle S_2 - 2S_1\right\rangle(0) \text{ et } C = n^2\left(i4\pi\frac{S_1(0)}{k_1}\right)^2 \tag{VI.22}$$

Alors la solution est:

$$\boxed{k_{eff}^2 = k_1^2 - B \pm \sqrt{B^2 - 4C} \text{ et } K_{ext} = 2Im(k_{eff})} \tag{VI.23}$$

VI.2.5 Calcul de $V^2\left\langle S_2 - 2S_1\right\rangle(0)$

Il est intéressant de connaître la valeur asymptotique de $S_{2,\rho}(\theta)$ quand $|\rho|$ tend vers l'infini. La propagation du premier diffuseur vers le second est piloté par le tenseur de Green qui décroit vers ρ. Alors quand $k_0|\rho|$ est grand, les diffusions multiples inter-particules peuvent être négligées. Ainsi le résultat est la somme de la diffusion simple de chaque diffuseur.

$$\lim_{|\rho|\to+\infty} S_{2,\rho}(\theta) = 2S_1(\theta) \tag{VI.24}$$

Comme nous devons calculer la différence entre S_2 et S_1, nous allons utiliser cette propriété pour réduire les temps de calcul.

Calculons la moyenne de $S_{2,\rho}(0) - 2S_1(0)$

$$\begin{aligned}
\left\langle S_2 - 2S_1\right\rangle(0) &= \frac{1}{V^2}\int_0^\infty\int_0^\pi\int_0^{2\pi}[S_{2,\rho}(0) - 2S_1(0)][1 + g_2(|\rho|)]|\rho|^2 d|\rho|d\theta_p sin(\theta_p)d\phi_p \\
&= \frac{1}{V^2}\int_0^{L_1}\int_0^\pi\int_0^{2\pi}[S_{2,\rho}(0) - 2S_1(0)][1 + g_2(|\rho|)]|\rho|^2 d|\rho|d\theta_p sin(\theta_p)d\phi_p \\
&+ \frac{1}{V^2}\int_{L_1}^\infty\int_0^\pi\int_0^{2\pi}[S_{2,\rho}(0) - 2S_1(0)][1 + g_2(|\rho|)]|\rho|^2 d|\rho|d\theta_p sin(\theta_p)d\phi_p
\end{aligned} \tag{VI.25}$$

Si on prend L_1 suffisamment grand pour que l'on puisse négliger les diffusions multiples inter-particules pour $\rho > L_1$, alors l'intégrale de L_1 à l'infini est négligeable. De plus, dans le modèle de N sphères dures disposés aléatoirement avec un rayon a, la fonction de corrélation de paire $[1+g_2(|\rho|)] = 0$ si $|\rho| < 2a$, alors nous devons calculer $S_{2,\rho}(0) - 2S_1(0)$ seulement pour $2a < \rho < L_1$:

$$V^2\left\langle S_2 - 2S_1\right\rangle(0) = \int_{2a}^{L_1}\int_0^\pi\int_0^{2\pi}[S_{2,\rho}(0) - 2S_1(0)][1 + g_2(|\rho|)]|\rho|^2 d|\rho|d\theta_p sin(\theta_p)d\phi_p \tag{VI.26}$$

VI.3 Diffusion par une paire de particules sphériques

VI.3.1 Calcul par la méthode de la matrice de transfert T

Waterman (1971) est à l'origine d'une méthode numérique appelée méthode de la matrice **T** (à ne pas confondre avec l'opérateur **T** de la théorie de la diffusion multiple) permettant le calcul de la diffusion par un ensemble d'objet de forme et de taille quelconque. Quel que soit le système étudié, le champ incident et le champ diffusé au point **r** est développé sur une base d'harmoniques sphériques [2]:

$$\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{\infty}\sum_{m=-n}^{n}\left[a_{mn}Rg\mathbf{M}_{mn}(k\mathbf{r}) + b_{mn}Rg\mathbf{N}_{mn}(k\mathbf{r})\right] \quad \text{(VI.27)}$$

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{\infty}\sum_{m=-n}^{n}\left[p_{mn}\mathbf{M}_{mn}(k\mathbf{r}) + q_{mn}\mathbf{N}_{mn}(k\mathbf{r})\right] \quad \text{(VI.28)}$$

où les $\mathbf{M}_{mn}$ et $\mathbf{N}_{mn}$ sont des fonctions vectorielles sphériques dont on trouvera les expressions détaillées dans plusieurs articles dont Mishchenko (1990) ou encore Mishchenko (1991); Rg spécifie qu'il s'agit de la version régulière de l'harmonique sphérique.

On peut montrer que la relation entre les coefficients du champ diffusé et ceux du champ incident est linéaire.

$$p_{mn} = \sum_{n'=1}^{\infty}\sum_{m'=-n'}^{n}\left[T^{11}_{mnm'n'}a_{m'n'} + T^{12}_{mnm'n'}b_{m'n'}\right] \quad \text{(VI.29)}$$

$$q_{mn} = \sum_{n'=1}^{\infty}\sum_{m'=-n'}^{n}\left[T^{21}_{mnm'n'}a_{m'n'} + T^{22}_{mnm'n'}b_{m'n'}\right] \quad \text{(VI.30)}$$

Les $T^{ij}_{mnm'n'}$ sont les éléments de la matrice **T**. Cette relation peut alors se contracter par la relation:

$$\begin{pmatrix}\mathbf{p}\\ \mathbf{q}\end{pmatrix} = \mathbf{T}\begin{pmatrix}\mathbf{a}\\ \mathbf{b}\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}\mathbf{T}^{11} & \mathbf{T}^{21}\\ \mathbf{T}^{21} & \mathbf{T}^{22}\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\mathbf{a}\\ \mathbf{b}\end{pmatrix} \quad \text{(VI.31)}$$

Pour un système de forme et d'indice donné, et pour un référentiel spécifié, les éléments de la matrice T sont uniques. La méthode générale pour le calcul de T est donnée par Waterman (1971), mais quand le diffuseur est axisymmétrique les formules se simplifient considérablement.

Michael Mishchenko de la NASA Goddard Institute for Space Studies et Daniel Mackowski de l'université d'Auburn ont développé un code de calcul Fortran actuellement disponible sur le site internet de http://www.giss.nasa.gov/. Ce code résoud le problème le problème électromagnétique de la diffusion par deux sphères par le formalisme de la matrice **T** pour une distance inter-centre fixée, mais moyenné sur toute les orientations. Cette moyenne est analytique, ce qui rend le code très performant en terme de temps de calcul. Les entrées du code sont les rayons des deux sphères, leurs indices et la distance inter-centre. Le code renvoie en sortie les sections efficaces de diffusion C_{sca} et d'extinction C_{ext}, ainsi que la matrice de Mueller $\mathbf{F}(\theta)$ (4×4) de la fonction de phase reliant les vecteurs de Stokes de l'onde diffusée $\mathbf{I}_{sca}$ en champ lointain des deux sphères aux vecteurs de Stockes incident $\mathbf{I}_{inc}$ par la relation (voir par exemple le livre de van de Hulst (1981) pour les définitions précisent):

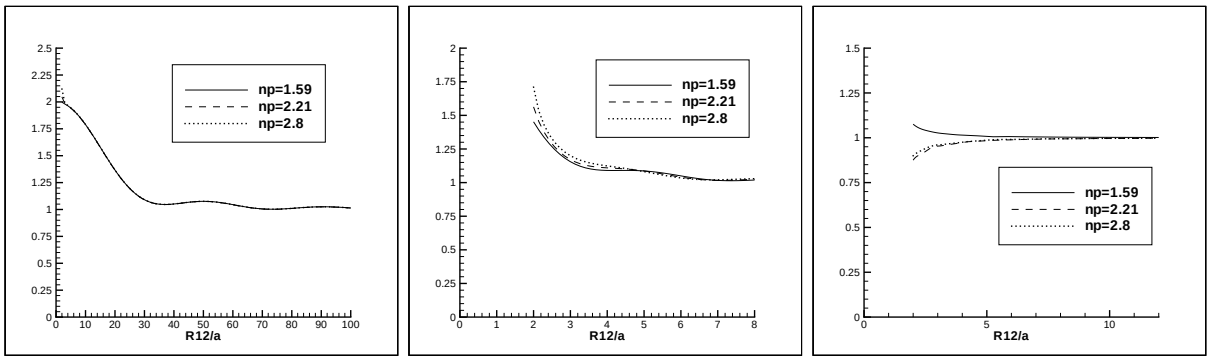
$$\begin{pmatrix}I_{sca}\\ Q_{sca}\\ U_{sca}\\ V_{sca}\end{pmatrix} = \frac{C_{sca}}{4\pi R^2}\mathbf{F}(\Theta)\begin{pmatrix}I_{inc}\\ Q_{inc}\\ U_{inc}\\ V_{inc}\end{pmatrix} \quad \text{(VI.32)}$$

2. Voir Tsang, Kong, et Shin (1984), Tsang, Kong, et Shin (1985), Tsang, Kong, Ding, et Ao (2001), ou encore Mishchenko (1990).

Où Θ est la différence entre l'angle de diffusion et l'angle d'incidence. Les éléments de la matrice de la fonction de phases sont intéressant à analyser pour se rendre compte des effets de diffusions multiples entre les deux sphères. On peut par exemple étudier la rétrodiffusion cohérente (Mishchenko 1996) ou encore la dépolarisation des champs diffusés (Mishchenko, Mackowski, et Travis 1995). Notons que le code a été validé par des comparaisons expérimentales (Mishchenko et Mackowski 1996).

VI.3.2 Section efficace d'une paire de diffuseurs sphériques

Pour juger d'une part de l'importance des interférences entre les champs diffusés par les deux sphères dans la direction avant, et d'autre part du rôle de la diffusion multiple entre les deux sphères nous procédons comme suit. On peut comparer la section efficace de diffusion des deux sphères que l'on note $C_{ext,2}(|\rho|)$ moyennée sur toutes les orientations pour une distance inter-centre $|\rho|$ fixée, par rapport à la section efficace de deux sphères de Mie supposées indépendantes (on somme deux fois la section efficace d'une sphère seule de façon incohérente) noté $2C_{ext,1}$.



(a) $a = 0.01\lambda_0$ (b) $a = 0.1\lambda_0$ (c) $a = 0.5\lambda_0$

FIG. VI.1 – $\frac{C_{ext,2}}{2C_{ext,1}}$ *en fonction de la distance intercentre des particules* $|\rho|$ *notée* $R12$ *sur les figures. L'indice du milieu hôte est* $n_h = 1.33$. *Les résultats sont présentés sur chaque figure pour 3 indices de particules différentes* $n_p = 1.59$, $n_p = 2.21$ *et* $n_p = 2.8$

En analysant les courbes Fig.VI.1, ou le rapport $\frac{C_{ext,2}}{2C_{ext,1}}$ est tracé pour différents rayons de particules on se rend tout de suite compte si la diffusion multiple joue un rôle ou non.

Par exemple, prenons le cas des plus petites particules $a = 0.01\lambda_0$ Fig.VI.1(a). On voit que le rapport représenté ne dépend pas de l'indice des particules alors que l'on aurait pu s'attendre à une augmentation de la diffusion multiple pour les particules les plus contrastées. Cela implique que la diffusion multiple n'a dans ce cas aucun rôle. La raison est que les sections efficaces des particules sont trop petites pour qu'il y ait diffusion multiple. Par contre les interférences entre les champs rayonnés en champ lointain indépendamment de l'un et de l'autre sont très fortes puisque la section efficace est doublée quand les sphères sont collées par rapport à deux sphères indépendantes. Les ondes interfèrent constructivement quand les diffuseurs sont très proches, car le déphasage entre les ondes rayonnées par chacun des diffuseurs est très petits.

Pour le cas des particules de rayon $a = 0.1\lambda_0$ Fig.VI.1(b), une différentiation des sections efficaces apparaît entre les différents indices de particules pour $|\rho| \approx 2a$: c'est le signe que la diffusion multiple joue ici un rôle. D'autre part, les champs rayonnés en champ lointain par les deux particules interfèrent aussi assez fortement car la distance interparticule reste relativement faible.

Parmi les cas présentés, c'est pour $a = 0.5\lambda_0$ Fig.VI.1(c) que les sections efficaces sont les plus fortes. Dans ce cas, la diffusion multiple joue un rôle non-négligeable pour des distances inter-centres $|\rho|$ pas trop fortes. Par contre l'interférence des champs rayonnés en champ lointain commence à être plus faible: la moyenne sur les orientations quand les diffuseurs sont éloignés à tendance à rendre les ondes diffusées en moyenne incohérentes entre elles.

Pour conclure, il semble que la diffusion multiple ne puisse jouer un rôle sur la section efficace d'extinction que si les diffuseurs sont à la fois suffisamment forts et près l'un de l'autre.

VI.3.3 Lien entre la matrice de transfert et la matrice S de diffusion vers l'avant pour une paire de particules sphérique

Pour notre problème, ce n'est pas de la fonction de phase dont nous avons besoin, mais seulement de la valeur de matrice de diffusion $\mathbf{S}_{2,\rho}$ de Bohren et Huffman qui relie les champs diffusés au champ indident par la relation (VI.12).

Le code de Michael Mishchenko et de Daniel Mackowski ne donne pas directement en sortie la matrice de diffusion $\mathbf{S}_{2,\rho}$. Il donne la section efficace d'extinction et la matrice de Mueller de la fonction de phase moyennées sur toutes les orientations (θ, ϕ). Mais la sortie qui nous intéresse est le résultat de la moyenne de la matrice de diffusion dans la direction avant.

La relation entre la matrice de diffusion $\mathbf{S}_2(\theta_{sca}, \phi_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{inc})$ et les éléments de la matrice $\mathbf{T}$ est une expression complexe donnée dans l'article de Tsang, Kong, et Shin (1984); on la trouvera aussi dans le livre de Tsang, Kong, et Ding (2000). Mishchenko (1990) reprend cette formule pour le calcul de la diffusion par des particules non-sphériques mais dont l'orientation est aléatoire. Pour le cas où l'objet diffuseur est une paire de particules sphériques dont l'orientation est aléatoire, la moyenne sur toutes les orientations des deux sphères impose une symétrie sphérique de l'objet diffuseur moyen. Par conséquent, comme pour le cas d'un diffuseur sphérique, la matrice $\mathbf{S_2}$ est diagonale et les éléments diagonaux sont forcément identiques dans la direction avant. Dans cette partie, on note par $<>$ la moyenne sur l'ensemble des orientations pour une distance inter-centre $|\rho|$ fixée. Il obtient une relation du type:

$$\langle S_{2,\rho}(\theta_{sca}, \phi_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{inc})\rangle = i\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{m=-n}^{n}(-i)\frac{2n+1}{n(n+1)}e^{im(\phi_{sca}-\phi_{inc})}\begin{pmatrix} A_{11} & A_{21} \\ A_{12} & A_{22}\end{pmatrix} \quad \text{(VI.33)}$$

où les A_{ij} s'expriment en fonction de la moyenne des éléments de la matrice T et de fonctions qui dépendent des angles $(\theta_{sca}, \phi_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{inc})$;

Nous avons appliqué ces relations pour le cas particulier de la direction avant. Après un long calcul sans difficultés, on obtient finalement:

$$\langle S_{2,\rho}\rangle(0) = \frac{1}{2}\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{m=-n}^{n}\left(T^{11}_{m,n,m,n} + T^{22}_{m,n,m,n}\right) \quad \text{(VI.34)}$$

Où les éléments de la matrice de transfert sont calculés pour une orientation quelconque de la paire de particule.

Maintenant que nous savons comment calculer la matrice de diffusion $< S_2, \rho >$ d'une paire de particules moyennée sur les orientations pour une distance fixée à partir du calcul de la matrice de transfert, il ne reste plus, pour obtenir $< S_2 > (0)$ qu'à moyenner ce résultat en évaluant l'expression (VI.26) via la fonction de distribution de paire $[1 + g_2]$ pour des distances inter-centre de $2a$ à L_1. L_1 doit valoir au minimum quelques rayons de particules et au moins une longueur d'onde.

Pour le calcul de g_2, on pourra utiliser la fonction de Percus-Yevick, ou mieux, le résultat d'un modèle statistique. Ces modèles sont présentés au chapitre II. Nous avons maintenant tous les éléments pour évaluer la formule du nombre d'onde effectif (VI.23) et enfin celle du coefficient d'extinction.

VI.4 Perspectives d'utilisation du modèle

VI.4.1 Comparaison avec le modèle de Keller

Cas des diffuseurs faibles

Rappelons que sous l'approximation de Keller, on peut calculer une expression analytique du nombre d'onde effectif uniquement pour le cas de diffuseurs petits devant la longueur d'onde et sous l'approximation scalaire. Toutefois les bonnes comparaisons du coefficient d'extinction par la formule approchée avec certains résultats expérimentaux et des études numérique (pour des particules de faible section efficace et pour des particules de taille proche de la longueur d'onde), montre que la formule analytique de Keller a probablement un domaine de validité plus étendu en terme de taille de particule.

Quand les diffuseurs sont faibles, les diagrammes récurrents sont négligeables et l'approximation de Keller devrait être valable. La méthode numérique que nous avons exposé devrait correctement calculer le coefficient d'extinction pour n'importe quelle taille de particules. Il serait donc intéressant de comparer la méthode numérique exposée avec la formule analytique de Keller afin de connaître son domaine de validité en terme de taille de particules.

Cas des diffuseurs forts

Jusqu'à quel contraste d'indice, peut t-on considérer que les diffuseurs sont suffisamment faibles pour que l'approximation de Keller soit valableΓ On pourra traiter le cas des petits diffuseurs en résonances plasmons. Pour une fraction volumique donnée, le cas des petits diffuseurs de fortes sections efficaces est intéressant car la faible distance moyenne inter-diffuseurs devrait favoriser le rôle des diffusions multiples récurrentes de paires de diffuseurs. Les diffuseurs de tailles plus importante de fort contraste d'indice dans un régime de diffusion proche des résonances de Mie est aussi un cas d'étude important.

VI.4.2 Comparaison avec l'Approximation Quasi-Cristalline (QCA)

Le modèle appelé QCA est un modèle très utilisé par l'équipe de Tsang L. *et al.* Les codes développées semblent efficaces pour le cas des diffuseurs petits devant la longueur d'onde. Il serait important de comparer notre modèle numérique au modèle QCA pour différente tailles de particules.

VI.5 Conclusion

De nombreuses études portent sur le calcul de la section efficace d'extinction et de diffusion d'une paire de particules. On aurait tort de croire que l'on peut directement exploiter ce résultat (même moyenné sur les orientations et les distances inter-centres) pour calculer le coefficient d'extinction d'un ensemble de particules disposées aléatoirement dans l'espace simplement en écrivant:

$$K_{ext} = nC_{ext} \tag{VI.35}$$

où n est le nombre de particules par unité de volume. La formule (VI.35) n'est valable que pour un ensemble de diffuseurs indépendants qui ont pour forme particulière un agrégat de deux sphères.

Pour répondre à ce problème, nous avons exploité ce que nous apprend la théorie perturbative de la diffusion multiple par des objets répartis aléatoirement dans l'espace, notamment sur l'étude du champ cohérent (ou champ moyen). Cette théorie donne un moyen formel pour obtenir l'indice effectif en terme de diagrammes. Ces diagrammes représentent des évènements de diffusion multiple corrélés ou non qui contribuent à modifier l'indice effectif. Comme le coefficient d'extinction

s'obtient en prenant la partie imaginaire de l'indice effectif, la prise en compte des corrélations sur la position des diffuseurs devrait rendre compte des effets de diffusion dépendante observés pour de fortes fractions volumiques de diffuseurs. Nous présentons l'approximation des diffuseurs corrélés par paires qui négligent les corrélations concernant plus de deux diffuseurs, mais qui prend en compte toutefois toutes les diffusions multiples récurrentes au sein d'une paire de diffuseurs, ce qui n'était pris en compte dans l'approximation des faibles diffuseurs (l'approximation de Keller). Nous pensons par conséquent pouvoir traiter le cas de diffuseurs fortement diffusant et corrélés. Le calcul de ces diagrammes ne peut se faire que numériquement.

La méthode de la matrice T (ou matrice de transfert) est idéale pour calculer la diffusion par une paire de particules sphériques. Notre tache a été de relier ce résultat aux diagrammes contenus dans l'opérateur de masse sous l'approximation des diffuseurs corrélés par paires.

La méthode numérique présentée a pour originalité d'exploiter le résultat de la diffusion par une paire de particule pour en déduire le coefficient d'extinction par un ensemble de sphères dures. Il devrait être possible de poursuivre le raisonnement pour prendre en compte les corrélations à trois particules en utilisant le résultat de la matrice T d'un système de trois diffuseurs.

Nous n'avons pas étudié comment obtenir le coefficient de diffusion. A cette fin, on pourrait chercher à obtenir l'opérateur Intensité de l'équation de Bethe-Salper, sous l'approximation des diffuseurs corrélés par paires puis relier cet opérateur au résultat de la matrice T.

Chapitre VII

Couplage incohérent d'une diffusion surface-volume

VII.1 Introduction

Le problème de la diffusion en volume et de la diffusion en surface sont deux problèmes complexes qui ont fait l'objet de nombreuses publications. Ces deux problèmes possèdent des solutions approximatives satisfaisantes dans de nombreux cas pratiques, mais sont toutefois généralement séparément étudiés. Pourtant, l'étude les systèmes diffusant à la fois en volume et en surface sont d'un grand intérêt pour évaluer les propriétés optiques des peintures diffusantes ou des tissus biologiques ou encore pour des applications en télédétection dans le domaine micro-onde. Le propos de notre étude est le calcul numérique de la distribution bidirectionnelle de la réflexion (BRDF) d'une couche rugueuse contenant des diffuseurs diélectriques par un modèle rapide.

Sentenac *et al.* (2002) ont récemment montré que pour une forte fraction volumique de petites particules placées en dessous d'une surface rugueuse, le couplage est dû principalement à la modification de l'indice effectif de la couche à cause des diffuseurs. Si on prend en compte ce phénomène, la diffusion peut être obtenue par la simple addition des contributions indépendantes de la surface et du volume. Dans notre travail, le milieu diffusant est un ensemble de particules dont le paramètre de taille est proche des résonances de Mie. La fraction volumique est telle que les corrélations entre les particules peuvent être négligées. De plus, on suppose qu'il n'y a pas de corrélation entre la surface rugueuse et la distribution des particules. C'est une approximation raisonnable pour de faibles concentrations. La BRDF est calculée par la résolution de l'équation (phénoménologique) de transfert radiatif scalaire dans le milieu diffusant par la méthode des ordonnées discrètes. L'effet de la rugosité est pris en compte lors de l'écriture des conditions aux limites sur les interfaces rugueuses (Fung et Chen 1981). Nous utilisons le modèle de Kirchhoff (Ulaby *et al.* 1982) pour décrire la diffusion par les surfaces rugueuses.

Il nous est apparu important d'étudier les effets du couplage entre la diffusion en volume et la diffusion de surface dus aux processus de diffusion multiple. On parlera de couplage incohérent. La prise en compte de ce couplage alourdit considérablement les calculs. Il est donc utile d'étudier dans quelles conditions on peut négliger ce couplage. On pourra alors simplement additionner les deux résultats pour obtenir le résultat de la diffusion par une couche chargée et rugueuse. Pour décrire le couplage incohérent, nous considérons le cas d'une couche contenant des particules diffusantes mais sans rugosité. Un deuxième cas est l'étude d'une couche rugueuse sur un volume homogène effectif. On trouve que la somme des deux résultats est très proche de la solution du système couplé pour le cas des surfaces rugueuses de pentes inférieure à 0.2 . Nous présentons différents cas concrets et analysons les différentes contributions du couplage de la diffusion en volume avec la diffusion en surface.

VII.1.1 Système étudié et objectifs

Le système idéal (Fig.VII.1) que l'on étudie est une couche diélectrique reposant sur un substrat métallique (parfaitement conducteur). Cette couche contient des billes diélectriques identiques parfaitement sphériques plongées dans un milieu hôte. Les paramètres du milieu diffusant en volume sont les suivants:

- indice du milieu hôte: n_2
- indice des diffuseurs: n_p
- rayon des diffuseurs: $\frac{a}{\lambda_0}$
- fraction volumique des particules : f
- épaisseur de la couche : $\frac{e}{\lambda_0}$

La surface d'entrée est rugueuse avec une statistique homogène et isotrope. Les caractéristiques de l'interface sont supposées connues:

- contraste d'indice: n_2/n_1
- hauteur quadratique moyenne: $\frac{\sigma}{\lambda_0}$
- longueur de corrélation: $\frac{\tau_c}{\lambda_0}$
- statistiques de la surface.

La hauteur ou l'écart au plan moyen de la surface est supposé à statistique gaussienne avec une hauteur quadratique moyenne connue σ. De même la fonction de corrélation est supposée de forme gaussienne avec une longueur de corrélation τ_c connue. L'objectif de notre problème est le

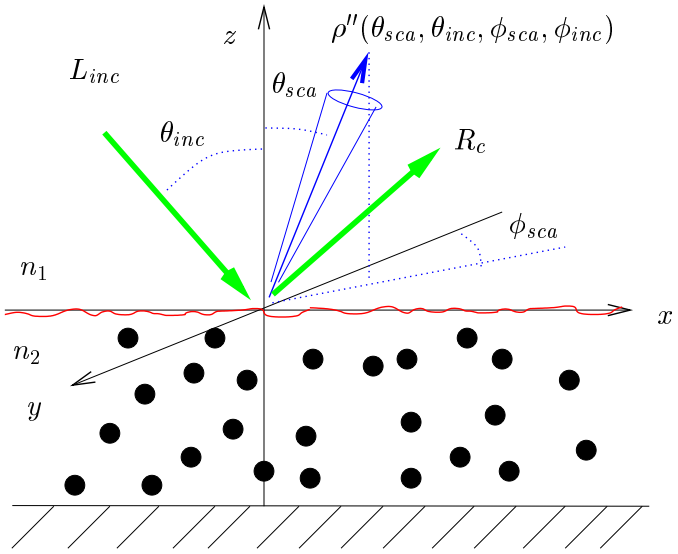


FIG. VII.1 – *Grandeur recherchée: Fonction de Distribution de la Réflectivité Bidirectionnelle (BRDF) diffuse et le facteur de réflexion spéculaire* R_c

calcul de la distribution du flux rayonné par la peinture connaissant l'angle de l'onde incidente par rapport à la normale à la peinture. On obtient ainsi la BRDF (Bidirectionnal Reflection Distribution Function) que l'on notera $\rho''(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca}, \phi_{inc})$ où θ_{inc} et θ_{sca} sont respectivement l'angle d'incidence et l'angle de diffusion par rapport à la normale; ϕ_{inc} et ϕ_{sca} sont respectivement les angles azimutaux d'incidence et de diffusion. On note l'exposant $''$ pour rappeler que cette fonction dépend de la direction d'incidence et la direction de sortie.

VII.1.2 État de l'art

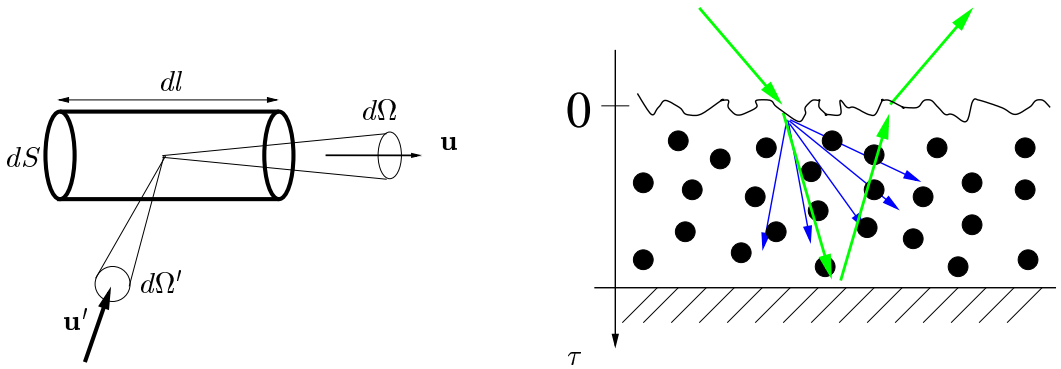
A notre connaissance, la première étude numérique d'un système diffusant à la fois en surface et en volume a été réalisé par Fung et Chen (1981). Il s'agit d'un modèle de transfert radiatif polarisé appliqué au cas d'une couche diffusante dans le régime de Rayleigh (petites particules devant la longueur d'onde de l'éclairement). Cette méthode nécessite une modélisation de la diffusion par une interface rugueuse en réflexion et en transmission. Afin de réduire les temps de calcul par le couplage radiatif polarisé, une analyse mathématiques des matrices de Mueller d'une surface rugueuse est présenté par Lam et Ishimaru (1993). Le modèle du couplage que l'on décrit ici en détail est en principe identique à ceci près que nous avons effectué une approximation supplémentaire: le problème est traité de manière scalaire.

Pak *et al.* (1993) calculent les flux rétrodiffusés d'un milieu diffusant à la fois en volume et en surface. Le résultat est obtenu en résolvant exactement les équations de Maxwell par la méthode des éléments finis. Ils comparent le résultat du système complet à la somme des résultats des problèmes découplés obtenus par la même méthode électromagnétique. Le système étudié est une couche rugueuse périodique dans une direction et est invariante selon la direction orthogonale. Le système est donc à deux dimensions. La surface rugueuse a une hauteur quadratique moyenne de $\sigma = 0.2\lambda_0$ ou $\sigma = 0.4\lambda_0$ pour une longueur de corrélation $\tau_c = 1.5\lambda$. Dans la zone située en dessous de la rugosité sont placés aléatoirement des petits diffuseurs rectangulaires de petites dimensions ($0.2\lambda_0 * 0.28\lambda_0$ à 13.1% ou $0.05\lambda_0 * 0.06\lambda_0$ à 6.2%). Ils montrent qu'il y a une différence entre le résultat de la somme incohérente de la diffusion de surface et en volume et le résultat exact donné par la méthode des éléments finis dans les directions ou la diffusion en volume et en surface ont une contribution équivalente. Sentenac *et al.* (2002) montrent que si on calcule la diffusion surfacique seule en prenant le substrat qui aurait pour indice l'indice effectif dû aux diffuseurs volumiques et que l'on ajoute la contribution incohérente de la diffusion en volume seule, alors on retrouve le résultat exact.

Pour des applications en télédection, il est important de connaître la quantité d'énergie rétro-diffusée dans la direction exacte de la source. Un point important de l'article de Pak *et al.* (1993) est que pour le cas d'une hauteur quadratique moyenne de $0.2\lambda_0$, à fort angle d'incidence, la partie rétro-diffusée est fortement influencée par la diffusion en volume, tandis qu'en incidence normale, la rugosité de la surface est prépondérante. Pour le cas d'une surface rugueuse avec une hauteur quadratique moyenne de $0.4\lambda_0$, à fort angle d'incidence (supérieur à 50 degrés) la diffusion volumique semble fortement influencée par la rugosité. On peut se demander si cet effet peut être retrouvé par un couplage incohérent.

Le cas des films rugueux contenant des petites particules devant la longueur d'onde a été étudié théoriquement par Calvo-Perez (1999) par la Mean Field Theory (MFT). Il s'agit d'un modèle électromagnétique qui a l'avantage de prendre en compte les effets de corrélation de la position des particules, les phénomènes de champ proche particules-particules et particules-interface. Dans ce modèle la diffusion par la surface ou par des particules est traitée comme une hétérogénéité de l'indice par rapport à un milieu moyen. Chaque inhomogénéité voit le champ moyen calculé par la théorie des fortes fluctuations (Tamoikin 1971; Tsang *et al.* 1985) puis rayonne une fois dans ce milieu moyen. Ce modèle ne permet donc pas de prendre en compte les évènements de diffusions multiple. Le milieu aléatoire ne doit par ailleurs pas trop s'écarter du régime d'homogénéisation. Il est donc limité à des hétérogénéités de faible contraste d'indice(< 2) et de petite taille. Le point fort dans ce modèle est qu'il n'y pas de limitation sur les pentes moyennes des surfaces rugueuses.

Parmi les autres travaux, on peut citer les modèles perturbatifs de Elson (1984) et Bilgen et Rose (1994) respectivement pour des ondes électromagnétiques et acoustiques.



(a) Bilan d'énergie dans un volume $dSdl$

(b) Sources: ondes planes collimatées et ondes diffusées par l'interface

FIG. VII.2 – *Approche radiative*

VII.2 Modélisation: approche radiative incohérente

Nous avons introduit au chapitre I l'Equation de Transfert Radiatif (ETR). Cette équation décrit les processus de transport de la lumière dans le volume diffusant. Il s'agit d'un bilan sur le flux d'énergie directionnel dans la direction $\mathbf{u}$ dans un volume élementaire $dSdl$ moyen (Fig.VII.2(a)). Ce bilan d'énergie doit être effectué partout dans le milieu diffusant et dans toutes les directions de l'espace. Cet élément de volume est un élément de taille mésoscopique. C'est à dire à une échelle située entre l'échelle microscopique des diffuseurs et l'échelle macroscopique de la peinture. Le gain d'un facteur d'échelle comparé à l'approche électromagnétique explique la rapidité de ce modèle.

La source de rayonnement est une onde plane incidente monochromatique qui peut être générée par exemple par un laser (Fig.VII.2b). Une partie de cette onde cohérente se propage dans le milieu diffusant et s'atténue progressivement pour augmenter les luminances diffuses, puis remonte après réflexion spéculaire sur l'interface inférieure. Dans la fonction source, on doit aussi prendre en compte l'onde diffusée dès l'entrée du volume diffusant à cause de l'interface rugueuse.

Enfin pour résoudre l'ETR pour notre système sachant que la source de diffusion est une onde plane collimatée, il faut correctement décrire les conditions aux limites pour les luminances au niveau des interfaces rugueuses. Ces conditions aux limites sont décrites en détail dans l'annexe H. La résolution de l'ETR pour une couche diffusante avec interfaces rugueuses par la méthode des ordonnées discrètes est également exposée dans cette annexe.

VII.2.1 Paramètres volumiques

La luminance $L(\mathbf{r},\mathbf{u})$ au point $\mathbf{r}$ dans la direction $\mathbf{u}$ satisfait à l'ETR (voir I):

$$\frac{dL(\mathbf{r},\mathbf{u})}{dl} = -K_{ext}L(\mathbf{r},\mathbf{u}) + \frac{K_{sca}}{4\pi}\int_{4\pi} L(\mathbf{r},\mathbf{u}')P(\mathbf{u}',\mathbf{u})d\Omega' \qquad \text{(VII.1)}$$

où K_{ext} et K_{sca} sont respectivement les coefficients d'extinction et de diffusion et $P(\mathbf{u}',\mathbf{u})$ est la fonction de phase d'un élément de volume moyen contenant une petite assemblée de particules (voir I). Les paramètres du milieu moyen sont calculés par l'approximation de la diffusion indépendante:

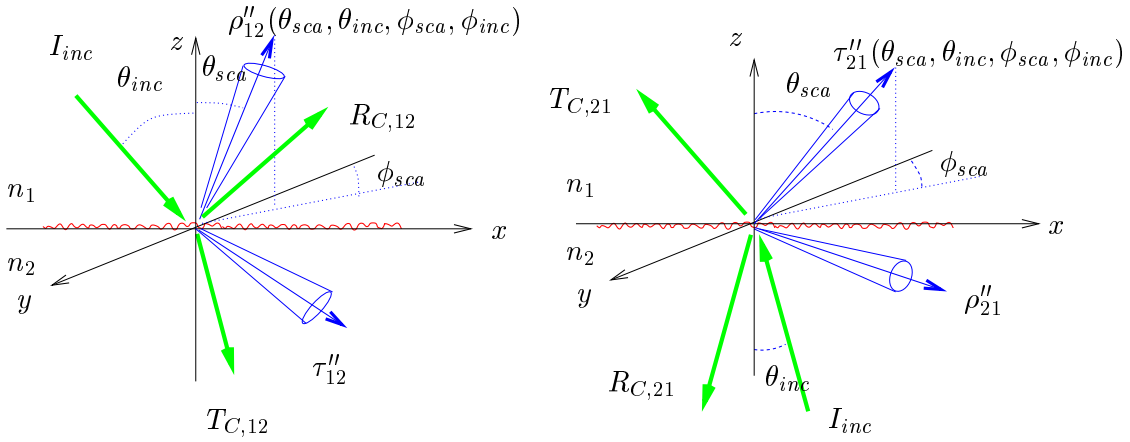
$$K_{sca} = \frac{f}{4/3\pi a^3}C_{sca} \text{ et } K_{ext} = \frac{f}{4/3\pi a^3}C_{ext} \qquad \text{(VII.2)}$$

où les C_{sca} et C_{ext} sont les sections efficaces de diffusion et d'extinction d'une sphère isolée que l'on calcule par la théorie de Mie (Bohren et Huffman 1983). La fonction de phase d'entrée de l'ETR est celle d'une particule isolée. L'approximation de la diffusion indépendante est raisonnable si les fractions volumiques ne sont pas trop fortes.

VII.2.2 Paramètres surfaciques

Les conditions aux limites vont dépendre de la réponse radiative des interfaces rugueuses. Nous avons besoin d'un modèle capable de calculer la diffusion par une interface rugueuse. Les paramètres cohérents et incohérents de l'interface à déterminer sont très nombreux:

- $R_{C12}(\theta)$ et $R_{C21}(\theta)$ les facteurs de réflexion cohérents respectivement pour une onde incidente se propageant du milieu 1 vers le milieu 2 puis du milieu 2 vers le milieu 1.
- $T_{C12}(\theta)$ et $T_{C21}(\theta)$ les facteurs de transmission cohérents respectivement pour une onde incidente se propageant du milieu 1 vers le milieu 2 puis du milieu 2 vers le milieu 1.
- $\rho''_{12}(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca}, \phi_{inc})$ et $\rho''_{21}(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca}, \phi_{inc})$. Ce sont les fonctions bidirectionnelles de la distribution du flux diffus réfléchi respectivement pour une onde incidente se propageant du milieu 1 vers le milieu 2 puis du milieu 2 vers le milieu 1.
- $\tau''_{12}(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca}, \phi_{inc})$ et $\tau''_{21}(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca}, \phi_{inc})$ les fonctions bidirectionnelle de la distribution du flux diffus transmis respectivement pour une onde incidente se propageant du milieu 1 vers le milieu 2 puis du milieu 2 vers le milieu 1.



(a) Cas d'une luminance incidente se propageant du milieu 1 vers le milieu 2

(b) Cas d'une luminance incidente se propageant du milieu 2 vers le milieu 1

FIG. VII.3 – *BRDF et BTDF diffuses et facteurs cohérents d'une interface rugueuse.*

Les facteurs énergétiques cohérents sont déduits des facteurs de réflexion et de transmission sur l'interface pour l'amplitude moyenne (sur un ensemble de réalisations de surface).

$$R_C = \left| \frac{< E_r >}{< E_{inc} >} \right|^2 \tag{VII.3}$$

Dans le cas d'une interface plane, cette expression se réduit à:

$$R_C = \left| \frac{E_r}{E_{inc}} \right|^2 \tag{VII.4}$$

Dans le cas d'une surface à statistique isotrope, la BRDF et la BTDF dépendent de l'angle d'incidence, de l'angle de diffusion et de la différence entre les deux angles azimutaux de diffusion $\phi_{sca} - \phi_{inc}$. Afin de tabuler ces quatres fonctions pour une interface rugueuse particulière en un temps acceptable, il est préférable que le modèle choisi soit très rapide. Si on discrétise ces angles de manière suffisante, on obtient des tableaux à stocker de plusieurs dizaines de méga octets. Ces données devront de plus (voir annexe H) être traitées.

VII.2.3 Modèles rapides pour la BRDF et la BTDF d'une interface rugueuse

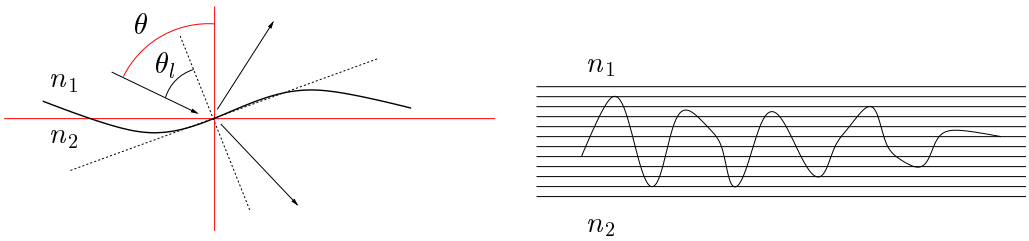
Nous pouvons citer quatre modèles avec leur domaine de validité du plus rapide au moins rapide à calculer numériquement que nous pourrions utiliser pour évaluer la réflexion et la transmission diffuse d'une interface rugueuse:

- le modèle perturbatif (Agarwal 1977) valable pour des rugosités telles que $\sigma < \frac{\lambda}{20}$ et $\tau_c > \sigma$. L'origine du modèle perturbatif est antérieure à l'article de Agarwal (1977), mais nous citons cet article car il est le premier à l'exprimer à partir du théorème d'extinction qui lui permet d'obtenir de nombreux résultats originaux. C'est le modèle idéal que l'on peut utiliser pour calculer le champ diffusé en réflexion et en transmission dans le cas des faibles rugosités que la surface soit métallique ou diélectrique. Il permet par exemple pour le cas du métal de prendre en compte les effets des plasmons de surfaces (les ondes de plasmas générées par le mouvement des électrons libres à la surface d'un métal rugueux ou d'un réseau métallique) et aussi la nature vectorielle des ondes électromagnétiques. Comme l'expression du champ diffusé est analytique et explicite, le calcul numérique est extrêmement rapide.

- le modèle de Kirchhoff (Ulaby, Moore, et Fung 1982) est valable pour des rugosités telles que $\sigma < \frac{\lambda}{3}$ et $\tau_c > 1\lambda$. Cette approximation est basée sur l'approximation des plans tangents. Le facteur de réflexion (et de transmission) local en un point particulier de la surface est supposé être celui d'un plan infini tangent à la surface en ce point (voir Fig.VII.4(a)). Fung et Eom (1981) sont les premiers à notre connaissance à avoir publié les expressions des champs diffusés, réfléchis et transmis par une interface rugueuse sous l'approximation de Kirchhoff.

- la Mean Field Theory (MFT) valable pour des rugosités telles que (Calvo-Perez, Sentenac, et Greffet 1999) $\sigma < \frac{\lambda}{2}$, $\frac{n_2}{n_1} < 2$. Le principe de la MFT appliqué à une interface rugueuse peut se résumer en plusieurs étapes. La surface rugueuse est vue comme un milieu hétérogène en volume. La surface est découpée en de nombreuses couches parallèles (Fig.VII.4(b)). Dans chacune de ces couches est évaluée par la théorie des fortes fluctuations la permittivité effective dans la limite du régime d'homogénéisation. On obtient alors un empilement de couches homogènes dont les indices effectifs passent de l'indice n_1 au dessus de la surface à l'indice n_2 en dessous de l'interface. La fonction de Green moyenne de cet empilement est ensuite calculée. Puis chaque point de l'espace est un élément de taille dipolaire éclairé par le champ effectif dans la couche considérée. Que l'indice en ce point soit n_1 ou n_2, l'indice contraste avec le milieu effectif et rayonne dans ce milieu jusqu'au point d'observation.

- La Small Slope Approximation (SSA) (Voronovich 1985) $\frac{\sigma}{\tau_c} < 0.3$. est une approche alternative qui combine l'approximation des plans tangents et le développement perturbatif des champs. Il existe différents ordres d'approximation de 0 à 2 de cette méthode (Soubret 2001). Une récente comparaison (Soriano, Guerin, et Saillard 2002) entre l'approximation de Kirchhoff et la SSA à l'ordre 0 avec un résultat électromagnétique exact montre que un fort interêt de la SSA par rapport au modèle de Kirchhoff dans le cas d'une statistique de surface du type océanne.



(a) Approximation du plan tangent. θ est l'angle d'incidence par rapport à la surface moyenne. θ_l est l'angle local pour une pente particulière.

(b) Pour le modèle de la MFT, un empilement de couches d'indice effectif formant un gradiant d'indice de n_1 jusqu'à n_2 est calculé.

FIG. VII.4 – *Différentes approches pour décrire la diffusion par une interface rugueuse*

Le modèle de Kirchhoff n'est pas analytique sans l'ajout d'approximations supplémentaires. Dans le livre de Ulaby *et al.* (1982), on en trouvera deux types:

- l'approximation dite "scalaire" de faibles pentes (pour $\sigma/\tau_c < 0.25$). Malgré son appellation "scalaire", il s'agit d'une version vectorielle du modèle scalaire formulée par Beckmann et Spizzichino (1963) mathématiquement plus simple. L'approximation des faibles pentes permet le calcul perturbatif du facteur de réflexion et de transmission de Fresnel local θ_l (défini par le plan tangent à la surface au point considéré de l'interface) (voir Fig.VII.4(a)) autour de l'angle d'incidence θ normal à la surface moyenne.

$$r(\theta_l) = r(\theta) + \frac{dr(\theta)}{d\theta}(\theta)(\theta_l - \theta) \tag{VII.5}$$

- l'approximation dite de la phase stationnaire valable pour des hauteurs quadratiques moyennes σ suffisamment fortes telles que les facteurs de réflexion et de transmission spéculaires soient négligeables. Il faut donc aussi que la longueur de corrélation soit suffisamment grande pour que les pentes ne dépassent pas 0.4. L'approximation de la phase stationnaire estime que la majeure partie diffusée dans une direction d'observation est due à la réflexion (ou à la transmission) de l'ensemble des pentes de la surface rugueuse qui sont orientées et réfléchissent de manière spéculaire dans la direction d'observation. En d'autres termes, chaque facette réfléchit ou transmet la lumière dans une direction unique et l'angle de diffusion est donnée par la loi de la réflexion de Snell-Descartes.

Les modèles de Kirchhoff doivent être corrigés par une fonction d'ombrage pour les angles rasants incidents et diffus. La fonction d'ombrage que nous avons programmée est celle de Wagner (1966) utilisée par Ishimaru et Chen (1990). Nous avons validé les codes de diffusion de Kirchhoff par une vérification de la conservation de l'énergie et en comparant les diagrammes de diffusions obtenus avec ceux prévus par la MFT en transmission et avec des mesures expérimentales en réflexion réalisées par Calvo-Perez (1999).

VII.2.4 Validité du couplage incohérent surface-volume

Les modèles de diffusion de surface calculent la BRDF et la BTDF de l'interface en champ lointain (fig. VII.5). Le résultat de la BRDF et la BTDF de l'interface n'est donc valable qu'à partir d'une distance d'environ une longueur d'onde de l'interface. Cette contrainte n'est pas avantageuse pour le couplage. Le rayonnement vu par chaque diffuseur proche de l'interface sera par conséquent mal calculé. Une autre difficulté apparaît pour les particules situées près de l'interface.

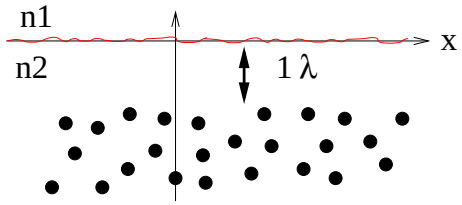


FIG. VII.5 – *Particules en champ lointain*

La position aléatoire de ces particules sera affectée par la rugosité de l'interface. Ce phénomène sera d'autant plus important si les particules sont petites devant la longueur de corrélation et la hauteur quadratique moyenne de la surface ou si la fraction volumique de diffuseur est importante.

Pour les peintures diffusantes, on peut négliger la corrélation induite sur la position des particules par l'interface car les particules sont assez grandes devant les longueurs caractéristiques de la rugosité. De plus, pour une faible fraction volumique, il y a en moyenne assez peu de particules en champ proche de l'interface rugueuse. Ainsi le couplage sera *a priori* meilleur pour de faibles fractions volumiques.

Un autre point important négligé dans cette approche est la polarisation des rayonnement mis en jeu. Bien que l'on cherche la réponse du système diffusant à une onde incidente dépolarisée, un processus de diffusion simple modifie généralement l'état de polarisation du faisceau incident. Par contre Roux (1999) a montré que les multiples processus de diffusion ont tendance à dépolariser le ondes diffusées. Ainsi si le système que nous étudions diffuse en moyenne de multiple fois c'est à dire pour un système de forte épaisseur optique, on peut espérer que l'approximation scalaire soit une bonne approximation. S'il apparaît nécessaire de prendre en compte la polarisation, l'adaptation de la méthode des ordonnées discrètes est possible sans modification de la structure générale du code. On trouvera de nombreuses informations sur la résolution de l'ETR polarisée par la méthode des ordonnées discrètes dans l'ouvrage de Tsang *et al.* (2000).

La résolution de l'ETR par la méthode des ordonnées discrètes pose des difficultés numériques pour les conditions aux limites sur une paroi rugueuse qui provient de l'imprécision de modèles de diffusion par une surface rugueuse notamment en incidence rasante. La méthode des ordonnées discrètes associée à une quadrature de Gauss impose que l'on doit calculer les BRDF21 entre autres pour des angles d'incidence et de diffusion très rasants. C'est à dire pour des angles où les modèles de diffusion sont incorrects. Toutefois les flux associés à ces directions rasantes sont très faibles comparés aux autres angles et contribuent peu au bilan énergétique.

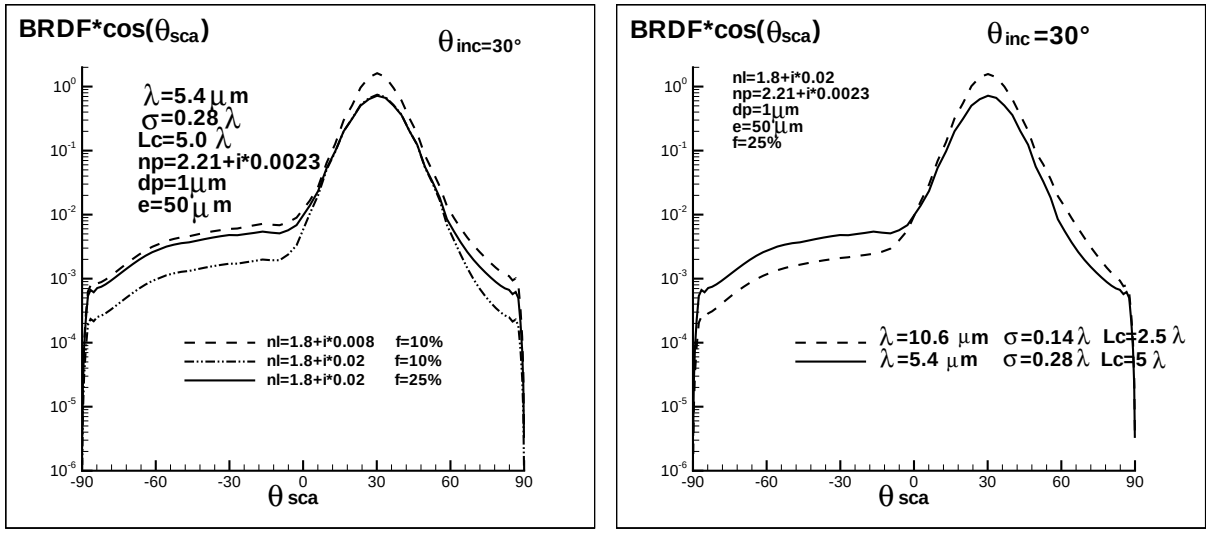
Nous avons besoin d'un modèle de diffusion de surface qui conserve l'énergie afin qu'aucune perte ne soit introduite. Comme le modèle de Kirchhoff ne conserve pas l'énergie pour tous les angles d'incidence, nous sommes contraints de renormaliser la BRDF et la BTDF incohérentes et les facteurs de réflexion et de transmission cohérents.

VII.3 Application au cas d'une peinture rugueuse faiblement diffusante en volume

Le premier système que nous étudions pourrait être le cas d'une peinture rugueuse que l'on aurait pas chargée volontairement en particules diffusantes. Une peinture peut toutefois diffuser en volume car elle contient des inclusions métalliques ou des colorants de petites tailles devant la longueur d'onde mais suffisamment grosses pour diffuser.

On représente sur la figure VII.6(a) le profil de la diffusion (BRDF corrigée du cosinus) de cette peinture à une longueur d'onde de $\lambda_0 = 5.4\mu m$, pour onde plane incidente dépolarisée, formant un angle de $\theta_{inc} = 30°$ avec la normale à la surface, dans le plan d'incidence en fonction de l'angle de

diffusion θ_{sca}. Pour cet exemple, on a choisi des particules de rayon $\lambda_0/10$ avec un faible contraste d'indice. Ainsi ces particules sont de faibles diffuseurs comparés à des diffuseurs en résonance de Mie. Les particules sont plongées dans un milieu absorbant où la partie imaginaire de l'indice est 0.02 ou 0.008. Afin de faire varier le libre parcours moyen de la diffusion, la fraction volumique vaut 10 ou 25%. Toutes les statistiques de la surface sont supposées gaussiennes. La longueur de corrélation est $\tau_c = 5\lambda_0$ et la hauteur quadratique moyenne est fixée $\sigma = 0.28\lambda$. Le lobe de diffusion principale autour $\theta_{sca} = 30°$ est dû essentiellement à la diffusion de surface tandis que le plateau de diffusion de $\theta_{sca} = -75°$ à $\theta_{sca} = 0°$ est dû à la diffusion volumique. La largeur du lobe de diffusion augmente avec la pentes moyennes σ/τ_c de la surface (en tous cas pour une longueur de corrélation supérieure à une longueur de corrélation). Dans cet exemple, la pente σ/τ_c est de l'ordre de 0.06 et la largeur du lobe de diffusion de l'ordre de 30 degrés.



(a) $\lambda_0 = 5.4\mu m$, $f = 10\%$ ou 20%, $Im(n_h) = 0.008$ ou 0.02. (b)

FIG. VII.6 – *Exemple d'une diffusion par une peinture rugueuse faible diffusante en volume. On distingue facilement la contribution de la diffusion due à la surface de celle due au volume. caractéristiques communes:* $\theta_{inc} = 30^o$, $n_p = 2.21 + i0.023$, $Re(n_h) = 1.8$, $e = 50\mu m$ $\sigma = 0.28\lambda_0$, $\tau_c = 5\lambda_0$, $a = 0.5\mu m$

Comparons la courbe en points-tiret ($n_h = 1.8 + i0.02$ et $f = 10\%$) et la courbe en trait plein ($n_h = 1.8 + i0.02$ et $f = 25\%$), c'est-à-dire pour une absorption identique mais une fraction volumique de particule beaucoup plus forte[1] pour le cas du trait plein. Le plateau de diffusion volumique augmente tandis que le lobe de diffusion surfacique n'est pas du tout influencé par la diffusion en volume. Il n'y a rien de surprenant à cela puisqu'il y a quasiment 2 ordres de grandeurs entre les niveaux de BRDF dus à la diffusion en volume et ceux dus à la diffusion en surface.

Comparons maintenant la courbe en points-tirets ($n_h = 1.8 + i0.02$ et $f = 10\%$) et la courbe en tirets ($n_h = 1.8 + i0.008$ et $f = 10\%$. L'absorption est plus forte dans le premier cas. L'absorption a tendance à diminuer le nombre d'évenements de diffusion dans le volume et à empêcher les ondes diffusées dans le volume de remonter puisque les ondes diffuses sont absorbées avant de ressortir

1. On ne prétend pas calculer correctement les paramètres de l'ETR (coefficients d'extinction, de diffusion et fonction de phase) pour une fraction volumique de particules à 10 ou 25% car ces coefficients sont calculés sous l'approximation de la diffusion indépendante. Notre but est simplement ici d'observer l'effet de l'augmentation du coefficient de diffusion.

de la peinture. Ainsi, dans le cas où l'absorption est plus faible, la diffusion en volume est plus forte et par conséquent la hauteur du plateau augmente. On voit aussi que la hauteur du lobe de diffusion est fortement augmentée. Cette forte augmentation provient de la présence d'une onde cohérente montante dans le milieu. Cette onde cohérente n'existait pas auparavant dans le cas plus absorbant. Cette onde cohérente montante est diffusée lors de la transmission par l'interface supérieure. On peut aussi observer Fig.VII.6(b) cet effet en recalculant la BRDF pour le cas d'une longueur d'onde pratiquement deux fois plus importante ($\lambda_0 = 10.6\mu m$). On suppose ici (mais cela est peu probable) que les indices n'ont pas évolués à cette longueur d'onde.

Dans ce cas, l'épaisseur de la couche ne représente plus que 5 longueurs d'ondes. De plus, à cette longueur d'onde les particules sont plus petites. Donc le coefficient d'extinction dans le volume est beaucoup plus faible. Ainsi l'épaisseur optique est beaucoup plus faible. Ce qui explique pourquoi le plateau de diffusion est 3 ou 4 fois plus faible. D'autre part, l'onde source cohérente peut donc facilement pénétrer dans le milieu, se réfléchir sur la paroi parfaitement conductrice, puis remonter pour être finalement diffusée par l'interface en transmission.

VII.4 Couplage et découplage de la diffusion surface-volume

VII.4.1 Géométrie de découplage

Pour une large fraction volumique de petits diffuseurs placés en dessous d'une interface rugueuse, Sentenac, Giovannini, et Saillard (2002) montrent par la résolution numérique exact des équations d'ondes (Giovannini *et al.* 1998), que le résultat de la BRDF du système complet peut être obtenu par la somme des systèmes découplés (voir Fig.VII.7):

- le milieu diffusant en volume avec une interface plane.
- la surface rugueuse seule, mais déposée sur l'indice effectif (homogène) du milieu diffusant. L'indice effectif du milieu diffusant est l'indice vue par le champ moyen sur un ensemble de réalisations. La théorie de la diffusion multiple explique comment l'évaluer.

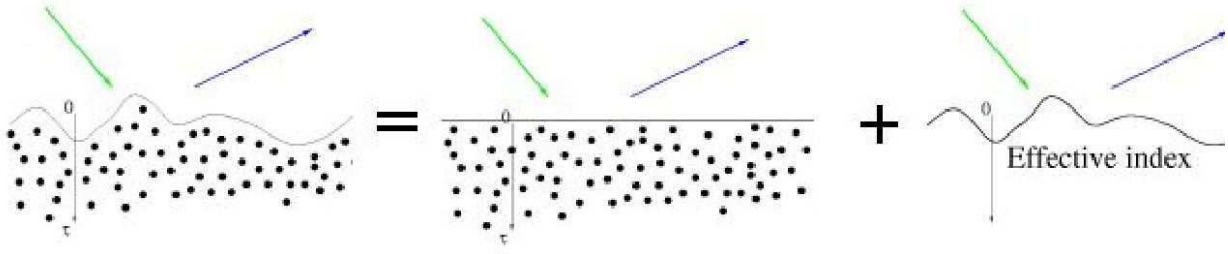


FIG. VII.7 – *Découplage cohérent*

Si la diffusion par la surface est évaluée avec pour indice de substrat le milieu hôte de la peinture comme l'on fait Pak *et al.* (1993), alors un désaccord important apparait entre la solution du système complet et la somme des systèmes découplés.

Il y a donc un couplage entre la diffusion de surface et la diffusion en volume. Le résultat de Sentenac *et al.* (2002) montre que ce couplage est dû à un effet cohérent. C'est principalement la modification de la partie réelle de l'indice effectif qui joue un rôle. L'augmentation de la partie réelle a pour conséquence une augmentation de la diffusion directe due à la surface rugueuse car la lumière voit une milieu plus contrasté.

Cette idée est suggérée par la version évoluée de la MFT (Calvo-Perez 1999) appliquée à un milieu diffusant à la fois en volume et en surface. La MFT montre que le découplage de la diffusion

surface-volume doit se faire en prenant en compte la modification de l'indice effectif du substrat à cause de la présence des particules. Toutefois la MFT est un modèle de diffusion simple dans un milieu effectif. L'approximation de Born modifiée[2] est utilisée. La MFT donne d'excellents résultats tant que le milieu ne s'écarte pas trop du régime d'homogénéisation et que la diffusion multiple est négligeable. Par conséquent la diffusion multiple entre la surface et le volume diffusant n'est pas pris en compte par la MFT. On peut par conséquent se demander si la diffusion multiple entre la surface et le volume joue un rôle dans le couplage.

Nous allons montrer qu'il existe un couplage de nature incohérente lié à la diffusion multiple entre l'interface rugueuse et le volume diffusant et lié d'autre part à la modification directionnelle des flux entrant et sortant du milieu diffusant lors du passage la lumière au travers de l'interface.

Dans le système que nous étudions, les diffuseurs sphériques sont de taille comparable à la longueur d'onde. A cause des résonances de Mie, les sections efficaces de diffusion sont très fortes. Le milieu diffusant est déposé sur une interface plane parfaitement conductrice, donc parfaitement réfléchissante.

Pour le cas d'un milieu contenant de faibles fractions volumiques de diffuseurs diélectriques, la modification de la partie réelle de l'indice effectif est négligeable. Par conséquent le couplage cohérent décrit par Sentenac *et al.* (2002) est négligeable pour les systèmes que nous présentons. Nous allons comparer le résultat obtenu par l'approche radiative du système complet avec la

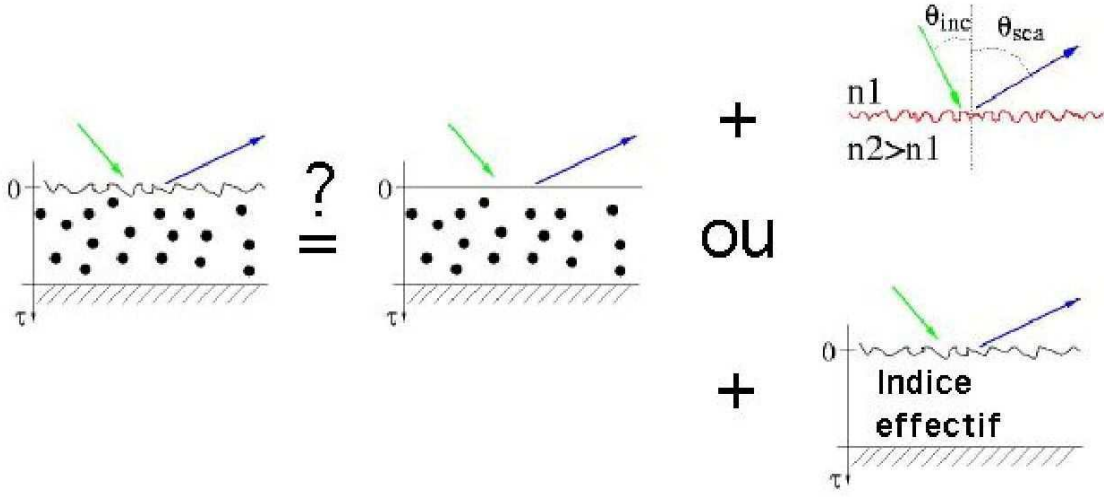


FIG. VII.8 – *Découplage incohérent*

somme des deux systèmes découplés d'une manière identique à celle décrite précédemment pour le couplage cohérent à la différence que la diffusion par l'interface seule est calculée en ne prenant pas pour substrat l'indice du milieu effectif, mais l'indice du milieu hôte (voir Fig.VII.8). Nous dirons qu'il y a un couplage incohérent entre la diffusion par la surface et la diffusion par le volume quand la somme des résultats par les systèmes découplés est différente du résultat obtenu pour le système complet calculé par l'approche radiative incohérente. On s'intéresse à ce découplage parce que le système découplé est d'une part beaucoup plus rapide à résoudre que le système couplé, et d'autre part beaucoup plus simple à mettre en oeuvre.

Pour le cas de milieux optiquement minces, il nous avons besoin de calculer le résultat de la diffusion par l'interface rugueuse déposée sur la peinture sans particule mais où l'indice du milieu hôte est cette fois remplacé par l'indice effectif du milieu diffusant en volume. On ne souhaite pas par cette méthode prendre en compte un effet cohérent due à la modification de la partie réelle de

2. Elle bien plus efficace que l'approximation de Born classique.

l'indice car nous savons qu'elle est peu différente de celle du liant. Nous voulons par contre prendre en compte la modification de la partie imaginaire afin que le facteur d'atténuation des flux transmis dans le volume soit correctement évalué. Par exemple, la partie cohérente qui est transmise par l'interface rugueuse, se propage jusqu'à ce qu'elle soit réfléchie par le miroir. Ce faisceau remonte tout en s'atténuant jusqu'à rencontrer l'interface rugueuse. La lumière est donc rediffusée par transmission. Il est important de noter que l'efficacité de diffusion par une interface rugueuse est beaucoup plus importante en transmission qu'en réflexion. Par exemple, une vitre plane réfléchit 4% de la lumière et en transmet 96% en incidence normale. Dans le cas d'une vitre rugueuse, la proportion des flux diffus transmis et réfléchi est en première approximation dans une proportion équivalente. Par conséquent, la part de lumière diffusée en réflexion par l'interface d'entrée peut être comparable ou même plus faible devant la part de la lumière diffusée en transmission par l'interface lors de la sortie de la peinture. Ceci sera d'autant plus vrai si le milieu n'est pas optiquement trop épais. Remarquons toutefois que dans le cas d'un milieu optiquement mince des interférences sur les ondes diffusées peuvent se produire. Le modèle radiatif ne peut les prévoir. Par exemple, il existe une relation de phase (Calvo-Perez 1999) entre le champ diffusé réfléchi directement par l'interface rugueuse et le champ diffusé transmis dans la couche qui descend et remonte pour enfin sortir de l'interface de façon cohérente (sans être cette fois rediffusée par l'interface). Ces interférences créent des anneaux qui font varier les luminances diffuses en fonction de l'angle de diffusion.

VII.4.2 Mise en évidence d'un couplage incohérent surface-volume pour une interface de fortes pentes moyennes

Les paramètres choisis du milieu diffusant en volume sont tels que l'épaisseur optique est égale à 5. Le milieu n'est pratiquement pas absorbant. Ainsi la luminance collimatée s'atténue fortement dans le milieu diffusant. Nous étudions l'évolution du couplage surface-volume en fonction de la pente moyenne de la surface d'entrée. Sur les Fig.VII.9 VII.11(a) et VII.11(b) nous présentons le résultat de la diffusion pour des surfaces telles que les pentes moyennes sont respectivement $\sigma/\tau_c = 0.07$, 0.14 et 0.28. Sur ces figures, on représente:

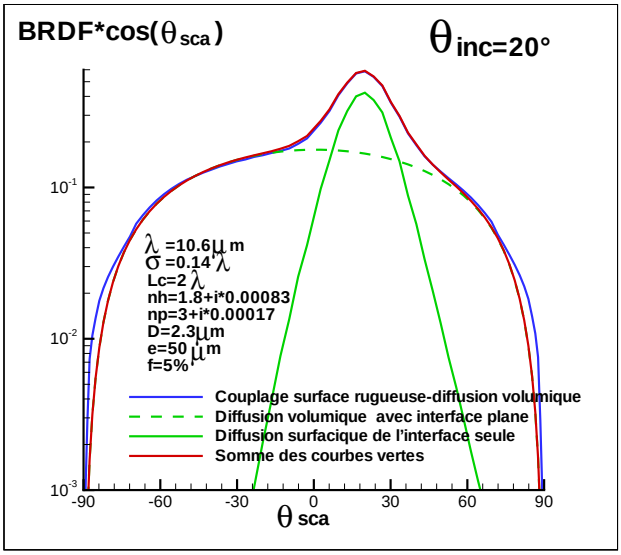
- en vert le résultat de la diffusion par l'interface rugueuse seule;
- en tirets verts le résultat de la diffusion par le milieu en volume avec une interface plane;
- en rouge le résultat de la somme des systèmes découplés;
- en bleu le résultat de la diffusion par le système complet.

Pour le cas d'un rapport $\sigma/\tau_c = 0.07$, nous n'observons aucune différence entre le résultat du système couplé et la somme des résultats découplés.

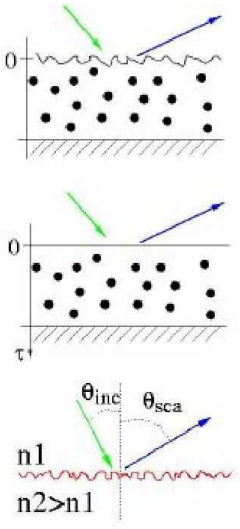
On peut se demander dans quelle mesure un couplage entre la diffusion de surface et la diffusion en volume devrait apparaitre. Si aucun couplage de diffusion surface-volume n'est observé, c'est que la modification des conditions aux limites de type rugueuse n'a eu aucune influence sur les ondes diffusées dans le volume.

L'étude de la diffusion par le modèle de Kirchhoff, permet de dégager quelques propriétés importantes sur le rôle d'une interface rugueuse déposée sur un milieu diffusant en volume:

- Sur la Fig.VII.10, nous reportons les facteurs de transmission cohérents et incohérents pour une surface éclairée en incidence normale pour une longueur de corrélation $\tau_c = \lambda_0$ en fonction de la hauteur quadratique moyenne calculée par le modèle de Kichhoff. L'onde incidente se propage du milieu d'indice $n_1 = 1$ vers le milieu $n_2 = 1.62$. La proportion de l'énergie réfléchie est faible (6% environ) comparée à la part transmise dans le cas d'une interface plane. Alors que le facteur de transmission cohérent chute avec la hauteur quadratique moyenne, le facteur de transmission incohérent augmente exactement dans la même proportion. Par



(a) Caractéristiques du milieu: $\sigma = 0.14\lambda_0$, $\tau_c = 2\lambda_0$, $n_h = 1.8 + i0.00083$, $n_p = 3 + i0.00017$, $f = 5\%$, $a = 0.108\lambda_0$, $e = 4.72\lambda_0$



(b) Système couplé et systèmes découplés

FIG. VII.9 – *BRDF corrigée du cosinus de l'angle de diffusion pour un angle d'incidence $\theta_{inc} = 20^o$ dans le plan d'incidence, pour une pente moyenne $\sigma/\tau_c = 0.07$ et une épaisseur optique égale à 5.*

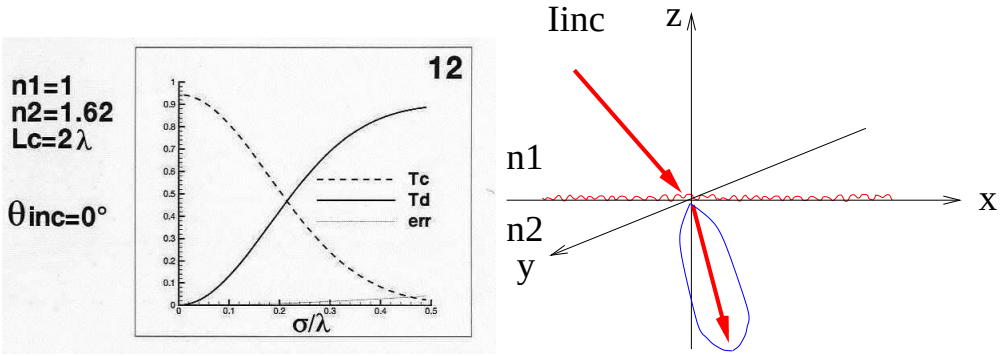
conséquent la somme des deux termes et donc l'énergie totale transmise est indépendante de la rugosité. On a: $T_C(\sigma) + T_D(\sigma) = cste$.

- Pour le cas d'une surface rugueuse, dont les pentes moyennes ne sont pas trop fortes, on sait que la largeur des lobes de diffusion réfléchi et transmis est relativement resserrée (voir Fig.VII.11(b)). Cela est d'autant plus vrai pour la partie transmise quand le milieu de transmission à un indice plus fort (ceci est un simple effet d'optique géométrique dû à la loi de la réfraction de Snell-Descartes).

Donc finalement, la distribution angulaire du flux transmis par l'interface rugueuse est très proche de celle d'une surface plane. Par conséquent l'interface rugueuse modifie peu les conditions aux limites en ce qui concerne la partie rentrante de l'onde incidente dans le milieu diffusant en volume.

Ces conclusions ne sont plus valables pour des interfaces dont les pentes moyennes sont importantes. Par exemple une étude théorique et expérimentale de Nieto-Vesperinas *et al.* (1990) montre que le lobe de diffusion transmis par une interface rugueuse est décalé par rapport à la direction spéculaire de transmission. Ce décalage est dû au fait que le facteur de transmission de Fresnel est plus important en incidence normale. Par conséquent les pentes locales qui sont en incidence normale par rapport à l'onde incidente diffusent plus que les autres et diffusent dans la direction de l'onde incidente. Par conséquent, on peut s'attendre à ce que la distribution des flux transmis par une surface de fortes pentes moyennes diffère notablement par rapport au cas d'une interface plane.

Pour le cas du rapport $\sigma/\tau_c = 0.14$ Fig.VII.11(a) la différence entre la courbe bleue et rouge montre qu'un léger couplage radiatif apparaît pour des angles de diffusion proche de l'incidence normale. Une différence importante apparaît aussi pour les flux diffusés proches des angles rasants pour de faibles niveaux de diffus. Pour le cas des angles rasants, nous ne pouvons pas affirmer qu'il s'agit d'un effet physique ou s'il s'agit d'un problème numérique lié à une mauvaise évaluation du modèle de diffusion de surface pour les angles rasants. Toutefois, si ce résultat a une origine phy-



(a) Comportement des facteurs de transmission cohérent T_C et incohérent T_D. en fonction de la hauteur quadratique moyenne σ pour une onde se propageant en incidence normale d'un milieu d'indice $n_1 = 1$ vers un milieu d'indice $n_2 = 1.62$ avec une longueur de corrélation $\tau_c = 2\lambda_0$

(b) Le flux diffusé est resserré autour de la direction speculaire pour une surface de faible pente moyenne.

FIG. VII.10 – *Pour le cas d'une surface de faible pente moyenne, la distribution des flux transmis sont proche à la fois en direction en énergie compare au cas d'une interface plane.*

sique, on pourrait l'expliquer par le mécanisme suivant: une partie non-négligeable des luminances diffuses qui remontent dans le volume diffusant sont rediffusées une dernière fois lors du passage de l'interface rugueuse. Lors de ce passage une partie de la lumière est diffusée dans les directions rasantes. Ceci marque une différence par rapport au cas du dioptre plan qui ne rediffuse pas la lumière dans les directions rasantes.

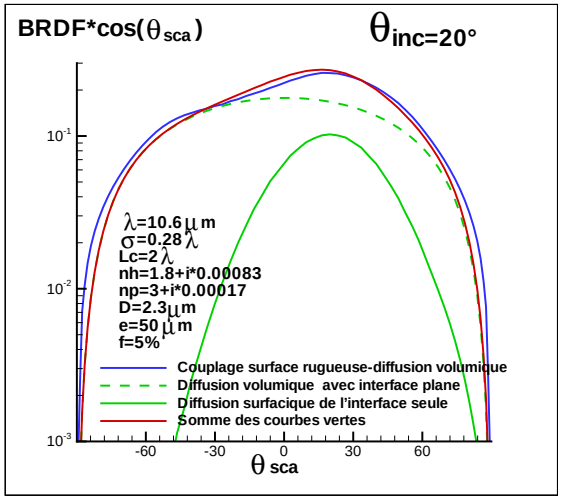
Pour une pente moyenne $\sigma/\tau_c = 0.28$ Fig.VII.11(b), l'approche radiative prévoit un fort couplage entre la diffusion par l'interface et le volume sur pratiquement toutes les directions de diffusion. S'il y a couplage, c'est que les conditions aux limites jouent un rôle non-négligeable sur les directions des luminances diffuses. Nous pensons que ce couplage est essentiellement dû à la rediffusion des luminances diffuses dans le volume lors de la sortie de couche par traversée de l'interface rugueuse.

VII.4.3 Exaltation de la diffusion surfacique pour un milieu optiquement plus mince

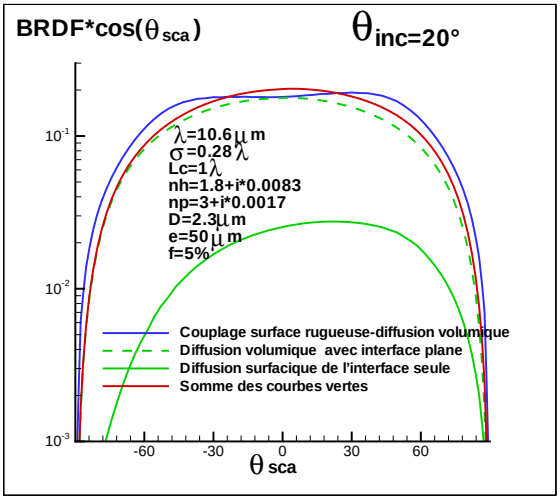
Nous reprenons le cas précédent tel que $\sigma/\tau_c = 0.14$, à la différence près importante que la fraction volumique est diminuée d'un facteur 5. Par conséquent, le milieu devient beaucoup plus mince puisque l'épaisseur est $K_{ext}e = 1$. La différence essentielle avec le cas précédent outre le fait que le milieu diffuse un peu moins en volume, c'est que l'onde cohérente montante dans le milieu diffusant n'est plus négligeable. Comme la diffusion en transmission est beaucoup plus efficace qu'en réflexion, on a pas besoin que l'onde cohérente montante soit très forte pour que l'onde diffusée en transmission soit comparable à l'onde qui a été diffusée directement en réflexion par la surface rugueuse.

Pour le cas présenté, si on compare le résultat de la BRDF du système complet avec la somme des BRDF des systèmes découplés VII.12(a), on obtient une différence importante. La raison est évidente car dans le cas du système découplé, nous n'avons pas pris en compte l'onde cohérente montante.

Pour prendre en compte la diffusion de l'onde cohérente montante, on peut choisir un nouveau



(a) Pente moyenne $\sigma/\tau_c = 0.14$; longueur de corrélation $\tau_c = 2\lambda_0$.



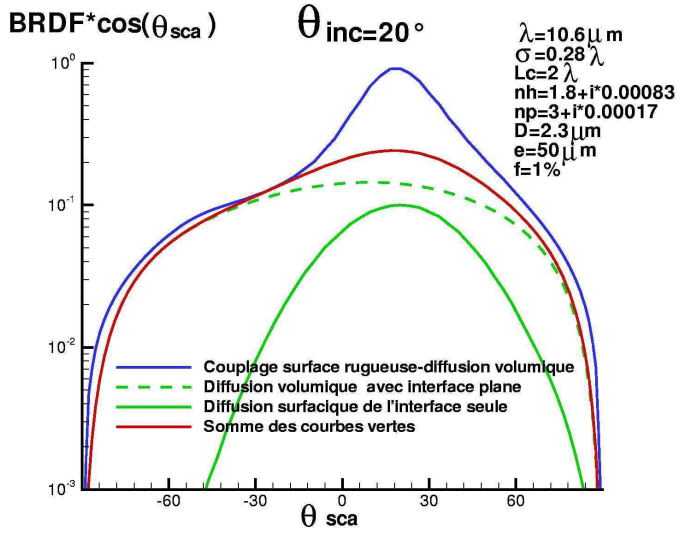
(b) Pente moyenne $\sigma/\tau_c = 0.28$; longueur de corrélation $\tau_c = 1\lambda_0$.

FIG. VII.11 – *BRDF corrigée du cosinus de l'angle de diffusion pour un angle d'incidence* $\theta_{inc} = 20^o$ *dans le plan d'incidence. Caractéristiques communes du milieu:* $\sigma = 0.28\lambda_0$, $n_h = 1.8 + i0.00083$, $n_p = 3 + i0.00017$, $f = 5\%$, $a = 0.108$, $e = 4.72\lambda_0$. *L'épaisseur optique est égale à 5.*

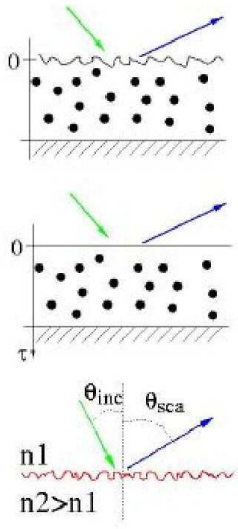
découplage où cette fois on doit résoudre le problème de la diffusion de la surface déposée sur la géometrie du milieu diffusant en volume à la différence que le milieu volumique est le milieu homogène effectif du milieu diffusant en volume. Le rôle du milieu effectif est différent par rapport aux cas étudiés par Sentenac *et al.* (2002). La modification de l'indice effectif n'a pas pour effet d'augmenter l'efficacité de diffusion de la surface, car la partie réelle de l'indice effectif est très proche de celle du milieu hôte pour une fraction volumique $f = 1\%$. Par contre, la partie imaginaire a pour effet de prendre correctement en compte la décroissance de l'onde cohérente dans le volume afin que l'amplitude de l'onde cohérente montante juste en dessous de l'interface soit evaluée exactement. Pour une fraction volumique de $f = 1\%$, la valeur de l'indice effectif peut être évaluée par la formule de Foldy-Twersky [3]. Ainsi en additionnant le résultat des systèmes découplés VII.12(d), on retrouve le résultat du système couplé Fig.VII.12(c).

On peut comparer les BRDF pour le cas où $K_{ext}e = 5$ sur la Fig.VII.11(a) et le cas où $K_{ext}e = 1$ sur la Fig.VII.12(a). La contribution de la lumière diffusée due au volume est plus forte pour le systeme le plus épais optiquement, tandis que la contribution due à l'interface rugueuse est plus forte pour le système le plus mince optiquement. Le facteur d'absorption a' pour ces deux système est sensiblement équivalent. Le facteur d'absorption est reliée au facteur de réflexion hémisphérique R par la relation: $a' = 1 - R$. Donc pour les deux systèmes, le facteur de réflexion hémisphérique est identique. Comme le facteur de réflexion hémisphérique est l'intégrale de la BRDF corrigée du cosinus sur le demi-espace supérieur, alors on peut comprendre pourquoi l'exaltation de la diffusion due à la surface entraine une chute de la contribution de la lumière diffusée par le volume puisque l'intégrale de la BRDF corrigée du cosinus est constante quand le facteur d'absorption des deux systèmes est constant.

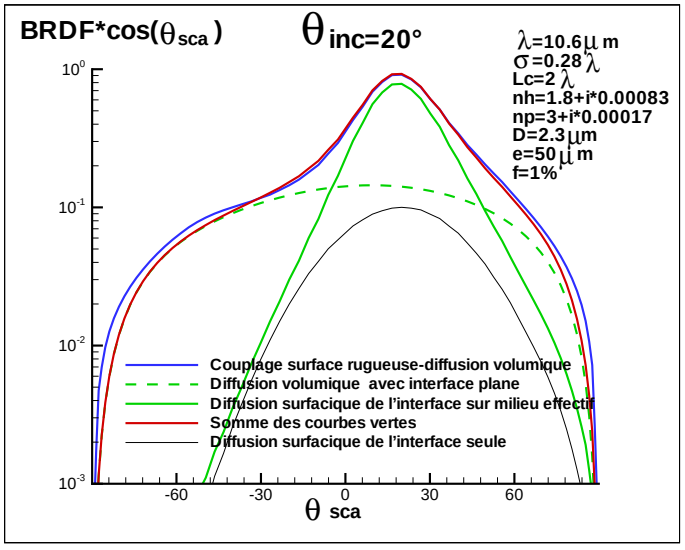
3. Si le milieu hôte est absorbant, on peut utiliser la formule de Foldy-Twersky généralisée en milieu absorbant que nous avons montré au chapitre III



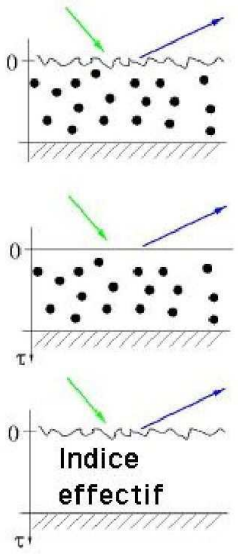
(a) Caractéristiques du milieu: $\sigma = 0.28\lambda_0$, $\tau_c = 2\lambda_0$, $n_h = 1.8 + i0.00083$, $n_p = 3 + i0.00017$, $f = 1\%$, $a = 0.108$, $e = 4.72\lambda_0$.



(b)



(c) Idem VII.12(a)



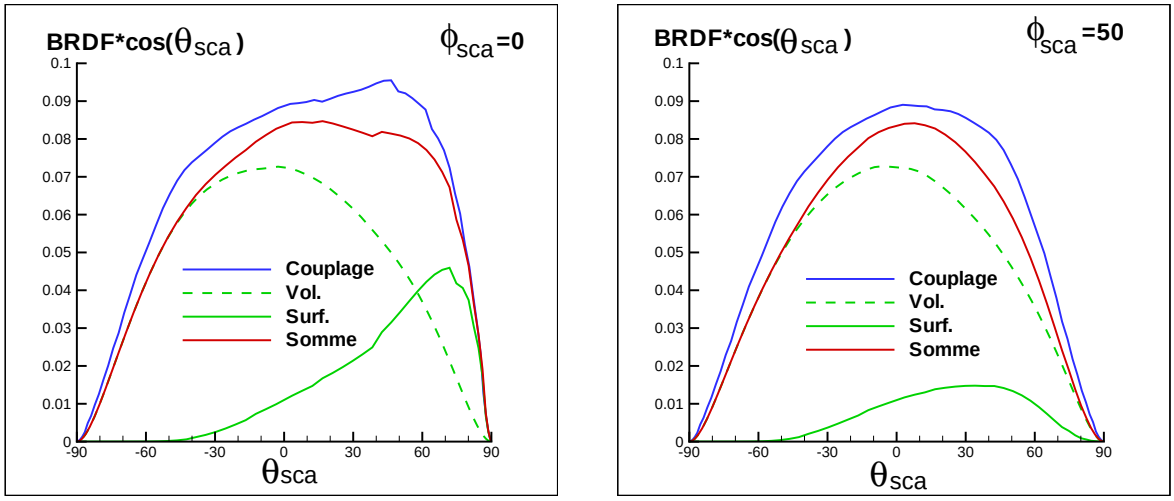
(d)

FIG. VII.12 – *BRDF corrigée du cosinus de l'angle de diffusion pour un angle d'incidence* $\theta_{inc} = 20^o$ *dans le plan d'incidence, pour une pente moyenne* $\sigma/\tau_c = 0.14$ *et une épaisseur optique égale à 1.*

VII.5 Couplage de la diffusion surface-volume pour un milieu absorbant

Enfin, pour terminer ce chapitre, nous considérons maintenant le cas d'une couche diffusante absorbante dont l'interface d'entrée supérieure est rugueuse. L'interface de sortie est plane.

La longueur d'onde d'éclairement est $\lambda_0 = 5.42\mu m$. Le système considéré est une couche d'épaisseur $e = 31.3\lambda_0$ de polyethylène d'indice $n_h = 1.45 + i0.002$ dans lequel sont plongées une fraction volumique $f = 9.2\%$ de particules de rayons $0.46\lambda_0$ de ZnS d'indice $n_p = 2.24 + i2.8.10^{-6}$. L'angle d'incidence est $\theta_{inc} = 60^o$. L'épaisseur optique est de l'ordre de 20 et l'absorption globale du système est proche 60%. Le coefficient d'absorption est tel que la part de lumière transmise est négligeable et le système est suffisament épais pour que le facteur d'absorption globale du système ne dépende plus de l'épaisseur de la couche. Les statistiques de la surface sont supposées gaussiennes avec $\sigma = 0.94\lambda_0$ et $\tau_c = 3.4\lambda_0$ (donc $\sigma/\tau_c = 0.27$). La hauteur quadratique moyenne est telle que le facteur de réflexion cohérent est complètement éteint même à cet angle d'incidence. Pour calculer les conditions aux limites sur l'interface rugueuse, nous avons utilisé le modèle de Kirchhoff sous l'approximation de la phase stationnaire qui est bien adaptée pour ce type de surface. Nous représentons la BRDF Fig.VII.13 calculée dans le plan d'incidence $\phi = 0^o$ et dans le plan azimutal $\phi = 50^o$. Dans les deux cas, la BRDF du système couplé est plus importante que celle de la somme des BRDF des systèmes découplés pour tous les angles de diffusion.



(a) Dans le plan d'incidence $\phi = 0$.

(b) Dans le plan $\phi = 50$.

FIG. VII.13 – *BRDF corrigée du cosinus de l'angle de diffusion pour un angle d'incidence* $\theta_{inc} = 60^o$.

L'absorption globale pour le système couplé est $A = 0.662$ tandis que l'étude du système découplé prévoit un facteur d'absorption $A = 0.72$.

Cet effet est peut-être lié au phénomène de la réflexion totale d'une onde se propageant d'un indice fort vers un milieu d'indice plus faible. Les luminances montantes sont plus sujettes au phénomène de la réflexion totale dans le cas d'une interface plane que dans le cas d'une interface rugueuse. L'angle à partir duquel la réflexion est totale est augmenté dans le cas d'une interface rugueuse. Par conséquent, la lumière a plus de difficultés à sortir du milieu quand l'interface est plane que quand elle est rugueuse. Comme le milieu est absorbant, alors le facteur d'absorption globale du système est augmentée pour le cas d'une interface plane car les chemins optiques sont plus longs en moyenne avant la sortie du milieu que dans le cas de l'interface rugueuse.

VII.6 Conclusion

Le couplage de la diffusion surface-volume par une approche radiative n'est pas très simple à mettre en oeuvre. Elle nécessite au préalable le calcul des propriétés diffusives de l'interface rugueuse. La BRDF et la BTDF doivent être calculées pour de nombreux angles d'incidence et de nombreux angles de diffusion et aussi pour de nombreux plans azimutaux. De plus, ces fonctions doivent être calculées dans les deux sens de propagation de l'onde incidente. Par conséquent, il est nécessaire que le modèle de diffusion de surface utilisé soit très rapide pour évaluer ces nombreuses données.

Le découplage du problème qui consiste à évaluer la somme de la BRDF du système diffusant en volume avec une interface plane et la BRDF de l'interface rugueuse seule est intéressante pour gagner en temps de calcul et en développement de code de calcul. Toutefois le résultat obtenu par la somme des problèmes découplés n'est pas toujours en accord avec le résultat de l'étude du système couplé.

Nous montrons que pour le cas d'un milieu diffusant non absorbant, l'étude du système complet peut être découplé si la pente moyenne $\sigma/\tau_c < 0.2$ pour les indices du milieu hôte étudiés. Cette absence de couplage provient du fait que la distribution des flux diffusés est très proche du cas d'une interface plane quand les pentes moyennes ne sont pas trop fortes. Dans ce cas, les conditions aux limites par rapport au cas d'une interface plane sont peu modifiées.

Pour de plus fortes pentes, le couplage surface-volume entraîne que les flux sont davantage diffusés dans les directions rasantes. Ce couplage apparait essentiellement à cause de la rediffusion par transmission de l'interface lors de l'émergence des flux diffusés dans le volume.

Un autre type de couplage apparaît pour le cas d'un milieu diffusant à pertes. Les simulations montrent que l'interface rugueuse jouent probablement un rôle important sur le facteur d'absorption globale. Ce couplage illustre une fois de plus qu'il n'est pas toujours possible de découpler le problème de la diffusion par une couche chargée et rugueuse même quand les effets cohérents sont négligeables.

De nombreux effets cohérents ne sont pas pris en compte par l'approche radiative. Il est nécessaire d'analyser les nombreux paramètres du milieu afin d'évaluer préalablement si les effets cohérents sont négligeables. Des études numériques exactes et expérimentales sont nécessaires pour mieux cadrer son domaine de validité.

Conclusion générale

Une étude théorique et numérique de la propagation de la lumière en milieu aléatoire est présentée dans ce manuscrit. La modélisation du transport de la lumière par une approche radiative pose le problème du calcul de paramètres moyen du milieu. La majeur partie de la thèse du chapitre II au chapitre VI est consacrée à cet aspect. L'étude est toutefois limitée au cas de milieux diffusant contenant des particules aléatoirement disposées dans l'espace.

Nous avons décrit dans le premier chapitre les grandeurs nécessaires à la description phénoménologique du transport de la lumière. Nous avons notamment introduit l'Equation de Transfert Radiatif (ETR), qui permet d'évaluer les propriétés de diffusion d'une couche contenant des diffuseurs de taille comparable à la longueur d'onde. Nous avons aussi présenté l'approximation de la diffusion indépendante souvent utilisée pour évaluer les paramètres de l'ETR en fonction des caractéristiques moyennes d'un petit élément de volume diffusant. Le domaine de validité *a priori* de l'ETR et de l'approximation de la diffusion indépendante sont discutés.

Le chapitre II a porté sur la théorie de la diffusion multiple. Nous insistons particulièrement sur l'étude du champ cohérent. Cette théorie donne un moyen rigoureux de calcul du coefficient d'extinction qui est l'un des paramètres essentiels de l'ETR. Quand le milieu hôte dans lequel baignent les diffuseurs est absorbant une difficulté théorique supplémentaire apparait pour le calcul des paramètres de l'ETR même sous l'approximation de la diffusion indépendante. Cette difficulté est liée au problème de la définition d'une section efficace dans un milieu absorbant. La théorie de la diffusion multiple d'ondes électromagnétiques nous apprend que le coefficient d'extinction peut s'obtenir en évaluant l'indice effectif d'un milieu diffusant. Il est par conséquent possible de contourner le problème de la définition d'une section efficace. De plus, la théorie de la diffusion multiple explique comment prendre en compte rigoureusement en compte la diffusion dépendante. Les expressions obtenues sont formelles et dépendent d'opérateurs qui doivent être évalués.

Au chapitre III, nous avons présenté une revue des travaux antérieurs sur le calcul des coefficients d'extinction en milieu absorbant. Ces études sont toutes phénoménologiques et ne sont jamais comparées à des résultats expérimentaux ou numériques. Elles sont par conséquent difficiles à apprécier. Les expressions déduites de la théorie de la diffusion multiple du coefficient d'extinction ont été présentées en fonction de quantités calculables, notamment la matrice de diffusion de Mie dans la direction avant (que l'on peut obtenir sans difficultés dans un milieu absorbant). Nous avons obtenu deux expressions du coefficient d'extinction: la première est une généralisation de la formule de Foldy-Twersky en milieu absorbant valable en régime de diffusion indépendante pour des diffuseurs de taille quelconque; la seconde est une généralisation de la formule de Keller en milieu absorbant qui prend en compte de manière approximative les corrélations entre les paires de diffuseur afin de rendre compte des effets de diffusion dépendante. Nous pensons grâce à ces modèles répondre au problème théorique posé.

Afin d'évaluer la validité de ces nouvelles formulations, nous avons entrepris au chapitre IV une résolution numérique exacte du problème de diffusion par une couche contenant des particules cylindriques placées en milieu absorbant. La méthode numérique est basée sur la résolution numérique exacte des équations de Maxwell réalisable sur un ensemble de système à deux dimensions. Nous obtenons un très bon accord en régime de diffusion indépendante entre le résultat exact et la formule de Foldy-Twersky généralisée en milieu absorbant. En régime de diffusion dépendante,

nous obtenons un très bon accord avec la formule de Keller pour les tailles de particules étudiées tant que le rapport d'indice particules sur liant n'est pas trop fort. Un point important est que la formule approximative de Keller semble fonctionner au delà des hypothèses posées pour sa démonstration. Il est probable que l'on puisse la retrouver à partir d'hypothèses moins restrictives. Le cas de particules de forts indices placées en milieu absorbant nécessiterait d'autres études.

L'autre paramètre important de l'ETR est le coefficient de diffusion. Comme le coefficient d'extinction est la somme des coefficients de diffusion et d'absorption, si le coefficient d'extinction est connu, la détermination du coefficient d'absorption détermine le coefficient de diffusion et *vice-versa*. Au chapitre V, nous cherchons à évaluer le coefficient d'absorption pour de fortes fractions volumique de particules non-absorbantes placées dans un milieu absorbant. Nous avons pour cela repris les cas d'études du chapitre précédent et exploité la mesure du coefficient d'extinction obtenu par la méthode numérique exacte. Puis en comparant l'énergie totale réfléchie et transmise diffuse obtenue indépendament par l'ETR (pour différents coefficients d'absorptions) et la méthode des moments, nous avons pu déduire que le comportement du coefficient d'absorption varie linéairement avec la fraction volumique en $(1-f)$ pour des particules de rayon $a = 0.25\lambda_0$. Cette formule semble valide pour de fortes fractions volumiques même en régime de diffusion dépendante. Nous montrons par ailleurs que la lumière diffuse profite des trous d'absorption que constituent les particules non-absorbantes pour se propager plus facilement. Une investigation expérimentale sur une couche absorbante contenant des diffuseurs non-absorbant serait intéressante. On pourrait étudier des échantillons contenant des diffuseurs de différentes tailles et différents indices. Des résonances des flux diffusés en transmission devraient apparaitre pour certaines tailles de particules.

Au chapitre VI, nous avons développé un modèle original qui exploite ce que nous apprend la théorie de la diffusion multiple et le résultat de la diffusion par une paire de particules sphériques pour le calcul du coefficient d'extinction pour un milieu très chargé en particules sphériques. Nous donnons une formule calculable en un temps très court qui s'exprime en fonction de la matrice de diffusion d'une sphère isolée et de la matrice de diffusion par deux sphères. Le résultat de la diffusion par une paire de particules sphériques moyenné sur les orientations peut s'obtenir par le résultat de la méthode numérique appelé matrice des transferts ou matrice T. La moyenne sur les distances intercentres doit s'effectuer *via* la densité de probabilité d'une paire de particule placée au sein d'un grand nombre de particules. La formule obtenue est valable pour des particules de tailles quelconques. Elle prend en compte toutes les corrélations à deux particules et l'aspect vectoriel des ondes. Cette formule devrait être plus précise et avoir un domaine de validité plus large que la formule de Keller. En principe, la formule de l'extinction est également valable quand le milieu hôte est absorbant, mais il faut toutefois que le code utilisé par la méthode des matrices T soit valable en milieu absorbant. Le modèle exposé pourrait être étendu pour prendre en compte les corrélations d'ordre supérieures comme celles à trois particules. On utiliserait le résultat de la diffusion par un ensemble de trois particule par la matrice T. Il devrait aussi être possible d'exprimer l'opérateur intensité de l'équation de Bethe-Salpeter en fonction du résultat de la diffusion par deux sphères. On pourrait alors évaluer le coefficient de diffusion.

Enfin dans le dernier chapitre, nous nous sommes intéressés au problème de la diffusion par une couche diffusante en volume et en surface. Le modèle que nous avons développé est celui de l'approche radiative consistant à résoudre l'ETR scalaire pour un système 3D. La diffusion par l'interface rugueuse est prise en compte lors de l'écriture des conditions aux limites. Cette approche est toutefois difficile à mettre en oeuvre même dans l'approximation scalaire puisqu'elle nécessite la connaissance complète des propriétés diffusives de la surface pour tous les angles d'incidences et tous les angles de diffusions. Il est avantageux en temps de calcul de découpler le problème en sommant le résultat de deux systèmes simplifiés: celui du milieu diffusant en volume avec une interface plane et celui de la surface rugueuse déposée sur le milieu hôte. Le couplage incohérent est défini par la différence entre le résultat du système complet et celui de la somme des systèmes découplés. Nous avons montré qu'il n'est pas toujours possible de découpler le problème car un couplage incohérent est mis en évidence dans certains cas. Les mécanismes de couplage sont

discutés et prennent de l'importance si les pentes moyennes de la surface sont fortes. Il est difficile de dégager le domaine de validité de cette approche car un système diffusant à la fois en volume et en surface dépend d'un très grand nombre de paramètres intrinsèque du milieu. Le modèle utilisé pour décrire la diffusion par la surface est celui de Kirchhoff valable pour des surfaces dont la longueur de corrélation est supérieure à la longueur d'onde. On pourrait dans une prochaine étude utiliser d'autres modèles de diffusion de surface comme la Mean Fied Theory (MFT) pour le cas de surfaces de fortes pentes avec une faible longueur de corrélation, afin de savoir si le découplage est efficace dans ce cas. Il serait intéressant de mener une étude experimentale sur des milieux diffusant à la fois en volume et en surface.

Annexe A

Fonction et tenseur de Green dans un espace libre: cas 3D et 2D

Nous rassemblons dans cette annexe l'ensemble des relations dont nous avons eu besoin le long de cette thèse en rapport avec les fonctions de Green. Nous avons puisé les informations essentiellement dans les quatres documents suivants:

- L'annexe D de la thèse de Soubret (2001), et l'annexe A de la thèse de Sentenac (1993) (pour le cas 2D)
- le livre de Tai (1993) et le cours de Greffet (1998).

A.1 Définitions et notations

Cas d'ondes scalaires

La fonction de Green scalaire G_1 est la solution de l'équation de propagation pour une source scalaire ponctuelle $j = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ située en $\mathbf{r}'$.

$$\Delta G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_1 G_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \tag{A.1}$$

L'indice 1 indique qu'il s'agit de la fonction de Green dans un milieu hôte de permittivité ϵ_1. On recherche la solution avec la condition d'onde sortante suivante:

$$\lim_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|\to\infty} G_1 \left(\frac{\partial G_1}{\partial |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} - ik_1 G_1 \right) = 0 \tag{A.2}$$

avec $k_1^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_1$.

Cas d'ondes vectorielles

Le tenseur de Green $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ définit au sens des fonctions pour $\mathbf{r} \neq \mathbf{r}'$ dans un milieu homogène de permittivité ϵ_1 est solution de l'équation de propagation pour une source vectorielle ponctuelle:

$$\nabla \times \nabla \times \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_1\ \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\ \overleftrightarrow{\mathbf{I}} \tag{A.3}$$

où $\overleftrightarrow{\mathbf{I}}$ est l'opérateur unité.

La condition d'onde sortante pour le cas d'ondes vectorielles s'écrit:

$$\lim_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|\to\infty} \left(\nabla \times \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 - ik_1 \frac{\mathbf{r} - \mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \times \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1 \right) = 0 \tag{A.4}$$

Notations et conventions

Les équations (A.1) et (A.3) sont formellement identiques quelle que soit la dimension du système si on oublie que la fonction de Dirac est différente selon le cas 2D et 3D.

$$\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \delta(x-x')\delta(y-y')\delta(z-z') \text{ en 3D} \tag{A.5}$$
$$\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \delta(x-x')\delta(y-y') \text{ en 2D} \tag{A.6}$$

L'invariance par translation de la fonction de Green se traduit par:

$$G_1(\mathbf{r},\mathbf{r}') = G_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \tag{A.7}$$

La transformée de Fourier (TF), et la transformée inverse (TF^{-1}), pour un système 3D sont définies par convention de la manière suivante:

$$G_1(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \int \widetilde{G}_1(\mathbf{k},\mathbf{k}') e^{i(\mathbf{kr}-\mathbf{k}'\mathbf{r}')} \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}\frac{d^3\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} \tag{A.8}$$
$$\widetilde{G}_1(\mathbf{k},\mathbf{k}') = \int G_1(\mathbf{r},\mathbf{r}') e^{i(-\mathbf{kr}+\mathbf{k}'\mathbf{r}')} d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \tag{A.9}$$

On a par ailleurs la relation:

$$(2\pi)^3\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}') = \int e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{r}} d^3\mathbf{r} \tag{A.10}$$

Comme la fonction de Green ne dépend que de $\mathbf{r}-\mathbf{r}'$, on peut définir la TF de la fonction de Green à une seule variable qui est reliée à la TF à deux variables par:

$$\widetilde{G}_1(\mathbf{k},\mathbf{k}') = (2\pi)^3\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\,\widetilde{G}_1(\mathbf{k}) \tag{A.11}$$

Par conséquent, on a:

$$G_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \int \widetilde{G}_1(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')} \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \tag{A.12}$$

Ces relations sont strictement identiques pour le cas du tenseur de Green, Il suffit de remplacer G_1 par $\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1$. Les TF et TF^{-1} dans le cas 2D s'obtiennent en remplaçant $\frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}$ par $\frac{d^2\mathbf{k}}{(2\pi)^2}$ et $d^3\mathbf{r}$ par $d^2\mathbf{r}$.

A.2 Solution dans l'espace de Fourier

La solution dans l'espace de Fourier ne dépend pas de la dimension du système considéré. Le calcul de la fonction de Green s'obtient en prenant la TF de l'équation de propagation de l'onde scalaire (A.1) tandis que le tenseur de Green s'obtient en prenant la TF de (A.3).

Cas scalaire

$$\widetilde{G}_1(\mathbf{k}) = \frac{1}{k^2-k_1^2} \tag{A.13}$$

où $k = |\mathbf{k}|$.

Cas vectoriel

$$\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_1(\mathbf{k}) = \frac{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{P}}(\mathbf{k})}{k^2 - k_1^2} \tag{A.14}$$

où $\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{P}}(\mathbf{k}) = \mathbf{I} - \overset{\wedge\wedge}{\mathbf{kk}}$ est un opérateur qui, appliqué à un vecteur, en prend sa partie transverse (la partie transverse est orthogonale au vecteur $\mathbf{k}$). $\overset{\wedge\wedge}{\mathbf{kk}}$ est une notation telle que ces éléments ij soient:

$$\overset{\wedge\wedge}{\mathbf{kk}}_{ij} = \frac{k_i k_j}{k_1^2} \tag{A.15}$$

Le vecteur résultat est orienté dans le plan normal à $\mathbf{k}$.

A.3 Solution dans l'espace direct

Les solutions présentées sont valables uniquement pour $\mathbf{r} \neq \mathbf{r}'$. Nous ne discutons pas des problèmes de singularités de la fonction et du tenseur de Green en $\mathbf{r} = \mathbf{r}'$ pour lesquels on pourra trouver des informations dans l'article de Yaghjian (1980). La méthode pour obtenir la solution dans l'espace direct est toujours la même. On prend la TF^{-1} 3D ou 2D de la fonction ou du tenseur de Green dans l'espace de Fourier.

Cas scalaire 3D

La TF 3D inverse de (A.13) donne:

$$G_1(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \frac{e^{ik_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \tag{A.16}$$

Cas vectoriel 3D

La TF 3D inverse de (A.14) donne:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \left(\mathbf{I} + \frac{\nabla\nabla}{k_1^2}\right) \frac{e^{ik_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \tag{A.17}$$

Les éléments ij de (A.17) sont:

$$G_{1ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \left(\delta_{ij} + \frac{\partial_i \partial_j}{k_1^2}\right) \frac{e^{ik_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}$$

où δ_{ij} est le symbole de Kronecker et $\partial_i = \frac{\partial}{\partial x_i}$. On peut développer l'expression (A.17) jusqu'à obtenir:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r}) = g_1(\mathbf{r})\mathbf{I} + g_2(\mathbf{r})\, \overset{\wedge\wedge}{\mathbf{rr}} \tag{A.18}$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} g_1(\mathbf{r}) &= (-1 + ik_1 r + k_1^2 r^2)\frac{e^{ik_1 r}}{4\pi k_1^2 r^3} \\ g_2(\mathbf{r}) &= (3 - 3ik_1 r - k_1^2 r^2)\frac{e^{ik_1 r}}{4\pi k_1^2 r^3} \end{cases} \tag{A.19}$$

où $\overset{\wedge\wedge}{\mathbf{rr}}_{ij} = \frac{r_i r_j}{r^2}$

Cas scalaire 2D

La TF 2D inverse de (A.13) donne:

$$G_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{i}{4}H_0^{(1)}(k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|) \tag{A.20}$$

où $H_0^{(1)}$ est la fonction de Hankel de première espèce d'ordre 0.

Cas vectoriel 2D

En prenant la TF^{-1} 2D de (A.14), Sentenac (1993) montre que les éléments du tenseur de Green 2D dans l'espace direct sont:

$$\begin{aligned} G_{1ij}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') &= \frac{i}{4}H_0^{(1)}(k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)\left(\delta_{ij}-\frac{r_i r_j}{r^2}\right) \\ &- \frac{i}{4}\left(\delta_{ij}-2\frac{r_i r_j}{r^2}\right)\frac{H_1^{(1)}(k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)}{k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \end{aligned} \tag{A.21}$$

où $H_1^{(1)}$ est une fonction de Hankel de première espèce d'ordre 1.

A.4 Fonction et tenseur de Green en champ lointain

L'expression de la fonction ou du tenseur de Green en champ lointain peut être utile quand on doit l'intégrer selon $\mathbf{r}'$ dans une zone petite comparée à la distance d'observation. C'est le cas par exemple quand on calcul le champ rayonné $E(\mathbf{r})$ en un point éloigné d'un objet source de taille caractéristique L de volume $\mathcal{V}$ par la relation:

$$E(\mathbf{r}) = \int_{\mathcal{V}} G(\mathbf{r},\mathbf{r}')j(\mathbf{r}')d^3\mathbf{r}' \tag{A.22}$$

Le point d'observation $\mathbf{r}$ est en champ lointain d'un objet source situé en $\mathbf{r}'$ si les deux conditions suivantes sont réalisées:

- $|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| >> L$ pour que $\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \approx \frac{1}{|\mathbf{r}|}$ ou encore pour que $\frac{1}{\sqrt{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}} \approx \frac{1}{\sqrt{|\mathbf{r}|}}$
- $|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| >> \frac{L^2}{\lambda_1}$ pour que $e^{ik_1|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} \approx e^{ik_1 r}e^{-ik_1\mathbf{u}_r\cdot\mathbf{r}'}$ avec $\mathbf{u}_r = \frac{\mathbf{r}}{r}$.

Que le problème soit scalaire ou vectoriel, 2D ou 3D, ces approximations sont très largement utilisées. Ces deux conditions sont équivalentes à l'approximation de Fraunhofer dans la théorie de la diffraction.

Cas scalaire 3D

En champ lointain, la fonction de Green 3D devient:

$$G_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \approx \frac{e^{ik_1 r}}{4\pi r}e^{-ik_1\mathbf{u}_r\cdot\mathbf{r}'} \tag{A.23}$$

Cas vectoriel 3D

Quand $|k_1 r| >> 1$, les fonctions g_1 et g_2 tendent vers

$$g_1(\mathbf{r}) \to \frac{e^{ik_1 r}}{4\pi r} \quad et \quad g_2(\mathbf{r}) \to -\frac{e^{ik_1 r}}{4\pi r} \tag{A.24}$$

En champ lointain, le tenseur de Green 3D devient:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \approx \frac{e^{ik_1 \mathbf{r}}}{4\pi r} \Delta_{\mathbf{T}} e^{-ik_1 \mathbf{u}_\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}'} \tag{A.25}$$

avec

$$\Delta_{\mathbf{T}} = \mathbf{I} - \hat{\mathbf{r}}\hat{\mathbf{r}} \tag{A.26}$$

$\Delta_{\mathbf{T}}$ est un opérateur qui prend la partie transverse (au vecteur $\mathbf{r}$) d'un vecteur. Le champ rayonné en champ lointain est donc transverse.

Cas scalaire 2D

Les fonctions de Hankel d'ordre ν tendent asymptotiquement vers (Abramowitz et Stegun 1965):

$$\lim_{|z|\to\infty} H_\nu^{(1)}(z) = \sqrt{\frac{2}{\pi z}} e^{i(z-\frac{1}{2}\nu\pi-\frac{1}{4}\pi)} \text{ avec } -\pi < arg(z) < 2\pi \tag{A.27}$$

Donc pour $|k_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}')|$ grand, on a:

$$G_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{i}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}} e^{i(k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)-\frac{\pi}{4}} \tag{A.28}$$

Et en champ lointain, on obtient:

$$G_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi}} e^{i\frac{\pi}{4}} \frac{e^{ik_1 r}}{\sqrt{k_1 r}} e^{-ik_1 \mathbf{u}_\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}'} \tag{A.29}$$

Cas vectoriel 2D

Les fonctions de Hankel (A.27) d'ordre 0 et 1 pour $|z|$ grand ont une amplitude identique. Elles sont simplement déphasées de $\frac{\pi}{2}$. Contrairement à la fonction de Hankel d'ordre 0, la fonction de Hankel d'ordre 1 présente dans le tenseur de Green (A.21) est divisée par $k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|$. Par conséquent, pour de grand $|k_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}')|$, le deuxième terme dans le tenseur de Green est négligeable devant le premier. Dans ce cas, les éléments du tenseur de Green tendent asymptotiquement vers:

$$G_{1ij}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{i}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}} e^{i(k_1|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)-\frac{\pi}{4}} \left(\delta_{ij} - \frac{r_i r_j}{r^2}\right) \tag{A.30}$$

On obtient en champ lointain:

$$G_{1ij}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi}} e^{i\frac{\pi}{4}} \frac{e^{ik_1 r}}{\sqrt{k_1 r}} e^{-ik_1 \mathbf{u}_\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}'} \left(\delta_{ij} - \frac{r_i r_j}{r^2}\right) \tag{A.31}$$

Cette expression peut être réécrite en fonction de l'opérateur transverse $\Delta_{\mathbf{T}}$:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi}} e^{i\frac{\pi}{4}} \frac{e^{ik_1 r}}{\sqrt{k_1 r}} e^{-ik_1 \mathbf{u}_\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}'} \Delta_{\mathbf{T}} \tag{A.32}$$

Exemple d'utilisation. Cas scalaire 3D

Par exemple dans le cas d'un problème scalaire 3D, l'amplitude du champ rayonné par l'objet donné par l'expression (A.22) devient en champ lointain:

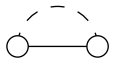
$$E(\mathbf{r}) \approx \frac{e^{ik_1 r}}{4\pi r} \int_{\mathcal{V}} e^{-ik_1 \mathbf{u}_\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}'} j(\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}' \tag{A.33}$$

Nous utiliserons cette expression à plusieurs reprises dans le chapitre III.

Annexe B

Calcul analytique de l'opérateur de diffusion double avec et sans corrélations

Cette annexe est divisée en trois sections. La première et la seconde sont les calculs des opérateurs de diffusion double corrélés respectivement dans le cas 3D pour des diffuseurs sphériques, et dans le cas 2D pour des diffuseurs cylindriques infinis. Cet opérateur doit être calculé pour obtenir le coefficient d'extinction sous l'approximation de Keller dans les cas 3D et 2D. En terme de diagramme, cette opérateur se note:



$= \mathbf{ODDC}$

Opérateur de diffusion double corrélée (B.1)

La troisième partie est le calcul de l'opérateur de diffusion double sans corrélation noté:

Opérateur de diffusion double sans corrélation (B.2)

On obtient une expression sans approximation pour des diffuseurs sphériques. Ce résultat sera utilisé au chapitre VI.

B.1 Calcul de l'opérateur de diffusion double corrélé

B.1.1 Cas 3D

Le résultat de cet opérateur est utilisé au chapitre III.

Pour un ensemble de N diffuseurs disposés aléatoirement dans un milieu de volume V, l'opérateur de diffusion double corrélé (ODDC) dans l'espace direct est défini par:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{ODDC}}\left(\mathbf{r},\mathbf{r}'\right) = \frac{N(N-1)}{V^2}\int \overleftrightarrow{\mathbf{t}}\left(\mathbf{r}-\mathbf{R}_1,\mathbf{r}_1-\mathbf{R}_1\right)\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1\left(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2\right)\overleftrightarrow{\mathbf{t}}\left(\mathbf{r}_2-\mathbf{R}_2,\mathbf{r}'-\mathbf{R}_2\right) g_2(|\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2|)d^3\mathbf{R}_1 d^3\mathbf{R}_2 d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 \quad \text{(B.3)}$$

Où $\frac{N}{V}$ est le nombres de particules par unité de volume; $\mathbf{t}$ est l'opérateur de diffusion d'une particule; $\mathbf{G}_1$ est le tenseur de Green pour un espace libre à trois dimensions de permittivité ϵ_1; la

fonction $g_2(|\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|)$ est la fonction de corrélation de paire (voir chap. II) qui ne dépend que de la distance $|\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|$ séparant le centre de deux diffuseurs disposés respectivement en $\mathbf{R}_1$ et $\mathbf{R}_2$ et de la fraction volumique f. La moyenne s'effectue sur l'ensemble des positions possibles des paires de particules. L'intégration sur les variables $\mathbf{r}_1$ et $\mathbf{r}_2$ correspond à la sommation de l'ensemble des évènements de diffusion double pour une disposition de paires de particules fixée.

On préfère utiliser la notion de fraction volumique f plutôt que le nombre de particules par unité de volume $\frac{N}{V}$ qui pour le cas de particules de formes sphériques est reliée à N et V par la relation: $\frac{N}{V} = \frac{3f}{4\pi a^3}$. D'autre part pour N grand, $\frac{N(N-1)}{V^2} \approx (\frac{N}{V})^2$.

Cas de particules sphériques petites devant la longueur d'onde

Les particules sont supposées très petites devant la longueur d'onde. Ainsi l'opérateur de diffusion d'une particule est considéré peu différent de (voir la section II.5.2) celui d'une hétérogénéité ponctuelle:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r}, \mathbf{r}') = 4\pi a^3 \delta(\mathbf{r}) \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \frac{\omega^2}{c^2} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{I}}\ \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \tag{B.4}$$

Nous injectons cette expression dans (B.3) pour obtenir:

$$\begin{aligned}
\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}\ (\mathbf{r}, \mathbf{r}') &= \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(4\pi a^3 \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \frac{\omega^2}{c^2}\right)^2 \\
&\cdot \int \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_1)\delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{R}_1)\ \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)\delta(\mathbf{r}_2 - \mathbf{R}_2)\delta(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}) \qquad \text{(B.5)} \\
&\quad g_2(|\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|) d^3\mathbf{R}_1 d^3\mathbf{R}_2 d^3\mathbf{r}_1 d^3\mathbf{r}_2 \\
&= \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(4\pi a^3 \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \frac{\omega^2}{c^2}\right)^2 \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r} - \mathbf{r}') g_2(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) \qquad \text{(B.6)} \\
&= \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}\ (\mathbf{r} - \mathbf{r}')
\end{aligned}$$

La permittivité du milieu effectif dans l'approximation de Keller s'obtient à partir de la transformée de Fourier de cet opérateur qui s'écrit:

$$\begin{aligned}
\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}}\ (\mathbf{k}) &= \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(4\pi a^3 \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \frac{\omega^2}{c^2}\right)^2 \int \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}) g_2(|\mathbf{r}|) e^{-i\mathbf{kr}} d^3\mathbf{r} \qquad \text{(B.7)} \\
&= \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(4\pi a^3 \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1} \frac{\omega^2}{c^2}\right)^2 \int_0^{4\pi} \int_0^{+\infty} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}) g_2(|\mathbf{r}|) e^{-i\mathbf{kr}} r^2 d\Omega dr
\end{aligned}$$

Approximation scalaire

Pour poursuivre, nous avons besoin d'utiliser une relation appelée par Keller (1964) théorème de valeur moyenne: Soit une fonction $v(\mathbf{r})$ vérifiant une équation propagation scalaire $(\Delta + k^2)v = 0$, comme par exemple $v(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{kr}}$, alors l'intégration de cette fonction sur une surface sphérique $\mathcal{S}$ centrée en $\mathbf{r}'$ de rayon $|\mathbf{r}|$ est:

$$\int_{\mathcal{S}} v(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) dS = \int_0^{4\pi} v(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) r^2 d\Omega = \frac{4\pi r}{k} sin(kr) v(\mathbf{r}') \tag{B.8}$$

Nous allons remplacer le tenseur de Green par la fonction de Green du problème scalaire pour éviter les problèmes de convergence de l'intégrale[1] d'une part et d'autre part pour que l'on puisse

1. Le cas vectoriel n'a rien de trivial puisque certains termes du tenseur de Green qui sont en $1/r^3$ posent un problème de singularité en $r = 0$

utiliser le théorème précédent.

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}}(\mathbf{k}) = \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(4\pi a^3 \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1}\frac{\omega^2}{c^2}\right)^2 \int_0^{+\infty} \frac{e^{ikr}}{4\pi r} g_2(r) r^2 \int_0^{4\pi} e^{-i\mathbf{kr}} d\Omega dr \quad \text{(B.9)}$$

En utilisant la formule (B.8) au point $\mathbf{r}' = 0$ avec la fonction $v(\mathbf{r}) = e^{-i\mathbf{kr}}$, on obtient le résultat suivant:

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}}(\mathbf{k}) = \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(4\pi a^3 \epsilon_1 \frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1}\frac{\omega^2}{c^2}\right)^2 \frac{1}{k} \int_0^{+\infty} e^{ikr} g_2(r) sin(kr) dr \quad \text{(B.10)}$$

Extention phénoménologique au cas de diffuseurs de tailles quelconques

Nous avons vu au chapitre II Eq. (II.75) et au chapitre III Eq. (III.72) que:

$$4\pi a^3 \frac{\omega^2}{c^2}\frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1}\epsilon_1 = \lim_{\frac{a}{\lambda}\to 0} \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}(\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1}) \quad \text{(B.11)}$$

Or la relation entre l'opérateur de diffusion et la matrice de diffusion S dans la direction avant est:

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}(\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1}) = \frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} \quad \text{(B.12)}$$

Afin d'étendre la formule (B.10) pour des particules de tailles plus importantes, nous allons remplacer phénoménologiquement le terme de diffusion dipolaire par la matrice de diffusion valable pour des particules sphériques de tailles quelconques:

$$4\pi a^3 \frac{\omega^2}{c^2}\frac{\epsilon_p - \epsilon_1}{\epsilon_p + 2\epsilon_1}\epsilon_1 \longrightarrow \frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} \quad \text{(B.13)}$$

Résultat

Finalement, on obtient la relation suivante qui est utilisée pour le calcul de l'indice effectif et le coefficient d'extinction au chapitre III.

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}}(\mathbf{k}) = \left(\frac{3f}{4\pi a^3}\right)^2 \left(\frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \frac{1}{k} \int_0^{+\infty} e^{ikr} g_2(r) sin(kr) dr \quad \text{(B.14)}$$

Cette formule n'est rigoureuse que dans le cas limite de particules de tailles ponctuelles, sphériques, et pour des ondes scalaires.

Pour obtenir cette formule, nous sommes partis directement du cas limite des très petites particules faiblement diffusantes, pour l'étendre au cas des diffuseurs d'amplitude plus élevée. Il est peut être plus naturel de considérer directement le cas de diffuseurs de sections efficaces élevées, mais suffisamment petits devant la longueur d'onde pour que l'approximation suivante soit valable:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \approx \overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}(\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1}')\delta(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = i\frac{4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\delta(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad \text{(B.15)}$$

En insérant directement cette relation dans (B.3), on peut plus rapidement obtenir l'équation (B.14) tout en évitant d'introduire l'expression de l'opérateur de diffusion d'une hétérogénéité ponctuelle.

B.1.2 Cas 2D

Ce résultat sera utilisé pour obtenir une expression du coefficient d'extinction sous l'approximation de Keller dans l'annexe E. Les résultats numériques de cette approximation seront présentés au chapitre IV.

Pour un ensemble de N diffuseurs cylindriques disposés aléatoirement dans un milieu de volume V, l'opérateur de diffusion double corrélé (ODDC) 2D dans l'espace direct est défini par:

$$\overleftrightarrow{\mathbf{ODDC}}(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \frac{N(N-1)}{V^2}\int \quad \overleftrightarrow{\mathbf{t}}(\mathbf{r}-\mathbf{R}_1,\mathbf{r}_1-\mathbf{R}_1)\,\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)\,\overleftrightarrow{\mathbf{t}}(\mathbf{r}_2-\mathbf{R}_2,\mathbf{r}'-\mathbf{R}_2)$$
$$g_2(|\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2|)d^2\mathbf{R}_1 d^2\mathbf{R}_2 d^2\mathbf{r}_1 d^2\mathbf{r}_2 \tag{B.16}$$

Où $\frac{N}{V}$ est le nombres de particules par unité de volume; $\mathbf{t}$ est l'opérateur de diffusion d'une particule; $\mathbf{G}_1$ est le tenseur de Green pour un espace libre à deux dimensions de permittivité ϵ_1; la fonction $g_2(|\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2|)$ est la fonction de corrélation de paire (voir chap. II), pour des cylindres à bases circulaires, qui ne dépend que de la distance $|\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2|$, séparant le centre de deux diffuseurs disposés respectivement en $\mathbf{R}_1$ et $\mathbf{R}_2$, et de la fraction volumique f. La moyenne s'effectue sur l'ensemble des positions possibles des paires de particules. L'intégration sur les variables $\mathbf{r}_1$ et $\mathbf{r}_2$ correspond à la sommation de l'ensemble des évènements de diffusion double pour une disposition de paires de particules fixée. Pour le cas de particules de formes cylindriques, la fraction volumique est reliée à N et V par la relation: $\frac{N}{V} = \frac{f}{\pi a^2}$. D'autre part pour N grand, $\frac{N(N-1)}{V^2} \approx (\frac{N}{V})^2$.

Comme pour le cas 3D, on étudie le cas des petites particules devant la longueur d'onde.

$$\overleftrightarrow{\mathbf{t}}(\mathbf{r},\mathbf{r}') \approx \overleftrightarrow{\tilde{\mathbf{t}}}(\mathbf{k_1},\mathbf{k_1}')\delta(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = i4S_{k_1}(0)\delta(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \tag{B.17}$$

Nous injectons cette expression dans (B.16) pour obtenir:

$$\begin{aligned}
\overleftrightarrow{\mathbf{ODDC}}(\mathbf{r},\mathbf{r}') &= \left[\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right]^2 \\
&\cdot \int \delta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_1)\delta(\mathbf{r}_1-\mathbf{R}_1)\,\overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)\delta(\mathbf{r}_2-\mathbf{R}_2)\delta(\mathbf{r}_2-\mathbf{r}) \qquad \text{(B.18)}\\
&\quad g_2(|\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2|)d^2\mathbf{R}_1 d^2\mathbf{R}_2 d^2\mathbf{r}_1 d^2\mathbf{r}_2 \\
&= \left[\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right]^2 \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}')g_2(|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|) \qquad \text{(B.19)}\\
&= \overleftrightarrow{\mathbf{ODDC}}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')
\end{aligned}$$

Pour calculer l'indice effectif, nous avons besoin d'une expression de cet opérateur dans l'espace de Fourier:

$$\begin{aligned}
\overleftrightarrow{\tilde{\mathbf{ODDC}}}(\mathbf{k}) &= \left[\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right]^2 \int \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r})g_2(|\mathbf{r}|)e^{-i\mathbf{kr}}d^2\mathbf{r} \qquad \text{(B.20)}\\
&= \left[\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right]^2 \int_0^{+\infty}\int_0^{2\pi} \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_1(\mathbf{r})g_2(|\mathbf{r}|)e^{-i\mathbf{kr}}r\,d\theta\,dr \qquad \text{(B.21)}
\end{aligned}$$

Dans le cas 2D, nous avons besoin d'une relation analogue à (B.8) utilisée par Keller dans le cas 3D. Nous démontrons à la fin de cette annexe la relation suivante: si $v(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{kr}}$ où $\mathbf{k}$ est un vecteur d'onde de direction quelconque et de norme $k = |\mathbf{k}|$, alors l'intégration de cette fonction sur un contour circulaire $\mathcal{C}$, centré en $\mathbf{r}'$ de rayon $|\mathbf{r}|$ est:

$$\int_{\mathcal{C}} v(\mathbf{r}'+\mathbf{r})dl = \int_0^{2\pi} v(\mathbf{r}'+\mathbf{r})r\,d\theta = 2\pi r J_0(kr)v(\mathbf{r}') \tag{B.22}$$

où J_0 est une fonction de Bessel de première espèce.

Nous allons remplacer le tenseur de Green par la fonction de Green du problème scalaire.

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}}(\mathbf{k}) = \left[\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right]^2 \int_0^{+\infty} \frac{i}{4} H_0^{(1)}(k_1 r) g_2(r) r \int_0^{2\pi} e^{-i\mathbf{kr}} d\theta dr \tag{B.23}$$

En utilisant la formule (B.22) au point $\mathbf{r}' = 0$ avec la fonction $v(\mathbf{r}) = e^{-i\mathbf{kr}}$, on obtient finalement la relation suivante qui est utilisée pour le calcul de l'indice effectif et du coefficient d'extinction dans l'annexe E.

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{ODDC}}}(\mathbf{k}) = \left[\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right]^2 \int_0^{+\infty} \frac{i\pi}{2} H_0^{(1)}(k_1 r) J_0(kr) r g_2(r) dr \tag{B.24}$$

Cette formule n'est rigoureuse que dans le cas limite de particules de tailles ponctuelles sphériques et pour des ondes scalaires.

Démontration de la formule B.22

Soit $v(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{kr}}$ avec

$$\mathbf{k} = k \begin{pmatrix} cos(\theta_k) \\ sin(\theta_k) \end{pmatrix} \text{ et } \mathbf{r} = r \begin{pmatrix} cos(\theta) \\ sin(\theta) \end{pmatrix} \tag{B.25}$$

On souhaite intégrer cette fonction sur un contour circulaire $\mathcal{C}$, centré en $\mathbf{r}'$ de rayon $|\mathbf{r}|$:

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}') &= \int_{\mathcal{C}} v(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) dl = \int_0^{2\pi} v(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) r d\theta \\ &= v(\mathbf{r}') r \int_0^{2\pi} e^{i\mathbf{kr}} d\theta = v(\mathbf{r}') r \int_0^{2\pi} e^{ikr cos(\theta - \theta_k)} d\theta = v(\mathbf{r}') r \int_0^{2\pi} e^{ikr cos(\theta)} d\theta \end{aligned}$$

Or la fonction de Bessel J_0 de premiere espèce peut se définir comme l'intégrale suivante:

$$J_0(z) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\pi} e^{iz cos(\theta) d\theta} \tag{B.26}$$

On retrouve alors la relation recherchée:

$$\int_{\mathcal{C}} v(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) dl = 2\pi r J_0(kr) v(\mathbf{r}') \tag{B.27}$$

B.2 Calcul exact de l'opérateur de diffusion double sans corrélation

Dans cette partie, nous calculons un opérateur que nous appelons l'opérateur de diffusion double sans corrélation. Nous aurons besoin de son expression au chapitre VI traitant du calcul du milieu effectif d'un milieu diffusant contenant des particules sphériques de forte permittivité par rapport au liant.

Cette opérateur s'écrit explicitement de la manière suivante dans l'espace direct:

$$0-0\ (\mathbf{r},\mathbf{r}') = \frac{N(N-1)}{V^2}\int \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r}-\mathbf{R_1},\mathbf{r_1}-\mathbf{R_1})\ \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r_1}-\mathbf{r_2})\ \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r_2}-\mathbf{R_2},\mathbf{r}'-\mathbf{R_2}) \\ d^3\mathbf{R_1}d^3\mathbf{R_2}d^3\mathbf{r_1}d^3\mathbf{r_2} \tag{B.28}$$

où $\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r},\mathbf{r}')$ est l'opérateur de diffusion à une particule; où $\mathbf{G}_1$ est l'opérateur de Green associé au tenseur de Green dans un espace libre de permittivité ϵ_1; et $\mathbf{R}_1$ et $\mathbf{R}_2$ sont les positions des centres de deux diffuseurs. On définit la TF de $\mathbf{t}$ par:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r},\mathbf{r}^{'}) = \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}\frac{d^3\mathbf{k}'}{(2\pi)^3}\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k},\mathbf{k}')e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}'} \tag{B.29}$$

donc:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r}-\mathbf{R},\mathbf{r}'-\mathbf{R}) = \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}\frac{d^3\mathbf{k}'}{(2\pi)^3}\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k},\mathbf{k}')e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}'}e^{i(\mathbf{k}^{'}-\mathbf{k})\mathbf{R}} \tag{B.30}$$

La TF du tenseur de Green est définie par:

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}_1\ (\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2) = \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_1\ (\mathbf{k})e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)} \tag{B.31}$$

On injecte ces expressions dans (B.28) pour obtenir:

$$0-0\ (\mathbf{r},\mathbf{r}') = \frac{N(N-1)}{V^2}\int \frac{d^3\mathbf{R}_1d^3\mathbf{R}_2d^3\mathbf{r}_1d^3\mathbf{r}_2d^3\mathbf{k}_1d^3\mathbf{k}_2d^3\mathbf{k}_3d^3\mathbf{k}_4d^3\mathbf{k}_5}{(2\pi)^{15}} \\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k}_1,\mathbf{k}_2)\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_1\ (\mathbf{k}_3)\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k}_4,\mathbf{k}_5) \\ e^{i\mathbf{k}_1\mathbf{r}}e^{-i\mathbf{k}_5\mathbf{r}'}e^{i(\mathbf{k}_3-\mathbf{k}_2)\mathbf{r}_1}e^{i(\mathbf{k}_4-\mathbf{k}_3)\mathbf{r}_2}e^{i(\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_1)\mathbf{R}_1}e^{i(\mathbf{k}_5-\mathbf{k}_4)\mathbf{R}_2} \tag{B.32}$$

Dans cette intégrale, on peut reconnaitre quatre fonctions de Dirac car on sait que:

$$\int \frac{d^3\mathbf{r}}{(2\pi)^3}e^{i(\mathbf{k}^{'}-\mathbf{k})\mathbf{r}} = \delta(\mathbf{k}^{'}-\mathbf{k}) \tag{B.33}$$

On peut alors intégrer rapidement sur $\mathbf{k}_2$, $\mathbf{k}_3$, $\mathbf{k}_4$ et $\mathbf{k}_5$ pour obtenir tout simplement:

$$0-0\ (\mathbf{r},\mathbf{r}') = \frac{N(N-1)}{V^2}\int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k},\mathbf{k})\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}}_1\ (\mathbf{k})\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k},\mathbf{k})e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')} \tag{B.34}$$

Ainsi,

$$0-0\ (\mathbf{r},\mathbf{r}') = 0-0\ (\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}[0-0\ (\mathbf{k})]e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')} \tag{B.35}$$

avec

$$0-0\ (\mathbf{k}) = \frac{N(N-1)}{V^2}\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k},\mathbf{k})\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{G}}_1\ (\mathbf{k})\ \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k},\mathbf{k}) \tag{B.36}$$

Or on sait que dans la base de Bohren, et pour un diffuseur dans le milieu hôte on a:

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}(\mathbf{k},\mathbf{k}) = \frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1} \tag{B.37}$$

où $S_k(0)$ est la matrice de diffusion vers l'avant, calculable par un code de Mie. Dans le cas de particules sphériques, S est diagonale, et ses éléments non-nuls sont égaux car l'amplitude de diffusion ne dépend pas de la polarisation du champ incident. D'autre part, le tenseur de Green dans la direction avant, i.e. $\mathbf{k} = (0,0,k)$, est dans la base cartésienne.

$$\overset{\sim}{\underset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}_1}}(\mathbf{k}) = \frac{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{P}}(\mathbf{k})}{k^2 - k_1^2} = \frac{1}{k^2 - k_1^2}\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{B.38}$$

Par conséquent, en injectant (B.38) et (B.37) dans (B.36), on obtient finalement dans la base de Bohren:

$$0 - 0\ (\mathbf{k}) = \frac{N(N-1)}{V^2}\frac{1}{k^2 - k_1^2}\left(\frac{i4\pi S_{k_1}(0)}{k_1}\right)^2 \tag{B.39}$$

Ce terme est diagonal pour le cas de diffuseurs sphèriques. C'est ce terme pour le cas de $N = 2$, que l'on aura besoin de soustraire pour calculer l'opérateur de masse.

Remarques

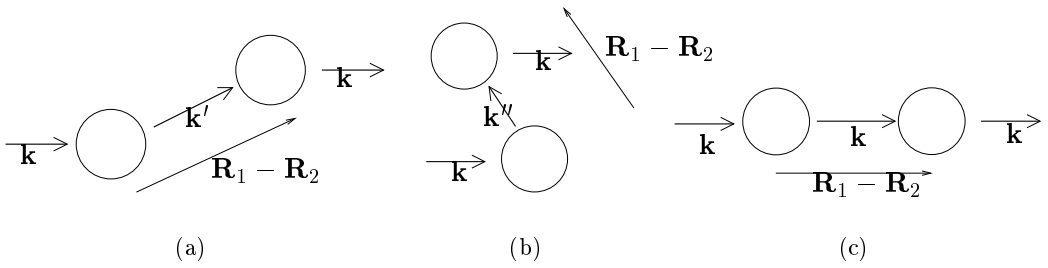


FIG. B.1 – *Seule la configuration (c) contribue au résultat de l'opérateur*

L'expression (B.36) ou (B.39) de l'opérateur de diffusion double non-corrélée ne dépend que de la matrice de diffusion de Mie dans la direction avant. On aurait pu s'attendre à ce que les variables d'intégration $\mathbf{k}_2$, $\mathbf{k}_3$ et $\mathbf{k}_4$ dans (B.32) présentes dans le premier et le second opérateur de diffusion simple et le tenseur de Green, et dans le second opérateur de diffusion, subsistent dans l'expression.

Lors de ce calcul, la moyenne sur les positions des diffuseurs $\mathbf{R}_1$ et $\mathbf{R}_2$ aurait pu se faire sur le centre de la paire $\frac{\mathbf{R}_1+\mathbf{R}_2}{2}$, puis sur toutes les orientations et les distances inter-particules $\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2$. La moyenne sur le centre des particules implique que le seul vecteur d'onde possible en sortie est égal à celui en entrée (même norme et même direction). Dans l'intégrale (B.32), la moyenne impose que $\mathbf{k}_5 = \mathbf{k}_1 = \mathbf{k}$. Symboliquement on écrit:

$$\langle \mathbf{k}_5 \to \mathbf{k}_4 \to \mathbf{k}_3 \to \mathbf{k}_2 \to \mathbf{k}_1 \rangle_{\frac{\mathbf{R}_1+\mathbf{R}_2}{2}} = \mathbf{k} \to \mathbf{k}_4 \to \mathbf{k}_3 \to \mathbf{k}_2 \to \mathbf{k} \tag{B.40}$$

La moyenne sur toutes les orientations et toutes les distances impose que $\mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_5$:

$$\langle \mathbf{k} \to \mathbf{k}_4 \to \mathbf{k}_3 \to \mathbf{k}_2 \to \mathbf{k} \rangle_{\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2} = \mathbf{k} \to \mathbf{k} \to \mathbf{k} \to \mathbf{k} \to \mathbf{k} \tag{B.41}$$

Dans le cas de particules petites devant la longueur d'onde et en champ lointain, on peut représenter le problème en terme de rayons. Le premier évènement de diffusion sur la particule 1 avec un vecteur d'onde incident $\mathbf{k}$, est diffusé puis se propage de la particule 1 à 2 selon $\mathbf{k}'$. Puis, le deuxième évènement diffusion transforme $\mathbf{k}'$ en $\mathbf{k}$. L'hypothèse des petites particules en champ lointain, nous a permis de supposer que $\mathbf{k}_2 \approx \mathbf{k}_3 \approx \mathbf{k}_4 = \mathbf{k}'$. On peut écrire la phase du chemin sous la forme :

$$e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}_1} e^{i\mathbf{k}'(\mathbf{R}_2-\mathbf{R}_1)} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{R}_2)} \tag{B.42}$$

où r est le point d'observation. Il faut maintenant moyenner sur $\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1$. Cela revient donc à intégrer sur ces variables. Que ce soit l'intégration sur x et y ou l'intégration sur z (la direction avant), les deux imposent que $\mathbf{k}' = \mathbf{k}$. Cela signifie que :

- l'intégration sur les différentes distances suivant z donne le Dirac (on peut donc associer deux à deux des chemins a $(z_1 - z_2)$ séparés de $\frac{\lambda}{2}$);
- l'intégration sur x et y donnent le même résultat ce qui signifie que l'on doit pouvoir associer aussi des couples à même $(z_2 - z_1)$ mais différents x tels que la différence de marche soit la même $+\frac{\lambda}{2}$.

La seule contribution à la moyenne vient du processus suivant: $\mathbf{k} \to \mathbf{k} \to \mathbf{k}$. Autrement dit:

$$< \mathbf{k} \to \mathbf{k}^{'} \to \mathbf{k} >_{(\mathbf{R}_1-\mathbf{R}_2)} = \mathbf{k} \to \mathbf{k} \to \mathbf{k} \tag{B.43}$$

On peut encore dire que pour chaque processus (Fig. B.1(a)) $\mathbf{k} \to \mathbf{k}' \to \mathbf{k}$ il existe un autre processus (Fig. B.1(b)) $\mathbf{k} \to \mathbf{k}'' \to \mathbf{k}$ tel que ces deux processus soientt exactement en opposition de phase sauf pour le processus de diffusion double vers l'avant (Fig. B.1(c)) où les particules sont alignées: $\mathbf{k} \to \mathbf{k} \to \mathbf{k}$.

Annexe C

Théorie de Mie pour un cylindre infini plongé dans un milieu absorbant

Comme pour le cas de la théorie de Mie pour une sphère (chapitre III), la théorie de Mie pour un cylindre plongé dans un milieu hôte absorbant ne pose pas de problème mathématique particulier. Nous n'avons pas détaillé la théorie de Mie en milieu absorbant pour le cas d'une sphère car elle est décrite dans plusieurs documents. Parcontre le cas d'un diffuseur cylindrique en milieu absorbant n'est pas décrit à notre connaissance dans d'autres documents, notamment le calcul des flux d'énergie à la surface du diffuseur.

Les champs rayonnés par un cylindre éclairé par une onde plane s'écrivent formellement de manière identique que dans le cas d'un milieu hôte non-absorbant. La seule différence à prendre en compte est que le nombre d'onde de l'onde incidente est complexe. Ceci a son importance pour le calcul numérique de la matrice de diffusion. Par contre le calcul des sections efficaces de diffusion et d'extinction sont problématiques quand la particule est plongée en milieu absorbant. Seuls les flux d'extinction et de diffusion peuvent être calculés exactement. Le passage classique du calcul de ces flux au calcul des sections efficaces pose des difficultés théoriques. De plus, les réponses données sont sujet à polémiques (voir chapitre III).

Cette Annexe est découpée en trois parties dont les deux premières sont des résultats connus depuis fort longtemps que l'on peut retrouver dans les livres de Bohren et Huffman (1983) et van de Hulst (1981):

- Le calcul des champs diffusés par un cylindre partout dans l'espace, et son expression asymptotique en champ lointain dans un milieu absorbant.
- Le bilan d'énergie absorption-diffusion en milieu non-absorbant.
- Le bilan d'énergie absorption-diffusion en milieu absorbant.

Les résultats de la troisième partie servirons à la théorie de Fardella que nous avons adapté pour le cas des cylindres (D.2).

C.1 Expression des champs rayonnés

Soit un cylindre de longueur infinie circulaire de rayon a d'indice réfractif n_p plongé dans un milieu d'indice n_h orienté parallèllement à l'axe (Oz). Par souci de simplicité, on se limite au cas où le cylindre est éclairé perpendiculairement par une onde plane (Fig. C.1). Nous exposons rapidement les résultats établis dans le livre de Bohren et Huffman (1983) sur le calcul des champs rayonnés, ainsi que l'expression de la matrice de diffusion S. Ces résultats seront utilisés dans les sections suivantes pour le calcul de l'extinction dans un milieu absorbant.

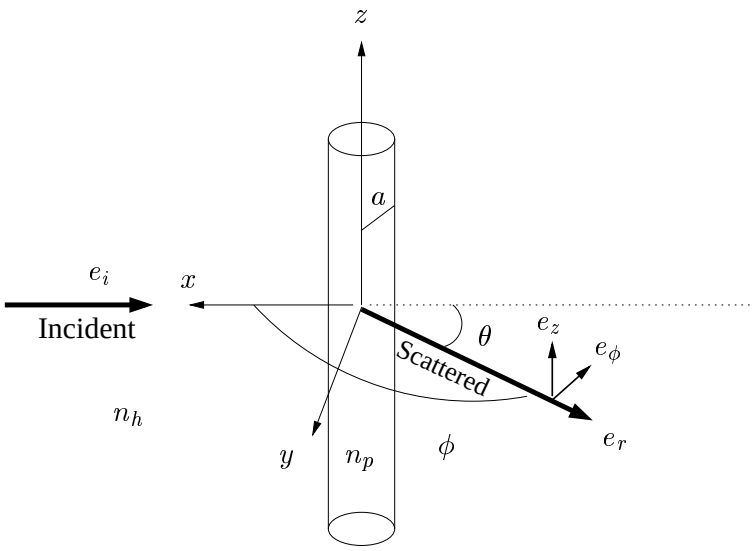


FIG. C.1 – *Cylindre infini (longueur $L >> \lambda$) de rayon a d'indice n_p plongée dans un liant d'indice n_h, éclairé en incidence normale*

C.1.1 Cas où le champ est parallèle à la direction d'invariance (Oz) (polarisation s)

On suppose que l'onde incidente se propage dans la direction $-x$ avec une pulsation ω que nous n'explicitons pas. Le champ incident dans la base cartésienne (x, y, z) est parrallèle à la direction z:

$$\mathbf{E}_{\|i} = E_{\|0}\mathbf{e}_z e^{-ik_1 x} \tag{C.1}$$

Cette forme ressemble à une onde plane[1] avec un vecteur d'onde $k_1 = \frac{2\pi n_h}{\lambda_0}$. Le nombre d'onde k_1 est réel si le liant est non absorbant et complexe dans le cas d'un liant absorbant.

$$k_1 = \frac{2\pi Re[n_h]}{\lambda_0} + i\frac{2\pi Im[n_h]}{\lambda_0}$$

Dans ce dernier cas, l'amplitude de l'onde décroît le long de sa propagation.

$$\mathbf{E}_{\|i} = E_{\|0}\mathbf{e}_z e^{-iRe[k_1]x} e^{Im[k_1]x} \tag{C.2}$$

Il est donc important de fixer la position d'une référence pour l'amplitude du champ. Pour cela est définie la valeur de l'amplitude du champ incident $E_{\|0}$ dans le plan $x = 0$ au centre du cylindre.

Comme le problème est à symétrie cylindrique, les champs incident et diffusé du problème sont développés dans la base d'harmoniques cylindriques $(\mathbf{M_n^1}, \mathbf{N_n^1})$ et $(\mathbf{M_n^3}, \mathbf{N_n^3})$. Ces harmoniques cylindriques s'expriment elles-mêmes dans une base cylindrique $(\mathbf{e_r}, \mathbf{e}_\phi, \mathbf{e_z})$ (voir Fig. C.1 pour la

1. Dans le cas où le milieu hôte est absorbant, l'onde s'atténue et ne peut plus en toute rigueur s'appeler onde plane

définition des vecteurs unitaires).

$$\mathbf{E}_{\|i}(\rho) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n \mathbf{N}_\mathbf{n}^\mathbf{1}(\rho) \tag{C.3}$$

$$\mathbf{H}_{\|i}(\rho) = -\frac{ik_1}{\omega\mu} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n \mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{1}(\rho) \tag{C.4}$$

$$\mathbf{E}_{\|s}(\rho) = -\sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n b_n \mathbf{N}_\mathbf{n}^\mathbf{3}(\rho) \tag{C.5}$$

$$\mathbf{H}_{\|s}(\rho) = \frac{ik_1}{\omega\mu} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n b_n \mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{3}(\rho) \tag{C.6}$$

avec

$$E_n = \frac{E_{\|0}(-i)^n}{k_1} \tag{C.7}$$

$$\mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{1}(\rho) = k_1 (in \frac{J_n(\rho)}{\rho} \mathbf{e_r} - J'_n(\rho)\mathbf{e}_\phi) e^{in\phi} \tag{C.8}$$

$$\mathbf{N}_\mathbf{n}^\mathbf{1}(\rho) = k_1 J_n(\rho) \mathbf{e_z} e^{in\phi} \tag{C.9}$$

$$\mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{3}(\rho) = k_1 (in \frac{H_n^{(1)}(\rho)}{\rho} \mathbf{e_r} - H'^{(1)}_n(\rho)\mathbf{e}_\phi) e^{in\phi} \tag{C.10}$$

$$\mathbf{N}_\mathbf{n}^\mathbf{3}(\rho) = k_1 H_n^{(1)}(\rho) \mathbf{e_z} e^{in\phi} \tag{C.11}$$

$$b_n = \frac{J_n(mX)J'_n(X) - mJ'_n(mX)J_n(X)}{J_n(mX)H'^{(1)}_n(X) - mJ'_n(mX)H_n^{(1)}(X)} \tag{C.12}$$

où $X = k_1 a$ est le paramètre de taille du cylindre; où $\rho = k_1 r$ et $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ est la distance du point d'observation au centre du cylindre; $m = \frac{n_p}{n_h}$ est le rapport de l'indice réfractif du cylindre n_p sur celui du milieu hôte n_h; enfin J_n et $H_n^{(1)}$ sont les fonctions de Bessel, respectivement de première et de troisième espèce d'ordre n. Les exposants 1 et 3 sur les harmoniques cylindriques (par exemple $\mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{3}$) indiquent si elles s'expriment à partir de fonctions de Bessel de première ou de troisième espèce.

C.1.2 Cas où le champ est dans le plan d'incidence (polarisation p)

Pour cette polarisation, le champ électrique incident s'écrit

$$\mathbf{E}_{i-} = E_{-0} \mathbf{e}_y e^{-ik_1 x} \tag{C.13}$$

$$\mathbf{E}_{-i}(\rho) = -i \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n \mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{1}(\rho) \tag{C.14}$$

$$\mathbf{H}_{-i}(\rho) = -\frac{k_1}{\omega\mu} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n \mathbf{N}_\mathbf{n}^\mathbf{1}(\rho) \tag{C.15}$$

$$\mathbf{E}_{-s}(\rho) = i \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n a_n \mathbf{M}_\mathbf{n}^\mathbf{3}(\rho) \tag{C.16}$$

$$\mathbf{H}_{-s}(\rho) = \frac{k_1}{\omega\mu} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n a_n \mathbf{N}_\mathbf{n}^\mathbf{3}(\rho) \tag{C.17}$$

avec

$$E_n = \frac{E_{-0}(-i)^n}{k_1} \tag{C.18}$$

$$a_n = \frac{mJ'_n(X)J_n(mX) - J_n(X)J'_n(mX)}{mJ_n(mX)H_n'^{(1)}(X) - J'_n(mX)H_n^{(1)}(X)} \tag{C.19}$$

C.1.3 Solution asymptotique en champ lointain

Les harmoniques sphériques constituées par $\mathbf{M_n^3}$ (C.10) et les $\mathbf{N_n^3}$ (C.11) contiennent des fonctions de Hankel. Quand $|\rho| >> 1$, on peut utiliser la forme asympotique de la fonction de Hankel et de sa dérivée première.

$$H_n^{(1)}(\rho) \longrightarrow \sqrt{\frac{2}{\pi\rho}} e^{i\rho}(-i)^n e^{-i\frac{\pi}{4}} \tag{C.20}$$

Pour calculer la dérivée première de la fonction de Hankel, on utilise la relation suivante[2]:

$$\rho H_n'^{(1)}(\rho) = \rho H_{n-1}^{(1)}(\rho) - nH_n^{(1)}(\rho) \tag{C.21}$$

pour obtenir son expression asymptotique.

$$H_n'^{(1)}(\rho) \longrightarrow \sqrt{\frac{2}{\pi\rho}} e^{i\rho}(-i)^n e^{+i\frac{\pi}{4}} \tag{C.22}$$

Les harmoniques cylindriques $\mathbf{M_n^3}$ contiennent une composante non-nulle selon $\mathbf{e_r}$, mais qui décroit en $\frac{1}{\rho}$ et qui devient négligeable en champ lointain devant les composantes selon $\mathbf{e}_\phi$ et $\mathbf{e_z}$. On retrouve bien que le champ est transverse en champ lointain.

Ainsi, il est possible en champ lointain d'écrire une relation matricielle entre le champ incident et le champ diffusé regroupant les résultats pour les deux polarisations rectilignes parallèle et perpendiculaire.

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{-s} \end{pmatrix} = \sqrt{\frac{2}{\pi r n_1 k_0}} e^{i\frac{3\pi}{4}} e^{irn_1k_0} \mathbf{S}_{k_1}(\theta) \begin{pmatrix} E_{\parallel 0} \\ E_{-0} \end{pmatrix} \tag{C.23}$$

Où $\mathbf{S}_{k_1}(\theta) = \begin{pmatrix} S_\parallel(\theta) & 0 \\ 0 & S_-(\theta) \end{pmatrix}$ est la matrice de diffusion avec $\theta = \pi - \phi$ ($\theta = 0$ pour la direction avant) et

$$S_\parallel(\theta) = b_0 + 2\sum_{n=1}^{+\infty} b_n cos(n\theta) \tag{C.24}$$

$$S_-(\theta) = a_0 + 2\sum_{n=1}^{+\infty} a_n cos(n\theta) \tag{C.25}$$

On indique k_1 en dessous la matrice de diffusion pour rappeller que le nombre d'onde de l'onde incidente est le milieu hôte (k_1 est complexe dans un milieu absorbant).

Le code de calcul classique pour la théorie de Mie pour un diffuseur cylindrique est disponible sur le WEB. Il s'agit du code que l'on trouve à la fin du livre de Bohren et Huffman (1983). Il n'y a pas, à notre connaissance, de code disponible prévu pour le cas où le paramètre de taille est complexe. Nous avons besoin pour les modèles de Foldy-Twersky et Keller[3] de connaitre la valeur de la matrice S en milieu absorbant. Par conséquent, nous avons adapté le code de Bohren

2. Abramowitz et Stegun (1965)

3. Ces modèles sont décrit en annexe E pour le cas des cylindres, et au chapitre III pour le cas de sphères

et Huffman (1983) pour des paramètres de taille complexes. Le calcul de la matrice S passe par le calcul des coefficients a_n et b_n donnés par les formules (C.19) et (C.12). Cette transformation ne pose pas *a priori* de problèmes numériques, sauf pour le cas que nous ne rencontrerons pas où la partie imaginaire de l'indice du paramètre de taille devient grande devant la partie réelle et pour lequel la fonction de Hankel est plus délicate à calculer[4].

C.1.4 Une définition possible de la fonction de phase en milieu absorbant

Calculons l'intensité diffusée I_{sca} en champ lointain de la particule en fonction de l'intensité incidente I_0 au centre de la particule, en prenant la norme au carré de (C.23):

$$\begin{pmatrix} I_{\parallel sca} \\ I_{-sca} \end{pmatrix} = \frac{2}{\pi r |n_1| k_0} e^{-2rIm(n_1)k_0} |\mathbf{S}_{k_1}(\theta)|^2 \begin{pmatrix} I_{\parallel 0} \\ I_{-0} \end{pmatrix} \tag{C.26}$$

La fonction de phase qui ne dépend que de la différence entre l'angle de sortie et l'angle d'entrée $\theta = \theta_{sca} - \theta_{inc}$ peut s'écrire:

$$p(\theta) = \alpha \frac{I_{sca}}{I_0} \tag{C.27}$$

où α est une constante que l'on doit déterminer par la condition de normalisation suivante que doit nécessairement vérifier la fonction de phase.

$$\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} p(\theta) d\theta = 1 \tag{C.28}$$

On obtient alors l'expression suivante:

$$p(\theta) = \frac{2\pi |S_{k_1}(\theta)|^2}{\int_0^{2\pi} |S_{k_1}(\theta)|^2 d\theta} \tag{C.29}$$

avec dans le cas de la polarisation p:

$$|S_{k_1}(\theta)|^2 = |a_0 + 2 \sum_0^{+\infty} a_n cos(n\theta)|^2 \tag{C.30}$$

$$\int_0^{2\pi} |S_{k_1}(\theta)|^2 d\theta = |a_0|^2 + 4\pi \sum_0^{\infty} |a_n|^2 \tag{C.31}$$

Dans le cas de la polarisation s, il suffit de remplacer les a_n par les b_n.

C.2 Bilan d'énergie dans un milieu hôte non-absorbant

On écrit les composantes des champs électrique et magnétique de la manière suivante:

$$\mathbf{E}_s = \begin{pmatrix} E_{s,r} \\ E_{s,\phi} \\ E_{s,z} \end{pmatrix} \quad et \quad \mathbf{H}_s = \begin{pmatrix} H_{s,r} \\ H_{s,\phi} \\ H_{s,z} \end{pmatrix} \tag{C.32}$$

Les valeurs moyennes temporelles des vecteurs de Poynting incident, de diffusion et d'extinction s'écrivent:

$$\mathbf{S}_{inc} = \frac{1}{2} Re(\mathbf{E}_i \wedge \mathbf{H}_i^*) \tag{C.33}$$

$$\mathbf{S}_{sca} = \frac{1}{2} Re(\mathbf{E}_s \wedge \mathbf{H}_s^*) \tag{C.34}$$

$$\mathbf{S}_{ext} = \frac{1}{2} Re(\mathbf{E}_i \wedge \mathbf{H}_s^* + \mathbf{E}_s \wedge \mathbf{H}_i^*) \tag{C.35}$$

4. Heckmann et Dvorak (2001)

Pour le calcul du flux du vecteur de Poynting à travers une surface fictive cylindrique à base circulaire, nous n'avons besoin que de la composante radiale du vecteur de Poynting.

$$\mathbf{S}_{sca}.\mathbf{e_r} = \frac{1}{2}Re(E_{s,\phi}H^*_{s,z} - E_{s,z}H^*_{s,\phi}) \quad (C.36)$$

$$\mathbf{S}_{ext}.\mathbf{e_r} = \frac{1}{2}Re(E_{i,\phi}H^*_{s,z} - E_{i,z}H^*_{s,\phi} + E_{s,\phi}H^*_{i,z} - E_{s,z}H^*_{i,\phi}) \quad (C.37)$$

Dans le cas d'un milieu non-absorbant, comme pour le cas d'une particule sphérique (voir chapitre I) la méthode classique du calcul des coefficients de diffusion et d'absorption consiste à calculer le flux du vecteur de Poynting à travers un cylindre fictif de surface A (Fig. C.2) entourant le cylindre diffuseur. Le flux d'énergie traversant A est:

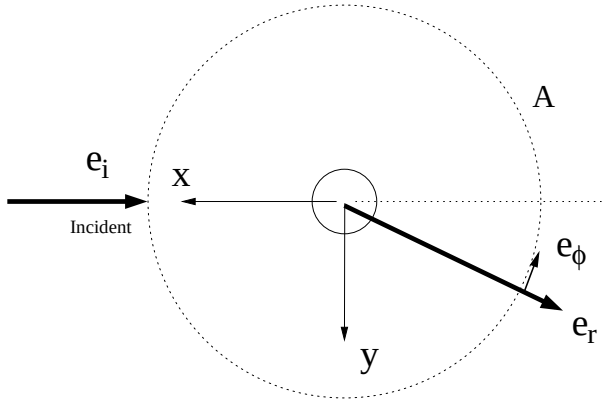


FIG. C.2 – *Surface cylindrique A entourant le cylindre diffuseur*

$$W_{abs} = -\int_A \mathbf{S}.\mathbf{e_r} dA \quad (C.38)$$

W_{abs} représente la quantité d'énergie absorbée dans le cylindre fictif par unité de temps $[ET^{-1}L^2]$. Comme le vecteur de Poynting peut se décomposer en une somme de trois termes $\mathbf{S} = \mathbf{S}_{inc} + \mathbf{S}_{sca} + \mathbf{S}_{ext}$, les flux à travers la surface se décomposent aussi en une somme de trois termes.

$$W_{abs} = W_{inc} - W_{sca} + W_{ext} \quad (C.39)$$

avec

$$W_{inc} = -\int_A \mathbf{S}_{inc}.\mathbf{e_r} dA \quad (C.40)$$

$$W_{sca} = +\int_A \mathbf{S}_{sca}.\mathbf{e_r} dA \quad (C.41)$$

$$W_{ext} = -\int_A \mathbf{S}_{ext}.\mathbf{e_r} dA \quad (C.42)$$

où W_{inc}, W_{sca} et W_{ext} sont les flux associés respectivement au vecteur de Poynting incident, de diffusion et d'extinction à travers la surface A; le vecteur $\mathbf{e_r}$ est normal et orienté vers l'extérieur de la surface A. Comme le vecteur de Poynting incident est constant, alors le flux incident entrant par l'une des faces du cylindre est strictement égal au flux sortant par la face oppposée. Par conséquent $W_{inc} = 0$. La quantité d'énergie absorbée par unité de temps s'obtient en retranchant le flux de diffusion au flux d'extinction.

$$W_{abs} = -W_{sca} + W_{ext} \quad (C.43)$$

En d'autres termes, l'extinction est dans ce cas due à la somme du flux absorbé et du flux de diffusion. Usuellement, le rayon du cylindre fictif est choisi suffisamment grand pour que l'on puisse calculer les flux en utilisant l'expression des champs électrique et magnétique en champ lointain. Par cette méthode, on obtient (Bohren et Huffman 1983) une expression des coefficients de diffusion et d'extinction pour les polarisations rectilignes.

$$W_{sca\parallel} = I_0 \frac{4}{k_h} \left[|b_0|^2 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} |b_n|^2 \right] \tag{C.44}$$

$$W_{ext\parallel} = I_0 \frac{4}{k_h} Re \left[b_0 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} b_n \right] \tag{C.45}$$

$$W_{sca-} = I_0 \frac{4}{k_h} \left[|a_0|^2 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} |a_n|^2 \right] \tag{C.46}$$

$$W_{ext-} = I_0 \frac{4}{k_h} Re \left[a_0 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} a_n \right] \tag{C.47}$$

où l'on a introduit l'intensité incidente I_0 définie par:

$$I_0 = S_{inc} = \frac{1}{2} |E_0|^2 Re(\frac{k_h^*}{\omega \mu_h}) \tag{C.48}$$

Les sections efficaces de diffusion C_{sca} et d'extinction C_{ext} (unité $[L]$ pour un système 2D) s'obtiennent en divisant les flux par l'intensité incidente I_0.

$$C_{sca} = \frac{W_{sca}}{I_0} \quad et \quad C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0} \tag{C.49}$$

Si on considère un système formé d'une collection de particules cylindriques toutes parallèles et disposées dans l'espace de manière aléatoire, alors on peut calculer les coefficient de diffusion K_{sca} et d'extinction K_{ext} $[L^{-1}]$ à partir de la valeur de la section efficace d'un cylindre. Si n est le nombre de particules par unité de volume $[L^{-3}]$ et f est la fraction volumique de particules de rayon a, on obtient sous l'approximation de la diffusion indépendante (diffuseurs non-corrélés) une expression du coefficient d'extinction et de diffusion

$$K_{sca} = nC_{sca} = \frac{f}{\pi a^2} C_{sca} \quad et \quad K_{ext} = nC_{ext} = \frac{f}{\pi a^2} C_{ext} \tag{C.50}$$

proportionnelle à la fraction volumique de particules.

$$K_{sca\parallel} = \frac{f}{\pi a} \frac{4}{X} \left[|b_0|^2 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} |b_n|^2 \right] \quad et \quad K_{ext\parallel} = \frac{f}{\pi a} \frac{4}{X} Re \left[b_0 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} b_n \right] \tag{C.51}$$

$$K_{sca-} = \frac{f}{\pi a} \frac{4}{X} \left[|a_0|^2 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} |a_n|^2 \right] \quad et \quad K_{ext-} = \frac{f}{\pi a} \frac{4}{X} Re \left[a_0 + 2 \sum_{n=1}^{+\infty} a_n \right] \tag{C.52}$$

où $X = k_h a$ est le paramètre de taille de la particule de rayon a dans le liant d'indice n_h. Cette méthode ne peut être utilisée que si le liant est non-absorbant. Dans le cas contraire, les champs diffusés sont nuls en champ lointain et, par conséquent, on obtient $W_{sca} = 0$.

C.3 Calcul des flux à travers la surface du cylindre plongé dans un milieu absorbant

Comme la théorie de Mie permet de calculer le champ diffusé partout dans l'espace, et notamment à la surface du cylindre, nous pouvons calculer une expression analytique des flux à travers la surface du diffuseur cylindrique.

C.3.1 Calcul des flux

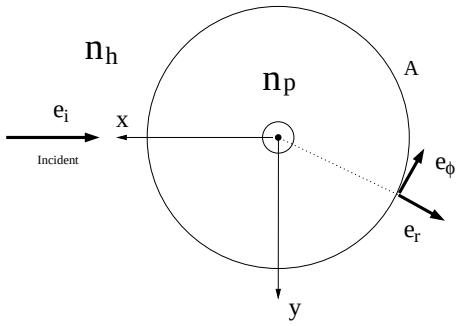


FIG. C.3 – *Calcul des flux à travers la surface du diffuseur*

Commençons par le calcul du flux du vecteur de Poynting incident qui ne dépend pas de la polarisation de l'onde incidente.

$$W_{inc} = -\int_A \mathbf{S}_{inc}.\mathbf{e_r} dA \tag{C.53}$$

Contrairement au cas d'un milieu hôte non-absorbant, W_{inc} est non-nul car il y a plus de flux entrant dans la particule que de flux sortant. Le vecteur de Poynting incident peut s'écrire de la manière suivante.

$$\mathbf{S}_{inc} = \frac{1}{2} Re(\mathbf{E}_{inc} \wedge \mathbf{H}^*_{inc}) = I_0 e^{-2\beta x} \mathbf{e_i} \tag{C.54}$$

où $I_0 = \frac{1}{2}|E_0|^2 Re(\frac{k_h^*}{\omega \mu_h})$ est l'intensité au centre de la particule (en z=0); et $\beta = \frac{2\pi}{\lambda_0} Im(n_h)$ est le nombre d'onde dans le liant. On décompose le flux W_{inc} en la différence de du flux entrant que l'on note $W_{inc,e}$, et du flux sortant $W_{inc,s}$.

$$W_{inc} = W_{inc,e} - W_{inc,s} \tag{C.55}$$

où

$$W_{inc,e} = I_0 \int_0^\pi e^{2\beta a sin(\theta)} a sin(\theta) d\theta \tag{C.56}$$

$$W_{inc,s} = I_0 \int_0^\pi e^{-2\beta a sin(\theta)} a sin(\theta) d\theta \tag{C.57}$$

On pose

$$F(X) = \frac{1}{2} \int_0^\pi e^{X sin(\theta)} d\theta \tag{C.58}$$

Ce qui permet d'exprimer W_{inc} en fonction de F:

$$W_{inc} = 2aI_0 \left[F(2\beta a) - F(-2\beta a)\right] \tag{C.59}$$

On montre sans difficulté que

$$\left[F(2\beta a) - F(-2\beta a)\right] = \frac{1}{2i} \int_0^\pi cos\left[i2\beta a sin(\theta) - \theta\right] d\theta \tag{C.60}$$

$$- \frac{1}{2i} \int_0^\pi cos\left[-i2\beta a sin(\theta) - \theta\right] d\theta \tag{C.61}$$

A l'aide de la relation (Abramowitz et Stegun 1965) suivante:

$$J_1(z) = \frac{1}{\pi}\int_0^{\pi} cos\left[zsin(\theta) - \theta\right] d\theta \tag{C.62}$$

où $J_1(z)$ est la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1 avec z complexe; on obtient l'expression recherchée:

$$W_{inc} = 2\pi a I_0 Im\left[J_1(i\beta 2a)\right] \tag{C.63}$$

Les flux de diffusion et d'extinction dépendent de la polarisation de l'onde incidente. Prenons le cas du champ électrique incident parallèle à la direction d'invariance(oz) (polarisation s). Les champs électriques incident et diffusé sont orientés selon (Oz), par conséquent les composantes $E_{i,\phi}$ et $E_{s,\phi}$ selon ϕ sont nulles. Les produits scalaires avec la normale à la surface des vecteurs de Poynting de diffusion (C.36) et d'extinction (C.37) deviennent:

$$\mathbf{S}_{sca}.\mathbf{e_r} = -\frac{1}{2}Re(E_{s,z}H^*_{s,\phi}) \tag{C.64}$$

$$\mathbf{S}_{ext}.\mathbf{e_r} = -\frac{1}{2}Re(E_{i,z}H^*_{s,\phi} + E_{s,z}H^*_{i,\phi}) \tag{C.65}$$

Les expressions des champs électrique et magnétique sont données par les relations (C.3-C.6) calculées $\rho = a$. En utilisant les relations (C.64) et (C.65), puis (C.41), (C.42), et

$$\int_0 2\pi e^{i(n-m)\phi} d\phi = 2\pi\delta_{np} \tag{C.66}$$

et

$$H_{-n} = (-1)^n H_n \tag{C.67}$$

$$H^{'}_{-n} = (-1)^n H^{'}_n \tag{C.68}$$

et enfin $b_{-n} = b_n$, on obtient:

$$W_{sca\|} = 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[i\frac{k^*_h}{\omega\mu_h}|b_0|^2 H_0(X)H^{*'}_0(X)\right] \tag{C.69}$$

$$+ \; 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[i\frac{k^*_h}{\omega\mu_h}2\sum_{n=1}^{+\infty}|b_n|^2 H_n(X)H^{*'}_n(X)\right]$$

$$W_{ext\|} = 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[-i\frac{k_h}{\omega\mu_h}\left(b_0 J^*_0(X)H^{*'}_0(X) + b^*_0 H^*_0(X)J^{'}_0(X)\right)\right] \tag{C.70}$$

$$+ \; 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[-i\frac{k_h}{\omega\mu_h}2\sum_{n=1}^{+\infty}\left(b_n J^*_n(X)H^{*'}_n(X) + b^*_n H^*_n(X)J^{'}_n(X)\right)\right]$$

Passons au cas où le champ électrique est dans le plan d'incidence (champ électrique perpendiculaire au plan (xOz)= polarisation p). Les champs magnétiques incident et diffusé sont orientés selon (Oz), par conséquent les composantes $H_{i,\phi}$ et $H_{s,\phi}$ selon ϕ du champ magnétique sont nulles. Les produits scalaires avec la normale à la surface des vecteurs de Poyting de diffusion (C.36) et d'extinction (C.37) deviennent:

$$\mathbf{S}_{sca}.\mathbf{e_r} = \frac{1}{2}Re(E_{s,\phi}H^*_{s,z}) \tag{C.71}$$

$$\mathbf{S}_{ext}.\mathbf{e_r} = \frac{1}{2}Re(E_{i,\phi}H^*_{s,z} + E_{s,\phi}H^*_{i,z}) \tag{C.72}$$

L'expression des champs électrique et magnétique sont données par les relations (C.14-C.17) calculées en $\rho = a$. En utilisant les relations (C.71) et (C.72), puis (C.41), (C.42), et encore la relation d'orthogonalité (C.66), puis (C.67) et (C.68), et enfin $a_{-n} = -a_n$, on obtient:

$$W_{sca-} = 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[i\frac{k_h^*}{\omega\mu_h}|a_0|^2 H_0(X)H_0^{*'}(X)\right] \quad (C.73)$$
$$+ \quad 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[i\frac{k_h^*}{\omega\mu_h}2\sum_{n=1}^{+\infty}|a_n|^2 H_n(X)H_n^{*'}(X)\right]$$
$$W_{ext-} = 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[i\frac{k_h}{\omega\mu_h}\left(a_0 H_0(X)J_0^{'*}(X) + a_0^* J_0(X)H_0^{'*}(X)\right)\right] \quad (C.74)$$
$$+ \quad 2\pi a|E_0|^2\frac{1}{2}Re\left[i\frac{k_h}{\omega\mu_h}2\sum_{n=1}^{+\infty}\left(a_n H_n(X)J_n^{'*}(X) + a_n^* J_n(X)H_n^{'*}(X)\right)\right]$$

C.3.2 Remarques

Dans le cas d'un milieu non-absorbant, les flux W_{sca} et W_{ext} (C.44-C.47) ne dépendent pas de la forme de la surface fictive qui entoure le diffuseur car le flux se conserve. Donc, en particulier, les flux calculés en champ lointain sont strictement égaux à ceux calculés à travers la surface du diffuseur tant que le milieu hôte est non-absorbant. Par conséquent, nous avons vérifié que l'on retrouvait les expressions des flux (C.44-C.47) à partir de (C.69-C.70 et C.73-C.74) dans le cas non-absorbant.

Annexe D

Modèles phénoménologiques de l'extinction en milieu absorbant: comparaison des modèles de Kuga et de Fardella dans le cas 2D

Le modèle de Kuga est un modèle qui, de façon heuristique, permet d'évaluer le coefficient d'extinction pour un système diffusant dont le milieu hôte est absorbant. Nous avons décrit ce modèle au chapitre III pour le cas d'une collection de sphères, nous donnons ici rapidement l'expression dans le cas d'une collection de diffuseurs cylindriques parallèles infinis et aléatoirement disposés. Nous montrons par ailleurs, tout comme pour le cas des sphères dans le cas particulier du régime d'homogénéisation, que ce modèle n'est pas correct en polarisation p quand le rapport d'indice des particules sur le liant est trop fort.

Le modèle de Fardella, plus évolué, essaye de prendre en compte le fait qu'une particule rayonne différemment dans un milieu absorbant parce que l'indice du milieu hôte est complexe. Ce modèle est intéressant quand il s'agit de calculer exactement les flux de diffusion et d'extinction par une particule. Par contre, quand ce résultat est utilisé pour calculer le coefficient d'extinction pour un ensemble de particules, une approximation qui était dejà faite dans le modèle de Kuga est nécessaire à l'établissement de la formule de Fardella.

Finalement, une comparaison entre le résultat de Kuga et Fardella montre une quasi-équivalence pour le calcul du coefficient d'extinction et une légère différence sur le coefficient de diffusion, mais qui n'apparaît que dans les cas où l'absorption devient très grande devant la diffusion.

D.1 Extinction et diffusion dans un milieu absorbant par le modèle de Kuga

L'extinction est supposée décomposable en une somme de deux contributions indépendantes et découplées. La première contribution à l'extinction est l'absorption du flux dans le liant; la seconde contribution est due à l'absorption et à la diffusion par les particules.

Les coefficients de d'extinction, de diffusion et l'albedo s'expriment de la façon suivante:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_h'' (1-f) + \frac{f}{\pi a^2} C_{ext} \tag{D.1}$$

$$K_{sca} = \frac{f}{\pi a^2} C_{sca} \tag{D.2}$$

$$\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}} \tag{D.3}$$

En régime de diffusion indépendante, les coefficients d'extinction et de diffusion sont linéaires avec la fraction volumique f de particules, et dépendent des sections efficaces d'extinction C_{ext} [L] et de diffusion C_{sca} classiques d'une particule plongée en milieu non-absorbant, dont on trouvera les expressions en annexe C formules (C.51) ou (C.52) selon la polarisation p ou s. L'extinction due à l'absorption du liant est corrigée d'un facteur $(1-f)$. Le seul couplage entre l'absorption du liant d'une part et la diffusion et l'absorption des particules d'autre part, provient du terme $(1-f)$ dans l'équation (D.1). De même que pour le cas des sphères, cette correction peut paraitre douteuse.

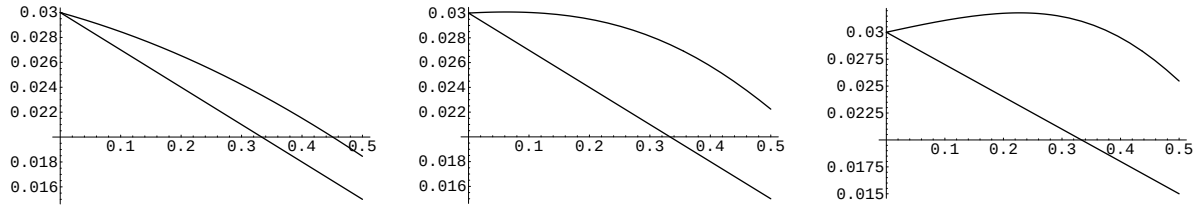
Dans la limite du cas statique (les objets sont supposés très petits devant la longueur d'onde), le mélange de particules non-absorbantes dans un milieu absorbant peut être considéré comme un milieu effectif homogène (pas de diffusion) d'indice n_{eff}. Sous cette hypothèse, on peut utiliser la formule de Bruggeman [1] pour calculer l'indice effectif du milieu composite. Afin de vérifier la linéarité de l'extinction avec la fraction volumique de particules, on peut calculer l'extinction par la formule $K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im[n_{eff}]$ où $n_{eff} = \sqrt{\epsilon_{eff}}$ avec ϵ_{eff} vérifiant l'équation suivante (valable pour un système 2D et la polarisation p [2]).

$$\frac{\epsilon_h - \epsilon_{eff}}{\epsilon_h + \epsilon_{eff}}(1-f) + \frac{\epsilon_p - \epsilon_{eff}}{\epsilon_p + \epsilon_{eff}} f = 0 \tag{D.4}$$

où $\epsilon_p = n_p^2$ et $\epsilon_h = n_h^2$ sont les permittivités respectives de la particule et du milieu hôte. La solution de cette équation est:

$$\epsilon_{eff} = \frac{(\epsilon_h - \epsilon_p)(1-2f) + \sqrt{[(\epsilon_h - \epsilon_p)(1-2f)]^2 + 4\epsilon_h \epsilon_p}}{2} \tag{D.5}$$

La comparaison (Fig.D.1) entre le terme $Im(n_h)(1-f)$ employée par Kuga et la partie imaginaire



(a) $n_p = 2.21$ (b) $n_p = 3.21$ (c) $n_p = 4.21$

FIG. D.1 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (en régime d'homogénéisation) en fonction de la fraction volumique de particules pour différents indices de particules n_p dans un milieu hôte d'indice $n_h = 1.46 + i0.03$. Comparaison avec la dépendance linéaire employée par Kuga: $Im(nh)(1-f)$*

de l'indice effectif montre un désaccord important qui s'accentue avec le contraste d'indice. La diminution de l'absorption du milieu moyen est trop fortement évaluée dans le terme de Kuga. Pour $n_p = 4.21$, l'absorption du milieu, contre toute attente, a même tendance à augmenter avec la fraction volumique. Rappelons que cette petite étude n'est valable que pour des particules suffisamment petites pour que la diffusion soit négligeable. Nous nous gardons bien de conclure sur une quelconque dépendance de l'absorption du système avec la fraction volumique de particules pour le cas général (par exemple pour le régime de diffusion de Mie) qui n'a rien d'évident *a priori*.

1. Bruggeman (1935); Berthier (1993)
2. Calvo-Perez (1999)

D.2 Extinction et diffusion dans un milieu absorbant par le modèle de Fardella

Les idées de Fardella ont été exposées dans le chapitre III pour le cas d'un diffuseur sphérique. Elles sont décrites en détails dans la thèse de Fardella (1995) et dans un article de conférence (Fardella et Berthier 1994). Dans cette section nous nous proposons de transposer les idées de Fardella au cas d'un diffuseur cylindrique. Il est nécessaire de calculer les flux de diffusion, d'absorption et d'extinction à travers un cylindre fictif reposant sur la surface d'un diffuseur cylindrique. Ces expressions qui n'existent pas à notre connaissance dans la littérature sont présentées en Annexe C. Par la méthode de Fardella, on peut calculer à la fois le coefficient d'extinction et le coefficient de diffusion. Ainsi l'albedo peut être déterminé. Fardella propose une méthode de calcul des coefficients de diffusion et d'extinction qui évite la définition d'une section efficace en milieu absorbant. Il définit des rapports de flux d'énergie q_{ext} et q_{sca}.

$$q_{ext} = \frac{W_{ext}}{W_{inc}} \tag{D.6}$$

$$q_{sca} = \frac{W_{sca}}{W_{inc}} \tag{D.7}$$

Comme au chapitre III pour le cas des sphères pour une collection de particules de fraction volumique f, les coefficients de diffusion K_{sca} et d'extinction K_{sca} et l'albedo ϖ du système s'obtiennent par les formules:

$$K_{ext} = 2\beta(1 + f q_{ext}) \tag{D.8}$$

$$K_{sca} = 2\beta f q_{sca} \tag{D.9}$$

$$\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}} = \frac{f q_{sca}}{(1 + q_{ext})} \tag{D.10}$$

Cette formulation cache un autre problème remarqué par Hespel (1999): les coefficients de diffusion et d'extinction sont évalués par un bilan énergétique pour une couche d'épaisseur mésoscopique contenant des diffuseurs dans laquelle l'intensité incidente est supposée constante. Bien qu'elle ne soit pas faite au même moment de la démonstration, cette approximation est identique à celle qui consiste à évaluer la section efficace dans un milieu absorbant par la formule $C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0}$ comme dans le modèle de Kuga.

D.3 Comparaison Fardella-Kuga

Pour le cas de particules d'indices $n_p = 1.59$ plongées dans un milieu dont la partie réelle de l'indice $Re(n_h) = 1.33$ en une fraction volumique de $f = 10\%$, pour un particule de rayon $a = \frac{\lambda}{2}$, nous comparons (Tab. D.1) les résultats du calcul du libre parcours moyen d'extinction $l_{ext} = \frac{1}{K_{ext}}$ et de l'albedo ϖ obtenus par les méthodes de Kuga et Fardella. Pour ce système particulier,

		$Im(n_h)$				
		0.001	0.01	0.03	0.1	0.2
Fardella	L_{ext}	4.996	3.310	1.8867	0.7449	0.3939
	ϖ	0.9432	0.6238	0.3567	0.153	0.1028
Kuga	L_{ext}	4.995	3.311	1.8933	0.7577	0.4080
	ϖ	0.9435	0.6254	0.3576	0.1431	0.077

TAB. D.1 – *Comparaison Fardella-Kuga,* $Re(n_h) = 1.33$, $n_p = 1.594$, $f = 0.1$, $a = \frac{\lambda}{2}$

les résultats obtenus par les deux modèles sont très proches. Ils sont encore plus proches pour

des contrastes d'indice plus forts et des particules plus petites (résultats non-représentés). On obtient quels que soient les divers paramètres du système des résultats très semblables pour le libre parcours moyen d'extinction. Les différences auraient dû *a priori* augmenter avec la partie imaginaire du liant car le modèle de Fardella calcule correctement le flux W_{ext} d'extinction de la particule, mais comme l'absorption prend le pas sur la diffusion, les différences relatives sont minimes. Par contre, les coefficients de diffusion pour de fortes parties imaginaires de l'indice du liant diffèrent légèrement, mais notablement. Par conséquent, les différences obtenues sur l'albedo n'interviennent que pour des cas où l'absorption est très forte comparée à la diffusion. Les très faibles différences obtenues entre l'expression de Kuga et celle de Fardella sont dues au terme en $(1 - f)$ présent dans les deux formulations.

Pour conclure, les différences entre l'albedo de Kuga et celui de Fardella n'interviennent que pour des albedos proche de 0. Au chapitre IV, pour les comparaisons aux résultats numériques exactes d'une couche diffusante 2D, on ne représentera que le résultat de Kuga assimilé identique au résultat de Fardella.

Annexe E

Expression de l'extinction en milieu absorbant et diffusant par les modèles de Foldy et Keller pour un système 2D

Nous exposons ici rapidement les démonstrations des expressions du coefficient d'extinction par les modèles de Foldy et de Keller pour le cas d'un milieu diffusant contenant des cylindres infinis tous parallèles et disposés aléatoirement. Le modèle de Foldy en milieu absorbant est rigoureux tant la diffusion est indépendante. Le modèle de Keller prend en compte un effet de diffusion dépendante, mais la formule n'est rigoureuse que dans le cas scalaire et pour des diffuseurs petits devant la longueur d'onde. Toutefois son extension pour des diffuseurs de Mie 2D est intéressante car elle reproduit certains des résultats numériques exacts obtenus au chapitre IV.

La permittivité effective dans la théorie de la diffusion multiple présentée au chapitre II, s'exprime en fonction de l'opérateur de diffusion simple d'une particule.

La première étape est l'identification de cet opérateur avec la matrice de diffusion de Mie, car cette matrice est calculable en milieu absorbant. Dès lors les modèles de Foldy et de Keller s'expriment en fonction de quantité calculable sans difficultés.

E.1 Identification de l'opérateur t avec la matrice de diffusion S

L'opérateur $\mathbf{t}$ relie le champ total au champ incident par la relation (en notation compacte):

$$\mathbf{E} \quad = \quad \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{G_1 t E}_{inc} \tag{E.1}$$

Comme le champ total est la somme du champ incident et du champ diffusé

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{inc} + \mathbf{E}_{sca},$$

le champ diffusé est explicitement:

$$\mathbf{E}_{sca}(\mathbf{r}) = \int \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}_1}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'')\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}'')d^2\mathbf{r}'d^2\mathbf{r}''. \tag{E.2}$$

La transformée de Fourier 2D à deux variables directe et inverse de $\mathbf{t}$ est écrite selon la convention suivante:

$$\overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}(\mathbf{k}', \mathbf{k}'') \quad = \quad \int \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'')e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}'}e^{i\mathbf{k}''\mathbf{r}''}d^2\mathbf{r}'d^2\mathbf{r}'' \tag{E.3}$$

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \quad = \quad \int \overset{\sim}{\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{t}}}(\mathbf{k}', \mathbf{k}'')e^{i\mathbf{k}'\mathbf{r}'}e^{-i\mathbf{k}''\mathbf{r}''}\frac{d^2\mathbf{k}'}{(2\pi)^2}\frac{d^2\mathbf{k}''}{(2\pi)^2} \tag{E.4}$$

On suppose que le champ incident prend la forme suivante dans la base de Bohren et Huffman:

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel inc} \\ E_{-inc} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{\parallel 0} \\ E_{-0} \end{pmatrix} e^{ik_1 z} = \mathbf{E}_0 e^{ik_1 z} \tag{E.5}$$

D'autre part, il existe une relation entre le champ incident et le champ diffusé pour les polarisations parallèles et perpendiculaire au plan de diffusion en champ lointain selon:

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel sca} \\ E_{-sca} \end{pmatrix} = \sqrt{\frac{2}{\pi r k_1}} e^{i\frac{3\pi}{4}} e^{irk_1} \mathbf{S}_{k_1}(\theta) \begin{pmatrix} E_{\parallel 0} \\ E_{-0} \end{pmatrix} \tag{E.6}$$

Où $\mathbf{S}_{k_1}$ est la matrice de diffusion avec $\theta = \pi - \phi$ ($\theta = 0$ pour la direction avant). Les éléments de la matrice du diffusion S quand le liant est absorbant sont donnés par la formule (C.24).

La relation entre le champ diffusé et le champ incident (E.2) est valable quel que soit le point d'observation $\mathbf{r}$. En particulier en champ lointain, on obtient en utilisant la fonction de Green en champ lointain 2D (A.32), on obtient une forme qui permet d'introduire la TF de l'opérateur $\mathbf{t}$ si le champ incident prend la forme (E.5).

$$\mathbf{E_{sca}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi}} e^{i\frac{\pi}{4}} \frac{e^{ik_1 r}}{\sqrt{k_1 r}} \overleftrightarrow{\Delta}_{\mathbf{T}} \int e^{-ik_1 \mathbf{u_r}\cdot\mathbf{r}'} d^2\mathbf{r}' \int \overleftrightarrow{\mathbf{t}}\ (\mathbf{r}', \mathbf{r}'') e^{ik_1 \mathbf{u_x}\mathbf{r}''} \mathbf{E_0} d^2\mathbf{r}'' \tag{E.7}$$

$$= \frac{1}{4}\sqrt{\frac{2}{\pi}} e^{i\frac{\pi}{4}} \frac{e^{ik_1 r}}{\sqrt{k_1 r}} \overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{t}}}\ (k_1\mathbf{u_r}, k_1\mathbf{u_x})\mathbf{E_0} \tag{E.8}$$

En comparant (E.6) et (E.8), on peut identifier l'opérateur de diffusion $\mathbf{t}$ à la matrice $\mathbf{S}_{k_1}$.

$$\overleftrightarrow{\Delta}_{\mathbf{T}} \overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{t}}}\ (k_1\mathbf{u_r}, k_1\mathbf{u_z}) = i4S_{k_1}(\theta) \tag{E.9}$$

avec $\theta = \mathbf{u}_r \cdot \mathbf{u}_x$ Dans le cas particulier de la direction avant ($\theta = 0$),

$$\overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1}) = i4S_{k_1}(0) \tag{E.10}$$

Nous pouvons maintenant aborder le calcul des expressions de la permittivité effective de Foldy et de Keller pour une collection de cylindres en milieu absorbant.

E.2 Généralisation de la théorie de Foldy pour un cylindre infini plongé en milieu absorbant

Nous avons vu au chapitre II que l'approximation de Foldy de l'opérateur de masse peut s'écrire selon l'expression suivante.

$$\sum = \bigcirc$$

Opérateur de Masse pour une distribution très diluée de diffuseurs (E.11)

En utilisant la relation entre la permittivité effective, l'opérateur de masse (II.46) et l'approximation de Foldy (E.11), on obtient une expression de la permittivité effective en fonction de l'opérateur de diffusion d'une particule et de la fraction volumique f.

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + \frac{f}{\pi a^2} \frac{\overset{\sim}{\overleftrightarrow{\mathbf{t}}}\ (\mathbf{k_1}, \mathbf{k_1})}{k_0^2} \tag{E.12}$$

Si on utilise maintenant la relation entre l'opérateur de diffusion d'une particule et la matrice de diffusion S de Bohren et Huffman (E.10), on obtient:

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_1 + i\frac{f}{\pi a^2}\frac{1}{k_0^2}4S_{k_1}(0) \tag{E.13}$$

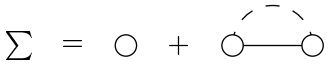
Le coefficient d'extinction s'obtient immédiatement par:

$$K_{ext} = \frac{4\pi}{\lambda_0} Im(\sqrt{\epsilon_{eff}}) \tag{E.14}$$

L'indice k_1 en dessous de la matrice de diffusion indique que S doit être évaluée pour le nombre d'onde k_1 dans le milieu hôte absorbant.

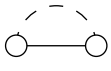
E.3 Généralisation de la théorie de Keller pour un cylindre infini plongé en milieu absorbant

L'approximation de Keller pour l'opérateur de masse peut s'écrire selon:



Opérateur de Masse pour une distribution de particules faiblement contrastées (E.15)

Le premier terme est l'approximation de Foldy calculé précédemment. Il faut calculer le second terme que nous appelons l'Opérateur de Diffusion Double Corrélé (ODDC) dans l'espace de Fourier. Ce calcul est détaillé dans l'annexe B, et on obtient:

 $(\mathbf{k}) = \left(\frac{f}{\pi a^2}\right)^2 (i4S_{k_1}(0))^2 \int_0^{+\infty} \frac{i\pi}{2} H_0^{(1)}(k_1 r) J_0(kr) r g_2(r) dr$

Opérateur de diffusion double corrélé pour un système 2D (E.16)

Où g_2 est la fonction de corrélation de paire qui dépend de la fraction volumique f (on trouvera un graphique de cette fonction au chapitre II évalué par un grand nombre de tirage aléatoire). Cette formule n'est rigoureuse que dans le cas limite de particules de tailles ponctuelles sphériques et pour des ondes scalaires. Sa validité pour des particules plus grandes et pour des ondes électromagnétiques n'est pas évidente.

Sous l'approximation de Keller, le nombre d'onde effectif k_{eff} pour des diffuseurs de matrice de diffusion S est donc solution de l'équation suivante que l'on obtient en utilisant (III.58), (III.87) et (E.16).

$$k_{eff}^2 = k_1^2 + \frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0) + \left(\frac{f}{\pi a^2} i4S_{k_1}(0)\right)^2 \int_0^{\infty} \frac{i\pi}{2} H_0^{(1)}(k_1 r) J_0(k_{eff} r) r g_2(r) dr \tag{E.17}$$

Cette équation se résoud exactement comme dans le cas 3D (voir fin du chapitre III).

Alors que la fonction de Green 3D décroit en $1/r$, la fonction de Green 2D décroit asympotiquement beaucoup plus lentement en $1/\sqrt{r}$. La portée des corrélations est donc plus importante dans le cas 2D. Notamment quand le liant est absorbant, la décroissance exponentielle de la fonction de Green contraste avec la décroissance en $1/\sqrt{r}$ bien plus que dans le cas 3D.

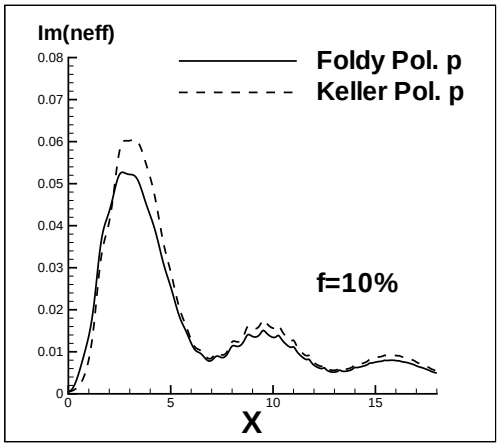
E.4 Résultats numériques des modèles de Kuga, Foldy et Keller généralisés

Nous reportons le comportement de l'extinction en fonction du paramètre de taille pour une fraction volumique fixée et un liant absorbant ou non. Deux cas sont choisis en rapport avec les calculs numériques du chapitre IV.

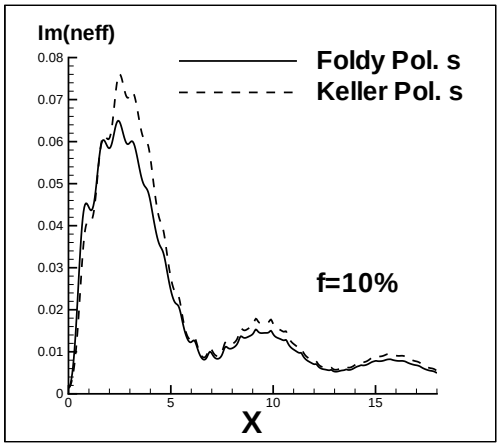
- $n_p = 2.21,\ Re(n_h) = 1.46$ Fig. IV.14
- $n_p = 1.59,\ Re(n_h) = 1.33$ Fig. E.2

On peut grâce à ces courbes repérer rapidement les résonances de Mie.

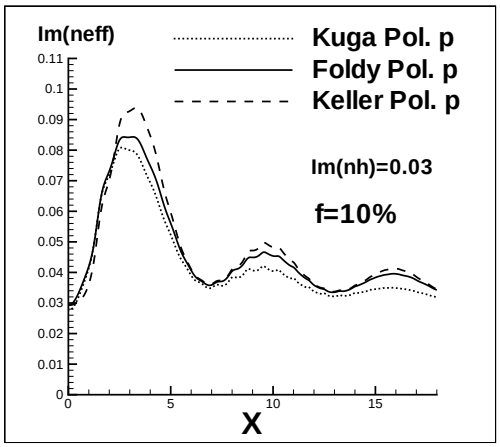
Pour le cas des fortes fractions volumiques, le modèle de Keller s'écarte du modèle de Foldy pour des paramètres de taille proches des résonances de Mie, que le milieu hôte soit absorbant ou non.



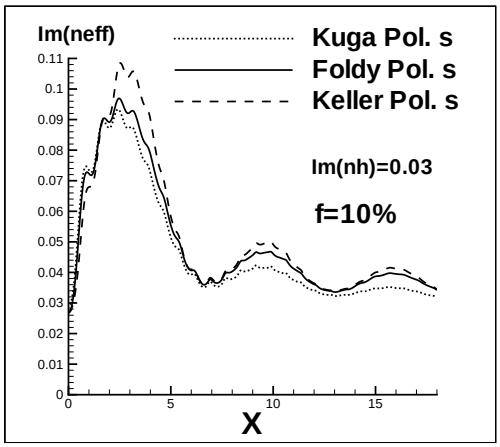
(a) $Im(n_h) = 0,\ f = 10\%$, Pol. p



(b) $Im(n_h) = 0,\ f = 10\%$, Pol. s

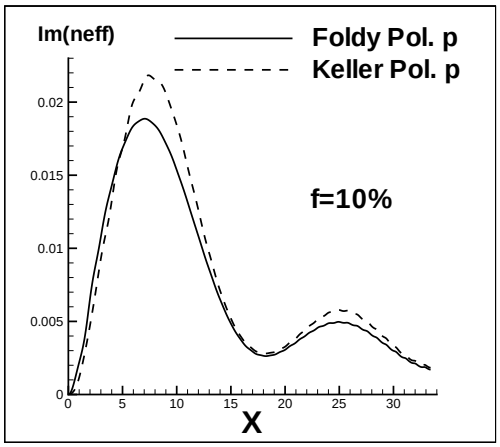


(c) $Im(n_h) = 0.03,\ f = 10\%$, Pol. p

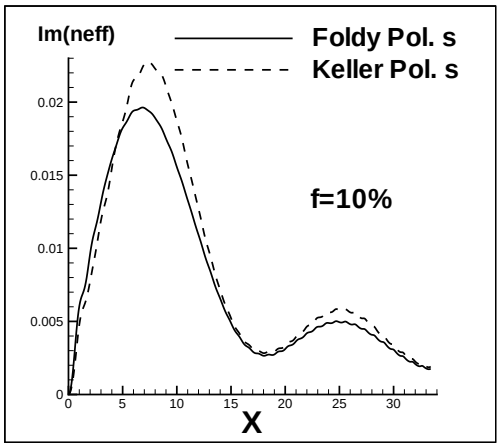


(d) $Im(n_h) = 0.03,\ f = 10\%$, Pol. s

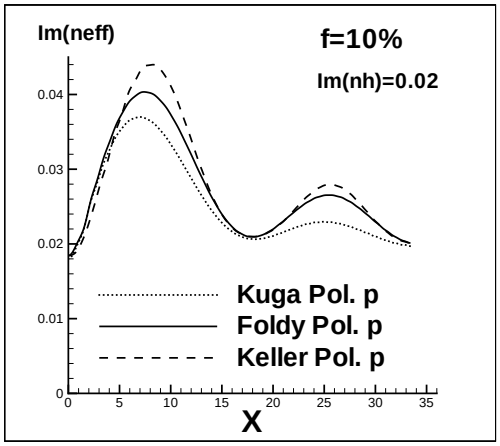
FIG. E.1 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (équivalente à l'extinction) en fonction du paramètre de taille des particules pour une fraction volumique fixée et pour un liant absorbant ou non.* $Re(n_h) = 1.46,\ n_p = 2.21$



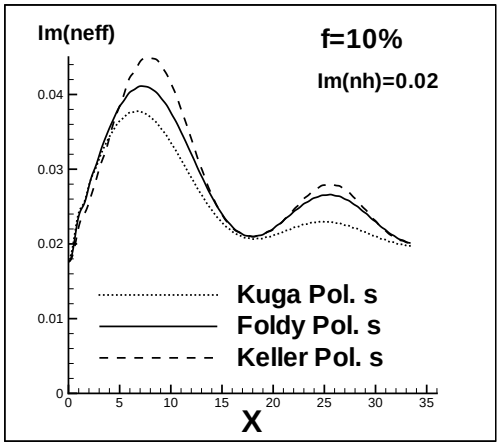
(a) $Im(n_h) = 0$, $f = 10\%$, Pol. p



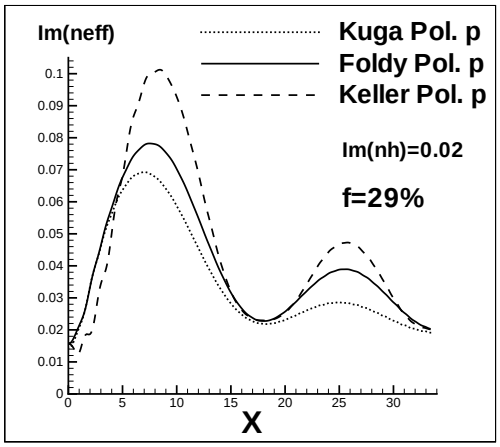
(b) $Im(n_h) = 0$, $f = 10\%$, Pol. s



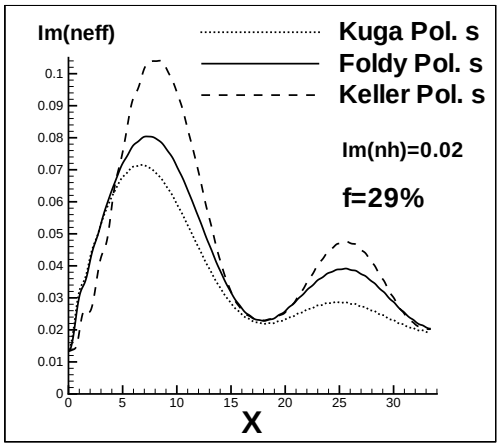
(c) $Im(n_h) = 0.02$, $f = 10\%$, Pol. p



(d) $Im(n_h) = 0.02$, $f = 10\%$, Pol. s

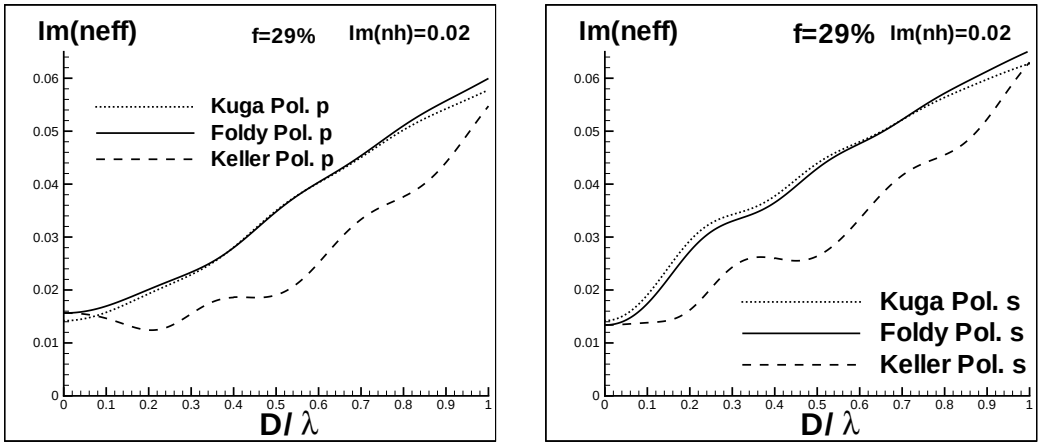


(e) $Im(n_h) = 0.02$, $f = 29\%$, Pol. p



(f) $Im(n_h) = 0.02$, $f = 29\%$, Pol. s

FIG. E.2 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (équivalente à l'extinction) en fonction du paramètre de taille des particules pour une fraction volumique fixée et pour un liant absorbant ou non.* $Re(n_h) = 1.33$, $n_p = 1.59$



(a) Polarisation p

(b) Polarisation s

FIG. E.3 – *Partie imaginaire de l'indice effectif (équivalente à l'extinction) en fonction du paramètre de taille des particules pour une fraction volumique fixée et pour un liant absorbant.* $Re(n_h) = 1.33$, $Im(n_h) = 0.02$, $f = 29\%$ $n_p = 1.59$

Annexe F

Relation entre la luminance et les champs pour un système 2D-1D périodique

Au chapitre II, nous avons introduit la relation entre la luminance L au point $\mathbf{r}$ dans la direction $\mathbf{u}$ et la fonction de corrélation d'un champ scalaire telle qu'elle est donnée par Walther (1968):

$$L(\mathbf{r},\mathbf{u}) = \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 cos\theta \int_\sigma \Gamma\left(\mathbf{r}+\frac{\boldsymbol{\rho}}{2},\mathbf{r}-\frac{\boldsymbol{\rho}}{2}\right) e^{-ik\mathbf{u}_\perp\cdot\boldsymbol{\rho}} d^2\boldsymbol{\rho} \tag{F.1}$$

où Γ est la fonction de corrélation du champ:

$$\Gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}') = \left\langle \mathbf{E}(\mathbf{r})\mathbf{E}^*(\mathbf{r}')\right\rangle \tag{F.2}$$

Dans le vide $k = k_0$. Le signe <> indique qu'il s'agit de la moyenne sur un ensemble de réalisation. Les notations sont définies sur la figure F.1.

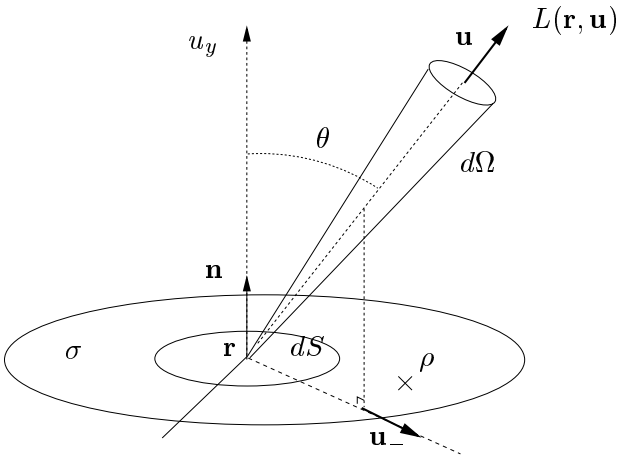


FIG. F.1 – *Notations pour la luminance $L(\mathbf{r},\mathbf{u})$: le vecteur ρ est sur la surface d'intégration σ dans le plan de la surface infinitésimale dS orienté selon $\mathbf{n}$. $\mathbf{u}$ est orienté selon le vecteur d'onde $\mathbf{k}$.*

Plutôt que d'exprimer la luminance comme une intégrale sur $\boldsymbol{\rho}$ autour du point $\mathbf{r}$ dans le plan de la surface infinitésimale $d\mathbf{S}$, on peut aboutir[1] à une expression de la luminance où la variable

1. Voir Apresyan et Kravtsov (1996) et Greffet et Nieto-Vesperinas (1998)

d'intégration est maintenant le vecteur d'onde autour de $\mathbf{u}$:

$$L(\mathbf{r},\mathbf{u}) = K|u_y| \int \left\langle a\left(\mathbf{u}_- + \frac{\mathbf{u}'_-}{2}\right) a^*\left(\mathbf{u}_- - \frac{\mathbf{u}'_-}{2}\right)\right\rangle e^{ik_0\mathbf{u}'_\perp\cdot\mathbf{r}_\perp} d\mathbf{u}'_- \tag{F.3}$$

Avec $K = \frac{1}{2}Re(\frac{k^*}{\omega\mu})$; $\mathbf{u} = (u_y, \mathbf{u}_-)$ où u_y est la projection selon la direction y et $\mathbf{u}_-$ est la projection selon le plan (xOz); les $a(\mathbf{u}')$ sont les amplitudes des ondes planes de direction $\mathbf{u}'$ reliées au champ $E(\mathbf{r})$ au point $\mathbf{r}$ par sa décomposition en onde plane suivante (pour une réalisation de système):

$$E(\mathbf{r}) = \int a(\mathbf{u}_-) e^{ik_0\mathbf{u}\cdot\mathbf{r}} e^{ik_0 u_y y} d\mathbf{u}_- \tag{F.4}$$

Nous nous proposons d'appliquer cette relation au cas particulier de notre système périodique afin de calculer les luminances réfléchies par la couche diffusante. On s'intéresse à la relation entre la luminance et la fonction de corrélation du champ sur la surface de la couche étudiée en $y = 0$ dans le milieu I. De plus le système est invariant selon z, on prendra $z = 0$. Par conséquent le développement en ondes planes devient pour nos ondes électromagnétiques (pour simplifier prenons le cas scalaire de la polarisation S):

$$E^I(x, y = 0) = \int a(u_x) e^{ik_0 u_x x} du_x \tag{F.5}$$

Par ailleurs, nous avions dejà écrit précédemment le développement en ondes planes des ondes réfléchies pour le système périodique étudié.

$$E^I(x, y = 0) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} a_n e^{i\alpha_n x} \tag{F.6}$$

Ce qui permet d'identifier l'amplitude des ondes planes à partir de (F.4) et (F.6):

$$a(u_x) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} a_n \delta\left(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}\right) \tag{F.7}$$

Développons l'une des quantités présente dans la formulation électromagnétique de la luminance (F.3).

$$\begin{aligned} < a(u_x + \frac{u'_x}{2}) a^*(u_x - \frac{u'_x}{2}) > \quad &= \quad \sum_{l=-\infty}^{+\infty} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} < a_l a_m^* > \\ &+ \quad \delta\left(u_x + \frac{u'_x}{2} - \frac{\alpha_l}{k_0}\right) \delta\left(u_x - \frac{u'_x}{2} - \frac{\alpha_m}{k_0}\right) \end{aligned} \tag{F.8}$$

Sous les sommations discrètes, les termes non nuls vérifient le système d'équations suivant:

$$\begin{aligned} u_x + \frac{u'_x}{2} - \frac{\alpha_l}{k_0} &= 0 \\ u_x - \frac{u'_x}{2} - \frac{\alpha_m}{k_0} &= 0 \end{aligned} \tag{F.9}$$

On pose

$$\begin{aligned} l &= n + p \\ m &= n - p \end{aligned} \tag{F.10}$$

Le système d'équations est équivalent à:

$$\begin{aligned} u_x - \frac{\alpha_n}{k_0} &= 0 \\ u'_x - \frac{\alpha_{2p} - \alpha_{inc}}{k_0} &= 0 \end{aligned} \tag{F.11}$$

Le changement de variable (F.10) et le système d'équations (F.11) aboutit à une reformulation de l'égalité (F.8):

$$\left\langle a\left(u_x + \frac{u'_x}{2}\right) a^*\left(u_x - \frac{u'_x}{2}\right)\right\rangle = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}) \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \left\langle a_{n+p} a^*_{n-p}\right\rangle \delta\left(u'_x - \frac{\alpha_{2p} - \alpha_{inc}}{k_0}\right) \tag{F.12}$$

Il est maintenant possible d'écrire l'expression de la luminance pour notre système périodique:

$$L(x, \mathbf{u}) = K \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{k_0} \delta\left(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}\right) \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \left\langle a_{n+p} a^*_{n-p}\right\rangle e^{i2p\frac{2\pi}{L}x} \tag{F.13}$$

La première sommation selon la variable n et la distribution de Dirac indiquent que la luminance ne peut prendre des valeurs non-nulles que pour certaines directions discrètes telles que $u_x = \frac{\alpha_n}{k_0}$. Remarquons que la périodicité selon x entraine une dépendance de la luminance selon cette variable, dans le cas où les amplitudes des ondes planes d'ordres différents sont corrélées. Par exemple, si on prend $n = 0$, si les amplitudes respectives des ordre -1 et +1 (a_{-1} et a_{+1}) sont corrélés, alors la luminance est une fonction de x.

Le flux reçu par un détecteur en champ lointain est la somme des luminances intégrées sur la surface d'émission, c'est à dire sur l'interface de sortie suivant x. Cette quantité appelée flux radiatif s'écrit:

$$J(\mathbf{u}) = cos\theta \int_\sigma L(\mathbf{r}, \mathbf{u}) d^2\mathbf{r} \tag{F.14}$$

Si la surface d'intégration est très grande devant L, alors les termes oscillants en $e^{i2p\frac{2\pi}{L}x}$ apportent une contribution nulle à l'intégrale (F.14). Il ne reste que le terme en $< a_n a^*_n >$. Par conséquent la dépendance en x de la luminance n'a aucun effet sur la mesure des flux rayonnés.

Appliquons cette formule au cas du système que nous voulons modéliser: une couche diffusante en moyenne invariante par translation [2]. Or la luminance réfléchie par une couche invariante par translation suivant x éclairée par une onde plane ne dépend pas de x. Il s'en suit que pour un tel système les $< a_{n+p} a^*_{n-p} >$ sont nuls sauf pour $p = 0$. Sous cette hypothèse, la luminance se simplifie considérablement.

$$L(\mathbf{u}) = K \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{k_0} \delta\left(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}\right) \left\langle |a_n|^2 \right\rangle \tag{F.15}$$

Nous pouvons maintenant calculer la BRDF de notre système à partir de sa définition (V.5) et de l'expression de la luminance incidente $L_{inc}(u_x) = K|a_{inc}|^2 \delta(u_x - \frac{\alpha_{inc}}{k_0})$ (on supposera dans la suite que $a_{inc} = 1$):

$$\rho''(x, \mathbf{u}, \mathbf{u}_{inc}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \delta\left(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}\right) \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \left\langle a_{n+p} a^*_{n-p}\right\rangle e^{i2p\frac{2\pi}{L}x} \tag{F.16}$$

2. Conséquence de l'uniformité du milieu dans la cellule primitive.

Cette BRDF est non-locale puisqu'elle dépend de x. Pour le cas d'un milieu diffusant en moyenne invariant par translation suivant x la BRDF devient locale:

$$\rho''(\mathbf{u}, \mathbf{u}_{inc}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \delta\left(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}\right) \left\langle |a_n|^2 \right\rangle \tag{F.17}$$

La BRDF prend des valeurs infinies pour les directions de diffraction du réseau. Pour comparer la BRDF du milieu périodique à celle du milieu infini, on peut, suivant Thibaud (2000) associer un angle solide à chaque ordre de diffraction. Nous allons pour cela remplacer $\delta(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0})$ par $\frac{1}{\Delta u_{x,n}}$ avec $\Delta u_{x,n} = \frac{\alpha_{n+1} - \alpha_n}{k_0} = \frac{2\pi}{k_0 L}$. Cette approximation est d'autant valable que la période augmente. Utilisons cette relation pour le cas particulier de la luminance réfléchie d'ordre n qui s'écrit:

$$L(\mathbf{u}_n) = K \frac{\gamma_n}{k_0} \left\langle |a_n|^2 \right\rangle \delta\left(u_x - \frac{\alpha_n}{k_0}\right) \approx \frac{\gamma_n}{k_0} \left\langle |a_n|^2 \right\rangle \frac{L k_0}{2\pi} \tag{F.18}$$

Ainsi on obtient la BRDF totale:

$$\rho''(\mathbf{u}_n, \mathbf{u}_{inc}) = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \frac{k_0 L}{2\pi} \left\langle |a_n^2| \right\rangle \tag{F.19}$$

Cette BRDF contient la partie diffuse incohérente et la partie spéculaire cohérente. La BRDF diffuse s'obtient en soustrayant la partie cohérente de la BRDF totale.

$$\rho''_{sca}(\mathbf{u}_n, \mathbf{u}_{inc}) = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \frac{k_0 L}{2\pi} \left(\left\langle |a_n^2| \right\rangle - |\left\langle a_n \right\rangle|^2 \right) \tag{F.20}$$

Par une procédure identique, on obtient la BTDF à la sortie de la couche diffusante en $y = e$:

$$\tau''_{sca}(\mathbf{u}_n, \mathbf{u}_{inc}) = \frac{\gamma_n}{\gamma_{inc}} \frac{k_0 L}{2\pi} \left(\left\langle |b_n^2| \right\rangle - |\left\langle b_n \right\rangle|^2 \right) \tag{F.21}$$

où les b_n sont les amplitudes des ondes planes transmises d'ordre n.

Annexe G

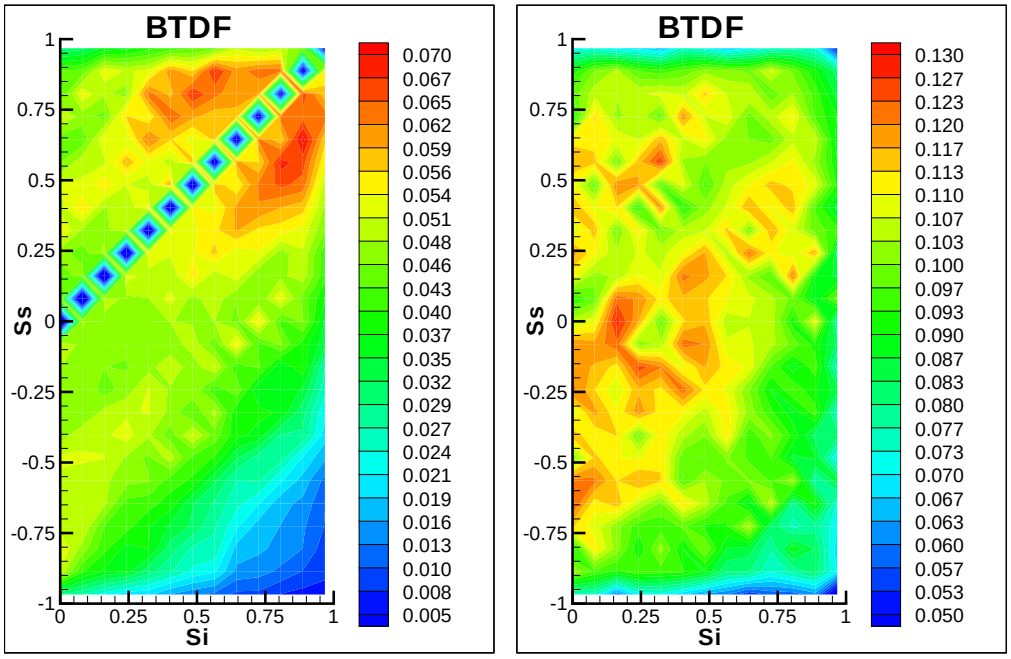
Diffusion par une couche diffusante: solution électromagnétique et phénomènes cohérents

Nous présentons ici le résultat électromagnétique exact des luminances diffuses réfléchie et transmise par les deux systèmes étudiés au chapitre V. La couche diffusante 2D (invariant selon la direction z) est constituée de particules de diamètre $D = 0.5\lambda_0$ plongées aléatoirement dans de l'eau absorbante $n_h = 1.33 + i0.02$. L'épaisseur de la couche vaut $3.8\lambda_0$. Deux indices de particules $n_p = 1.59$ et $n_p = 2.21$ sont choisis tels que les libres parcours moyens de diffusion soient respectivement grand et petit devant l'épaisseur du système. La diffusion est donc plutôt majoritairement simple dans le premier cas tandis qu'elle est majoritairement multiple dans le second cas. Pour fixer les ordres de grandeurs, quand $f = 20\%$, les libres parcours moyens de diffusion l_{sca} sont respectivements de l'ordre de $12\lambda_0$ et $0.9\lambda_0$ pour ces deux indices de particule. Ces grandeurs doivent être comparées au libre parcours moyen d'absorption $l_{abs} = 4\lambda_0$ du système en l'absences de particules et à l'épaisseur du système.

Deux phénomènes cohérents que Roux (1999) et Thibaud (2000) ont mis en évidence pour d'autres paramètres du milieu diffusant sont retrouvés: le trou de la diffusion vers l'avant en régime de diffusion simple et le phénomène de la rétrodiffusion exaltée dans la direction arrière. Ces phénomènes cohérents ne peuvent être prévus par la théorie du transfert radiatif.

G.1 Trou de la diffusion simple vers l'avant

La BTDF du système faiblement diffusant présentée Fig.G.1(a) est typique d'une diffusion simple: elle comporte dans la direction avant $S_s = S_i$ des trous de diffusion. Cela ne veut pas dire qu'aucune énergie ne se propage dans la direction avant, bien au contraire. Cette énergie n'est pas sous forme diffuse (incohérente) mais sous forme cohérente. On peut montrer (Thibaud 2000) que la diffusion simple par un ensemble de particule est forcément cohérente dans la direction avant même après moyenne sur différentes positions de diffuseurs. Pour comprendre ce phénomène, on peut utiliser le schéma G.1. La différence de phase des ondes diffusées par deux particules dans la direction avant est toujours nulle dans la direction avant. Par contre, dans toutes les autres directions, cette différence de phase dépend de la position de ces diffuseurs. La différence de phases des ondes rayonnées dans une direction quelconque balaie plusieurs fois 2π lors de la moyenne sur toutes les positions possible des diffuseurs. Cette moyenne rend l'onde de nature incohérente (ou diffuse) dans toute les directions sauf dans la direction avant où elle garde les propriétés de cohérence de l'onde incidente. Par conséquent, l'énergie diffusé dans la direction avant n'est pas comptabilisée en énergie diffuse. Par contre, les ondes diffusées de multiple fois, sont de nature diffuse dans la direction avant. Et lorsque la diffusion simple devient négligeable



(a) Mise en évidence du phénomène du trou de diffusion dans la direction avant en régime de diffusion simple avec $n_p = 1.59$.

(b) En régime de diffusion multiple, le trou de la diffusion simple n'est plus observable avec $n_p = 2.21$.

FIG. G.1 – *BTDF d'une couche diffusante.* $S_i = sin(\theta_{inc})$ *est le sinus de l'angle d'incidence, tandis que* $S_s = sin(\theta_{sca})$ *est le sinus de l'angle de diffusion. Caractéristiques communes:* $n_h = 1.33 + i0.02$, $f = 20\%$, $D = 0.5\lambda$, $e = 3.8\lambda$.

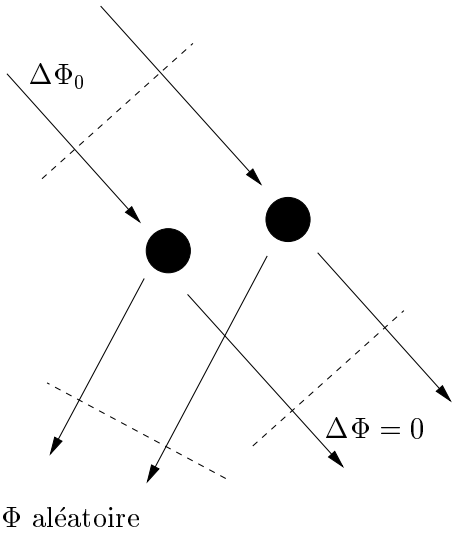
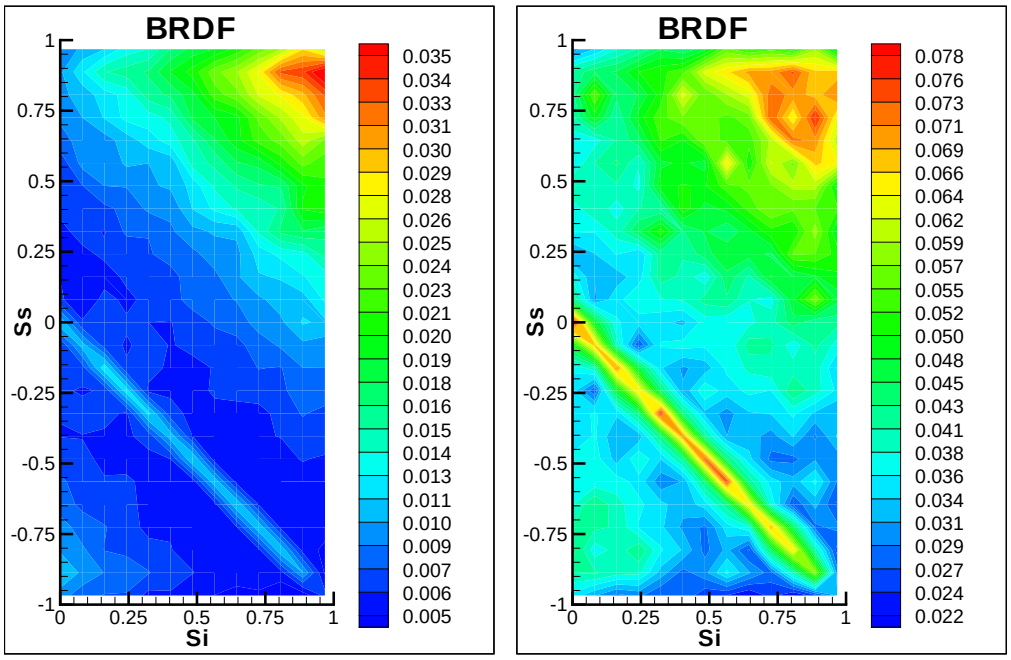


FIG. G.2 – *Diffusion simple cohérente dans la direction avant.*

devant la diffusion multiple comme c'est le cas pour les diffuseurs d'indice plus fort (Fig.G.1(b)), ces trous de diffusion disparaissent.

G.2 Rétrodiffusion cohérente

Les BRDF des systèmes diffusant présentées Fig.G.3 sont typiques des milieux diffusant de multiple fois l'onde incidente. Les ondes rétrodiffusées dans la direction opposée de l'onde incidente $S_s = -S_i$ sont exaltées presque d'un facteur deux à cause de la diffusion multiple. Ce phénomème



(a) Apparition du phénomène de rétrodiffusion cohérente pour une fraction volumique $f = 5\%$

(b) Rétrodiffusion cohérente pour une fraction volumique $f = 20\%$

FIG. G.3 – *Mise en évidence du phénomène de rétrodiffusion cohérente.* $S_i = sin(\theta_{inc})$ *est le sinus de l'angle d'incidence, tandis que* $S_s = sin(\theta_{sca})$ *est le sinus de l'angle de diffusion. Caractéristiques communes:* $n_h = 1.33 + i0.02$, $n_p = 2.21$, $D = 0.5\lambda$, $e = 3.8\lambda$.

purement ondulatoire, est appelé rétrodiffusion cohérente. On parle de régime de localisation faible dans le langage de la physique de la matière condensée en référence au phénomène ondulatoire strictement analogue de la diffusion des électrons dans milieu conducteur. Ce phénomène survit même après moyenne sur un ensemble de réalisations. L'onde plane incident peut parcourir dans le milieu diffusant différent chemins et revenir dans sa direction initiale. Nous représentons schématiquement l'un des ces chemins sur la figure G.4. La réciprocité des équations de Maxwell implique que s'il existe un chemin pour aller d'un point à un autre, alors le chemin parcouru dans le sens opposé existe. L'onde plane incidente qui revient dans sa direction initiale peut par conséquent emprunter les deux chemins en sens opposé. Comme les distances parcourues le long de ces deux chemins sont strictements identiques, les ondes diffusées par les chemins réciproques reviennent avec une phase. Par conséquent ils interfèrent constructivement et la puissance diffusée dans cette direction est doublée. Mais seuls les événements de diffusion multiple participe à ce phénomène. La diffusion simple n'est pas exaltée. Ainsi on a un facteur deux, seulement si les événements

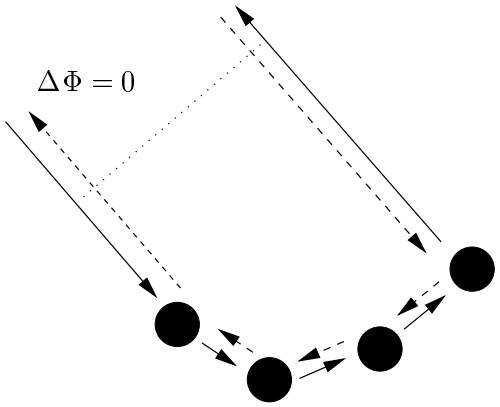


FIG. G.4 – *Rétrodiffusion cohérente dans la direction arrière.*

de diffusions simples sont minoritaires devant les diffusions multiples. On le voit sur la cas de la Fig.G.3(a) pour un système moins diffusant, le facteur d'exaltation est environ 1.5, alors que le facteur est proche de 2 pour la Fig.G.3(b) parce que la diffusion est plus importante.

Annexe H

Résolution de l'ETR pour une couche diffusante avec interfaces rugueuses par la méthode des ordonnées discrètes

La méthode que nous exposons ne contient pas d'idées physiques originales puisqu'on trouvera dans l'article de Fung et Chen (1981) une écriture semblable. Toutefois, le niveau de détail est ici plus important. Les équations finales sont proches de celles qui sont intégrées dans un code numérique.

H.1 E.T.R. pour une couche diffusante

Le cas d'une interface plane est intégralement décrit dans le Chapitre 4 pp 69-93 de la thèse de Roux (1999). On gardera autant que possible des notations semblables. La configuration géométrique que nous étudions pour cette partie est représentée par la figure H.1. Nous décrirons

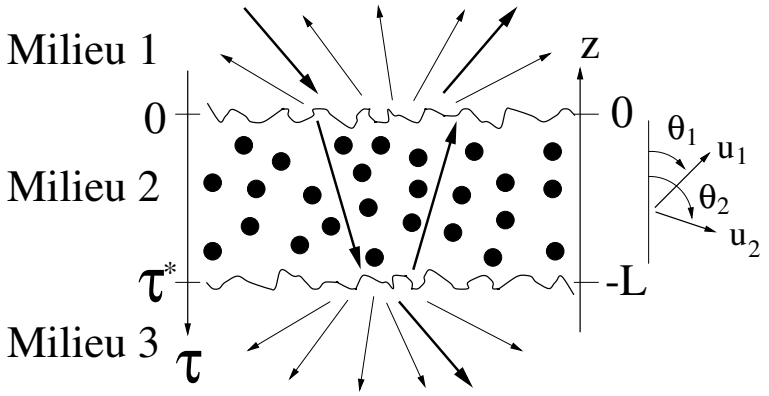


FIG. H.1 – *Configuration géométrique*

rapidement la méthode de résolution de l'ETR par les ordonnées discrètes pour une couche diffusante séparant deux milieux homogènes. Toutes les modifications induites par la rugosité des surfaces seront par contre décrites en détails.

Nous appliquons l'équation de transfert radiatif (I.11) à la géométrie d'un système plan parallèle. Dans un système diffusant de forme quelconque, la luminance dépend de 3 variables d'espace (x, y, z). Dans le système plan parallèle, le système est invariant dans les directions x et y. Donc

la luminance ne dépend plus que d'une seule variable d'espace: la direction z. Soit $\tau = -K_{ext}z$ la profondeur optique, $\varpi = \frac{K_{sca}}{K_{ext}}$ l'albedo et $\mu = cos(\theta)$. L'ETR devient:

$$\frac{1}{\mu}\frac{dI(\tau,\mu,\phi)}{d\tau} = I(\tau,\mu,\phi) - \frac{\varpi}{4\pi}\int_0^1\int_0^{2\pi} P(\mu,\phi,\mu',\phi')I(\tau,\mu',\phi')d\mu'd\phi' \tag{H.1}$$

H.1.1 Equation de transfert radiatif pour la luminance diffuse

Nous voulons calculer la réponse du milieu plan parallèle à une onde plane collimatée. Cette onde plane collimatée (cohérente) incidente est une source pour la luminance diffuse (incohérente). La luminance peut être séparée dans ce cas en une part diffuse et une part collimatée.

$$I = I_c + I_{sca} \tag{H.2}$$

Dans un milieu diffusant non limité, la luminance collimatée vérifie la loi Beer-Lambert:

$$\frac{dI_c(\mathbf{r},\mathbf{u})}{dl} = -K_{ext}I_c(\mathbf{r},\mathbf{u}) \tag{H.3}$$

La solution de cette équation est une luminance collimatée décroissante exponentielle (due d'une part à l'absorption du liant et des particules, et d'autre part à la diffusion). Cette dernière décroissance contribue à l'augmentation des luminances diffuses. Il y a un transfert entre les luminances cohérentes et incohérentes. Si on éclaire le milieu diffusant par une lumière collimatée dans la direction (θ_0^1,ϕ^1) par rapport à la normale à la couche, la luminance incidente s'écrit:

$$I_{inc}(\tau,\theta,\phi) = \frac{F_0}{cos\theta_0^1}\frac{\delta(\theta-\theta_0^1)\delta(\phi-\phi_0)}{sin\theta} = \frac{F_0}{\mu_0^1}\delta(\mu-\mu_0^1)\delta(\phi-\phi_0) \tag{H.4}$$

où F_0 est la densité de flux incident et $\mu_0^1 = cos(\theta_0^1)$. On pose $I_0 = \frac{F_0}{cos\theta_0^1}$. Dans la couche diffusante, la luminance collimatée se décompose en une partie montante et une partie descendante.

$$\begin{aligned} I_c(\tau,\mu,\phi) &= \delta(\mu-\mu_0)\delta(\phi-\phi_0)\Gamma(\mu_0)T_{c12}(\mu_0^1)I_0e^{-\frac{\tau}{\mu_0}} \\ &+ \delta(\mu+\mu_0)\delta(\phi-\phi_0)\Gamma(\mu_0)R_{c23}(\mu_0)T_{c12}(\mu_0^1)I_0e^{\frac{\perp 2\tau^*+\tau}{\mu_0}} \end{aligned} \tag{H.5}$$

avec $\mu_0 = cos(\theta_0)$ où θ_0 est l'angle par rapport à la normale à la couche de la luminance collimatée montante dans le milieu diffusant. μ_0 et μ_0^1 sont liés par les relations de Snell-Descartes. Γ est le coefficient de réflexion multiple défini par:

$$\Gamma(\mu_0) = \left[1 - R_{c21}(\mu_0)R_{c23}(\mu_0)e^{\frac{\perp 2\tau^*}{\mu_0}}\right]^{-1} \tag{H.6}$$

T_{cij} et R_{cij} sont les facteurs énergétiques de transmission et de réflexion cohérents respectivement pour l'interface ij considérée. Les indices ij indiquent respectivement que la lumière incidente se propage du milieu i vers le milieu j. Si on injecte l'expression (H.5) de la luminance collimatée dans l'équation (H.1), on obtient l'équation de transfert radiatif pour les luminances diffuses suivantes:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\mu}\frac{dI_{sca}(\tau,\mu,\phi)}{d\tau} = I_{sca}(\tau,\mu,\phi) &- \frac{\varpi}{4\pi}\int_{-1}^1\int_0^{2\pi} P(\mu,\phi,\mu',\phi')I_{sca}(\tau,\mu',\phi')d\mu'd\phi' \\ &- \sigma(\tau,\mu,\phi,\mu_0,\phi_0) \end{aligned} \tag{H.7}$$

σ est le terme source comprenant les sources collimatées montantes et descendantes, et (μ_0,ϕ_0) est la direction du faisceau spéculaire dans le milieu 2. Le terme source σ pour le cas d'une interface rugueuse est formellement identique au cas d'interfaces planes sauf que les facteurs de réflexion

R_{c21} et R_{c23} et de transmission spéculaire aux interfaces T_{c12} sont remplacés par les facteurs cohérents des interfaces rugueuses.

$$\begin{aligned}\sigma(\tau,\mu,\phi,\mu_0,\phi_0) &= \frac{\varpi}{4\pi}P(\mu,\phi,-\mu_0,\phi_0)\Gamma(\mu_0)T_{c12}(\mu_0^1)I_0e^{-\frac{\tau}{\mu_0}} \\ &+ \frac{\varpi}{4\pi}P(\mu,\phi,+\mu_0,\phi_0)\Gamma(\mu_0)R_{c23}(\mu_0)T_{c12}(\mu_0^1)I_0e^{\frac{\perp 2\tau^*+\tau}{\mu_0}}\end{aligned} \tag{H.8}$$

Lorsque l'onde incidente est normale à la couche, le problème possède une symétrie azimutale. Ce qui permet d'intégrer (H.7) par rapport à ϕ pour se débarrasser de la dépendance azimutale. En dehors de ce cas particulier, le problème de la diffusion n'est pas à symétrie azimutale. Afin de s'en affranchir, la méthode classique consiste à développer sur une série de Fourier en ϕ les luminances, la fonction de phase et le terme source jusqu'à un ordre M suffisant.

$$I_{sca}(\tau,\mu,\phi) = \sum_{m=0}^{M} I_{sca}^m(\tau,\mu)cos(m\phi) \tag{H.9}$$

$$P(\mu,\phi,\mu',\phi') = \sum_{m=0}^{M} P^m(\mu,\mu')cos(m(\phi-\phi')) \tag{H.10}$$

$$\sigma(\tau,\mu,\phi) = \sum_{m=0}^{M} \sigma^m(\tau,\mu)cos(m\phi) \tag{H.11}$$

Si on injecte (H.9) (H.10) et (H.11) dans l'ETR (H.7), on obtient un système de $M+1$ équations découplées qui ne dépendent plus de ϕ:

$$\frac{1}{\mu}\frac{dI_{sca}^m(\tau,\mu)}{d\tau} = I_{sca}^m(\tau,\mu) - \frac{\varpi}{4\pi}\int_{-1}^{1} P^m(\mu,\mu')I_{sca}^m(\tau,\mu')d\mu' - \sigma^m(\tau,\mu) \tag{H.12}$$

avec

$$\begin{aligned}\sigma^m(\tau,\mu) &= \frac{\varpi}{4\pi}(2-\delta_{0m})P^m(\mu,-\mu_0)\Gamma T_{c12}(\mu_0^1)I_0e^{-\frac{\tau}{\mu_0}} \\ &+ \frac{\varpi}{4\pi}(2-\delta_{0m})P^m(\mu,+\mu_0)\Gamma R_{c23}(\mu_0)T_{c12}(\mu_0^1)I_0e^{\frac{\perp 2\tau^*+\tau}{\mu_0}}\end{aligned} \tag{H.13}$$

H.1.2 Méthode des ordonnées discrètes et solution de l'ETR sous forme vecteurs propres.

A ce stade, l'ETR (H.12) est une équation intégrodifférentielle qui n'est pas soluble. Pour tomber sur un système d'équations différentielles linéaires, il existe une méthode appelée méthodes des ordonnées discrètes qui est décrite dans de nombreux ouvrages dont les livres de Chandrasekhar (1960), Goody et Yung (1995) et dans la thèse de Roux (1999). Les directions des luminances et l'intégrale contenant la fonction de phase sont discrétisées par une quadrature telle que l'on ait:

$$\int_{-1}^{1} P^m(\mu,\mu')d\mu' = \sum_{j=1}^{N} P^m(\mu_i,\mu_j)\omega_j + \sum_{j=1}^{N} P^m(\mu_i,-\mu_j)\omega_j \tag{H.14}$$

où ω_j est le poids associés à l'angle solide correspondant à la direction μ_j. Les directions des luminances $\mu\epsilon[-1,1]$ sont discrétisées par N directions montantes et N directions descendantes (voi Fig.H.2). μ_{-j} correspondent aux les directions descendantes. L'ETR est écrite pour toutes les directions de discrétisations μ_i montante et descendante et pour tout profondeur optique τ. Ce système linéaire peut se mettre sous forme matricielle.

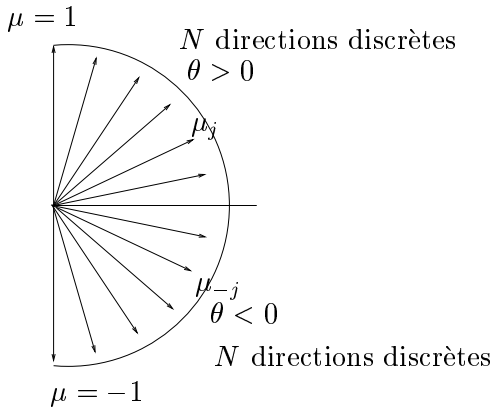


FIG. H.2 – *Discrétisation des directions de l'espace dans le milieu diffusant*

H.1.3 Forme de la solution générale

On peut montrer que la solution générale de la luminance en toute profondeur τ peut s'écrire comme:

$$I^m_{sca}(\tau, \mu_{\pm i}) = \sum_{j=1}^{N} C_{+j} g_{+j}(\mu_{\pm i}) e^{-k_{+j}\tau} + \sum_{j=1}^{N} C_{-j} g_{-j}(\mu_{\pm i}) e^{-k_{+j}\tau} + I_p(\tau, \mu_{\pm i}) \tag{H.15}$$

où $g_{\pm j}$ et k_{+j} sont respectivement les vecteurs propres et les valeurs propres du système linéaire homogène (sans le terme source) obtenu pas les ordonnées discrètes; I_p est une solution particulière du système linéaire complet (avec le terme de source) de la forme suivante:

$$I_p(\tau, \mu_{\pm i}) = Z_0(\mu_{\pm i}) e^{-\frac{\tau}{|\mu_0|}} + Z_1(\mu_{\pm i}) e^{\frac{\tau}{|\mu_0|}} \tag{H.16}$$

Pour résumer les $g_{\pm j}$ et k_{+j} ne dépendent que des paramètres de l'ETR: coefficients de diffusion d'extinction et fonction de phase. Les Z_0 et Z_1 ne dépendent que de la forme du terme source.

Finalement, les seules inconnues dans l'expression de la forme générale de la luminance sont les $C_{\pm j}$ qui ne dépendent que des conditions aux limites que nous allons décrire en détail dans la section suivante.

H.2 Conditions aux limites: écriture pour les ordonnées discrètes

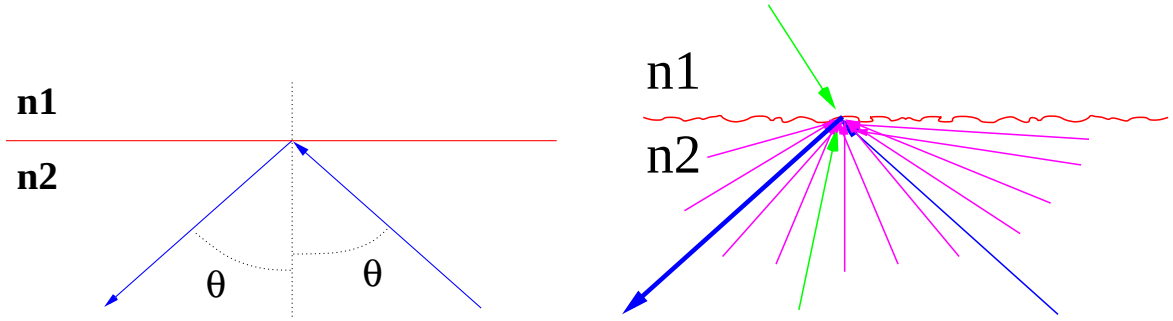
H.2.1 Description des processus et écriture mathématique

Dans le milieu diffusant juste en dessous de l'interface supérieure ($\tau = 0^-$), on cherche à relier la luminance diffuse descendante dans la direction particulière $(-\mu, \phi)$ (voir Fig. H.3(b)) à l'ensemble des luminances incidentes (μ', ϕ') sur l'interface.

Il y a quatre contributions à luminance descendante dans la direction $(-\mu, \phi)$ (la flèche bleu en gros trait). Les deux premières que nous considérons sont celles dues aux ondes cohérentes représentées par les flèches vertes. Les deux autres sont les contributions des luminances diffuses dans le milieu diffusant:

- Le slab est éclairé par une luminance collimatée (cohérente spatialement) se propageant du milieu 1 vers le milieu 2 (la flèche verte descendante). Une partie de la luminance collimatée est diffusée par la surface rugueuse lors de la transmission. La luminance devient incohérente lors du processus de diffusion et une partie est diffusée dans la direction qui nous intéresse $(-\mu, \phi)$.

- La luminance cohérente qui a été transmise dans la couche peut être réfléchie par l'interface inférieure et remonter du milieu 2 vers le milieu 1. Une partie de la luminance cohérente montante (la flèche verte montante) dans le milieu 2 est diffusée par réflexion dans la direction $(-\mu, \phi)$.
- La troisième contribution est identique à celle que l'on rencontre dans le cas du dioptre plan: la luminance diffuse montante (la flèche bleue montante) dans le milieu 2 dans la direction (μ, ϕ) est réfléchie spéculairement dans la direction $(-\mu, \phi)$.
- Enfin la quatrième contribution est celle due à l'ensemble des luminances diffuses montantes dans le milieu 2 (toutes les flèches mauves montantes) dans les directions (μ', ϕ') qui sont rediffusées en réflexion par l'interface rugueuse.



(a) Interface plane. (b) Interface rugueuse.

FIG. H.3 – *Contributions à la luminance descendante dans la direction $(-\mu, \phi)$ sur l'interface supérieure*

Formellement les conditions aux limites s'écrivent de la manière suivante.

$$
\begin{aligned}
I_{sca}(\tau = 0, -\mu, \phi) = & \int_0^1 \int_0^{2\pi} \tau_{12}(-\mu, \phi, -\mu', \phi') I_{i1}(-\mu', \phi') \mu' d\mu' d\phi' \\
+ & \int_0^1 \int_0^{2\pi} \rho_{21}(-\mu, \phi, -\mu', \phi') \Gamma I_{i2}(-\mu', \phi') \mu' d\mu' d\phi' R_{c23}(\mu_0) T_{c12}(\mu_0^1) e^{\frac{\perp 2\tau^*}{\mu_0}} \\
+ & \int_0^1 \int_0^{2\pi} \rho_{21}(-\mu, \phi, -\mu', \phi') I_{sca}(\mu', \phi') \mu' d\mu' d\phi' + R_{c21}(\mu) I_{sca}(0, \mu, \phi)
\end{aligned}
\tag{H.17}
$$

avec

$$
I_{i1}(-\mu', \phi') = \frac{F_0}{\mu_0^1} \delta(\mu' - \mu_0^1) \delta(\phi' - \phi_0) \text{ et } I_{i2}(-\mu', \phi') = \frac{F_0}{\mu_0} \delta(\mu' - \mu_0) \delta(\phi' - \phi_0) \tag{H.18}
$$

Si on injecte les relations (H.18) dans (H.17) on obtient:

$$
\begin{aligned}
I_{sca}(\tau = 0, -\mu, \phi) = & \tau_{12}(-\mu, \phi, -\mu_0^1, \phi_0) F_0 \\
+ & \rho_{21}(-\mu, \phi, -\mu_0, \phi_0) \Gamma F_0 R_{c23}(\mu_0) T_{c12}(\mu_0^1) e^{\frac{\perp 2\tau^*}{\mu_0}} \\
+ & \int_0^1 \int_0^{2\pi} \rho_{21}(-\mu, \phi, -\mu', \phi') I_{sca}(0, \mu', \phi') \mu' d\mu' d\phi' + R_{c21}(-\mu) I_{sca}(\mu, \phi)
\end{aligned}
\tag{H.19}
$$

Prenons le cas de l'interface inférieure dans le milieu diffusant, juste au dessus de l'interface $(\tau = \tau^* +)$. Par rapport au cas de l'interface supérieure, les conditions aux limites sont identiques

mis à part un terme de moins puisqu'il n'y a pas d'ondes provenant du milieu 3 qui remonte vers le milieu diffusant.

On cherche ici à connaître la luminance se propageant dans la direction (μ, ϕ) La première contribution est celle de l'onde collimatée descendante dans le milieu 2 qui est diffusée en réflexion par l'interface rugueuse. La deuxième contribution est identique à celle que l'on rencontre dans le cas du dioptre plan. La luminance diffuse descendante dans le milieu 2 dans la direction $(-\mu, \phi)$ est réfléchie spéculairement dans la direction $(-\mu, \phi)$. La dernière contribution provient des luminances diffuses descendantes pour l'ensemble des directions $(-\mu', \phi')$ qui sont rediffusées en réflexion dans la direction (μ, ϕ). On obtient finalement la condition suivante:

$$\begin{aligned} I_{sca}(\tau = \tau^*, \mu, \phi) &= \rho_{23}(\mu, \phi, -\mu_0, \phi_0)\Gamma F_0 T_{c12}(\mu_0^1) e^{\frac{\perp \tau^*}{\mu_0}} \\ &+ \quad R_{c23}(\mu)\Gamma I_{sca}(\tau^*, \mu, \phi) + \int_0^1 \int_0^{2\pi} \rho_{23}(\mu, \phi, -\mu', \phi') I_{sca}(\tau^*, \mu', \phi') \mu' d\mu' d\phi' \end{aligned} \tag{H.20}$$

H.2.2 Conditions aux limites pour un ordre de Fourier

Chaque équation indépendante (H.12) d'ordre m nécessite des conditions aux limites d'ordre m. Stamnes *et al.* (1988), étudient un système multicouche diffusant dont les paramètres du milieu diffusant diffèrent dans chaque couche. Les auteurs ont besoin d'écrire les conditions aux limites sur chacune des couches. Les conditions aux limites ressemblent à celles dont nous avons besoin. Toutefois, ils supposent qu'il n'y a pas de réflexion au passage d'une couche à une autre. Ceci simplifie le problème et leur permet de supposer que la BRDF ρ'' ne dépend que de l'angle Θ entre l'onde incidente et l'onde diffusée. Θ est reliée à μ ϕ μ' et ϕ' par la relation suivante:

$$cos(\Theta) = \mu\mu' + \sqrt{1-\mu^2}\sqrt{1-\mu'^2} cos(\phi - \phi') \tag{H.21}$$

Dans ces conditions, la BRDF peut être développée sur une série de polynômes de Legendre puis au final dans une base de Fourier par une méthode très performante numériquement. C'est aussi par cette méthode que la fonction de phase est développée sur la base de Fourier. Cette supposition n'est pas valide pour le cas d'interfaces rugueuses. Pour s'en rendre compte, il suffit de faire un petit dessin (Fig.H.4). Malgrés tout, cette supposition n'est pas nécessaire. Il suffit de remarquer

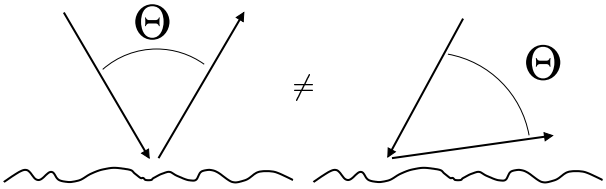


FIG. H.4 – *La brdf ne dépend pas que de* Θ

que ρ'' ne dépend que de $(\phi - \phi')$ si la surface rugueuse est à statistique isotrope (ce que nous avions déjà implicitement supposé) et que cette fonction est périodique:

$$\rho''(\mu, \mu', \phi - \phi') = \rho''(\mu, \mu', \phi - \phi' + 2\pi m) \tag{H.22}$$

On peut donc développer ρ'' en série de Fourier. D'autre part ρ'' est pair en ϕ donc:

$$\rho''(\mu, \mu', \phi - \phi') = \sum_{m=0}^{M} \rho^m(\mu, \mu') cos(m(\phi - \phi')) \text{ avec} \tag{H.23}$$

$$\rho^m(\mu, \mu') = \frac{1 + \delta_{0,m}}{2\pi} \int_0^{2\pi} \rho''(\mu, \mu', \phi) cos(m\phi) d\phi \tag{H.24}$$

Pour la suite on pose:

$$A = \Gamma R_{c23}(\mu_0) T_{c12} e^{\frac{\perp 2\tau^*}{\mu_0}} \tag{H.25}$$

Pour trouver les conditions aux limites pour chaque composante de Fourier, on injecte les différents développements de Fourier dans les relations de conditions aux limites (H.19) et (H.20).

$$\rho_{21}(\mu,\mu',\phi,\phi') = \sum_{m=0}^{M} \rho_{21}^m(\mu,\mu') cos(m(\phi-\phi')) \tag{H.26}$$

$$\tau_{12}(\mu,\mu',\phi,\phi') = \sum_{m=0}^{M} \tau_{12}^m(\mu,\mu') cos(m(\phi-\phi')) \tag{H.27}$$

$$\rho_{23}(\mu,\mu',\phi,\phi') = \sum_{m=0}^{M} \rho_{23}^m(\mu,\mu') cos(m(\phi-\phi')) \tag{H.28}$$

Les conditions aux limites sur l'interface supérieure deviennent.

$$\begin{aligned}
\sum_{m=0}^{M} I_{sca}^m(\tau=0,-\mu) cos(m\phi) &= F_0 \sum_{m=0}^{M} \tau_{12}^m(\mu,\mu_0) cos(m(\phi)) \\
&+ A\Gamma F_0 \sum_{m=0}^{M} \rho_{21}^m(\mu,\mu_0) cos(m(\phi-\phi')) \\
&+ \int_0^1 \int_0^{2\pi} \sum_{m=0}^{M} \rho_{21}^m(\mu,\mu') cos(m(\phi-\phi')) \sum_{p=0}^{M} I_d^p(\tau=0,\mu') cos(p\phi') \mu' d\mu' d\phi' \\
&+ R_{c21}(\mu) \sum_{m=0}^{M} I_{sca}^m(\tau=0,\mu) cos(m\phi)
\end{aligned} \tag{H.29}$$

Nous avons besoin du résultat de l'intégrale suivante qui d'après Roux (1999) pp107-108, est:

$$J = \int_0^{2\pi} cos[m(\phi-\phi')] cos(p\phi') d\phi' = \pi(\delta_{0,m}+1) cos(m\phi) \delta_{m,p} \tag{H.30}$$

Ce qui permet de sommer l'équation (H.29) sur la variable entière p. Comme la base formée par les vecteurs $cos(m\phi)$ Fourier est orthogonale, on obtient une condition pour chaque ordre m:

$$\begin{aligned}
I_{sca}^m(\tau=0,-\mu) &= \tau_{12}^m(\mu,\mu_0) F_0 + \rho_{21}^m(\mu,\mu_0) A\Gamma F_0 \\
&+ \pi(\delta_{0,m}+1) \int_0^1 \rho_{21}^m(\mu,\mu') I_{sca}^m(\tau=0,\mu') \mu' d\mu' + R_{c21}(\mu) I_{sca}^m(\tau=0,\mu)
\end{aligned} \tag{H.31}$$

On pose $B = \Gamma T_{c12}(\mu_0) e^{\frac{\perp \tau^*}{\mu_0}}$ pour alléger les expressions. Par un calcul identique au précédent, on obtient l'écriture mathématique des conditions aux limites sur l'interface inférieure pour un ordre de Fourier quelconque.

$$\begin{aligned}
I_{sca}^m(\tau=\tau^*,\mu) &= \rho_{23}^m(\mu,-\mu_0) B F_0 \\
&+ \pi(\delta_{0,m}+1) \int_0^1 \rho_{23}^m(\mu,-\mu') I_{sca}^m(\tau=\tau^*,-\mu') \mu' d\mu' + R_{c23}(\mu) I_{sca}^m(\tau=\tau^*,-\mu)
\end{aligned} \tag{H.32}$$

H.2.3 Discrétisation des directions et des intégrales

Les intégrales sont discrétisées par une quadrature de Gauss dans le milieu 1 et 3 et par une double quadrature de Gauss dans le milieu 2. Il existe d'autres quadratures mais dans le cas d'interfaces planes, Kumar *et al.* (1990) montrent que la quadrature de Gauss donne le meilleur résultat. Il n'est pas sûr que ce soit le meilleur choix lorsque les interfaces sont rugueuses. Pour l'interface supérieure et inférieure, on obtient:

$$\begin{aligned} I^m_{sca}(0,\mu_{-i}) &= \tau^m_{12}(\mu_{-i},\mu^1_0)F_0 + \rho^m_{21}(\mu_{-i},\mu_0)A\Gamma F_0 \qquad \text{(H.33)} \\ &+ \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{j=1}^{N}\rho^m_{21}(\mu_{-i},\mu_j)I^m_{sca}(0,\mu_j)\mu_j\omega_j + R_{c21}(\mu_i)I^m_{sca}(0,\mu_i) \text{ et} \\ I^m_{sca}(\tau^*,\mu_i) &= \rho^m_{23}(\mu_i,-\mu_0)BF_0 \qquad \text{(H.34)} \\ &+ \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{j=1}^{N}\rho^m_{23}(\mu_i,\mu_{-j})I^m_{sca}(\tau^*,\mu_{-j})\mu_{-j}\omega_{-j} + R_{c23}(\mu_{-i})I^m_{sca}(\tau^*,\mu_{-i}) \end{aligned}$$

où N est le nombre de discrétisations dans le milieu diffusant pour $\mu\epsilon[0,1]$, i.e. dans le demi-espace des directions montantes. Il y en a autant pour les directions descendantes pour $\mu\epsilon[-1,0]$. ω_j est le poids associé à la direction de discrétisation μ_j. On utilise respectivement la notation $+j$ ou $-j$ simplement pour indiquer s'il s'agit d'une luminance montante ou descendante.

H.2.4 Écriture du système matriciel

Nous avons vu que la solution générale pour la luminance dans le milieu diffusant s'écrit de la manière suivante:

$$I^m_{sca}(\tau,\mu_{\pm i}) = \sum_{j=1}^{N} C_{+j}g_{+j}(\mu_{\pm i})e^{-k_{+j}\tau} + \sum_{j=1}^{N} C_{-j}g_{-j}(\mu_{\pm i})e^{-k_{+j}\tau} + I_p(\tau,\mu_{\pm i}) \qquad \text{(H.35)}$$

où seuls les C_{+j} sont les inconnues du problème. Si on injecte la solution générale (H.35) sur l'interface supérieure en $\tau = 0$ dans l'équation traduisant la condition aux limites sur l'interface supérieure (H.33), on obtient le système d'équations suivant:

$$\begin{aligned} &\sum_{j=1}^{N} C_{+j}\left[g_{+j}(\mu_{-i}) - \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{k=1}^{N}\mu_k\omega_k\rho^m_{21}(\mu_{-i},\mu_k)g_{+j}(\mu_k) - R_{c21}(\mu_i)g_{+j}(\mu_i)\right] \\ &+ \sum_{j=1}^{N} C_{-j}\left[g_{-j}(\mu_{-i}) - \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{k=1}^{N}\mu_k\omega_k\rho^m_{21}(\mu_{-i},\mu_k)g_{-j}(\mu_k) - R_{c21}(\mu_i)g_{-j}(\mu_i)\right] \\ &= -I_p(0,\mu_{-i}) + \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{k=1}^{N}\mu_k\omega_k\rho^m_{21}(\mu_{-i},\mu_k)I_p(0,\mu_k) \qquad \text{(H.36)} \\ &+ R_{c21}(\mu_i)I_p(0,\mu_i) + \tau^m_{12}(\mu_{-i},\mu^1_0)F_0 + \rho^m_{21}(\mu_{-i},\mu_0)AF_0 \end{aligned}$$

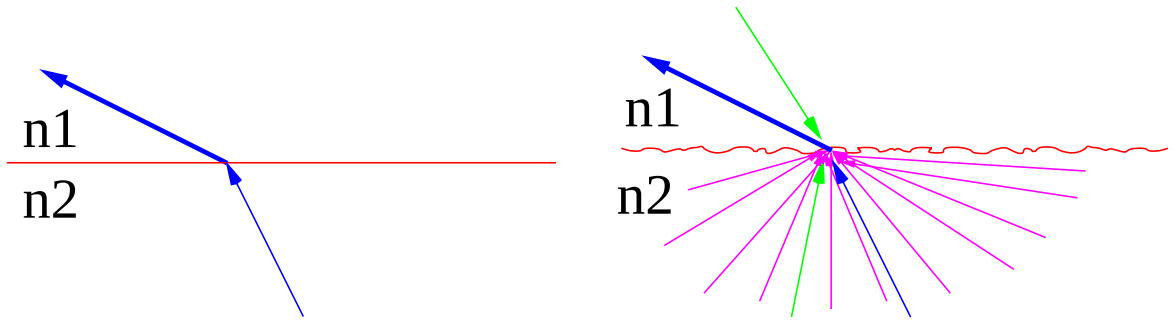
Pour le cas de l'interface inférieure, on injecte (H.35) évaluée en $\tau = \tau_0$ dans l'équation traduisant la condition au limite sur l'interface supérieure (H.34), on obtient le système d'équations suivant:

$$\begin{aligned}
&\sum_{j=1}^{N} C_{+j} \left[g_{+j}(\mu_i) - \pi(\delta_{0,m}+1) \sum_{k=1}^{N} \mu_k \omega_k \rho_{23}^m(\mu_i, \mu_{-k}) g_{+j}(\mu_{-k}) - R_{c23}(\mu_{-i}) g_{+j}(\mu_{-i}) \right] \\
&\qquad e^{-k_j \tau^*} \\
&+ \sum_{j=1}^{N} C_{-j} \left[g_{-j}(\mu_i) - \pi(\delta_{0,m}+1) \sum_{k=1}^{N} \mu_k \omega_k \rho_{23}^m(\mu_i, \mu_{-k}) g_{-j}(\mu_{-k}) - R_{c23}(\mu_{-i}) g_{-j}(\mu_{-i}) \right] \\
&\qquad e^{k_j \tau^*} \\
&= -I_p(\tau^*, \mu_i) + \pi(\delta_{0,m}+1) \sum_{k=1}^{N} \mu_{-k} \omega_{-k} \rho_{23}^m(\mu_i, \mu_{-k}) I_p(\tau^*, \mu_{-k}) \qquad \text{(H.37)} \\
&+ R_{c23}(\mu_i) I_p(\tau^*, \mu_{-i}) + \rho_{23}^m(\mu_i, -\mu_0) B F_0
\end{aligned}$$

La résolution de ce système linéaire permet d'obtenir les $C_{\pm i}$. Les luminances sont ainsi connues partout dans le milieu diffusant pour toutes les directions de discrétisation. Il ne reste plus qu'à calculer les luminances émergentes du système diffusant.

H.3 Luminances émergentes et bilan énergétique

Les quantités qui nous intéressent sont les luminances émergentes du système en réflexion et en transmission. Nous voulons établir les relations entre les luminances émergentes du système et les luminances dans le milieu diffusant. On note $I_{r,sca}(0, \mu^1, \phi^1)$ la luminance réfléchie par le système



(a) Interface plane. (b) Interface rugueuse.

FIG. H.5 – *Emergences des luminances sur l'inerface supérieure.*

juste au dessus de l'interface en $\tau = 0$ dans la direction (μ^1, ϕ^1) et $I_{t,sca}(\tau^*, \mu^3, \phi^3)$ la luminance transmise juste au dessous de l'interface en $\tau = \tau^*$ dans la direction (μ^3, ϕ^3).

Dans le cas d'une interface plane, les relations sur l'interface supérieure puis sur l'interface inférieure s'écrivent de la manière suivante (voir p80 de la thèse de Roux (1999) ou pp 33-34 du livre de Apresyan et Kravtsov (1996)):

$$I_{r,sca}(0, \mu^1, \phi^1) = T_{c21}(\mu^2) \frac{n_1^2}{n_2^2} I_{sca}(0, \mu^2, \phi^1) \text{ et} \qquad \text{(H.38)}$$

$$I_{t,sca}(\tau^*, \mu^3, \phi^3) = T_{c23}(\mu^2) \frac{n_3^2}{n_2^2} I_{sca}(\tau^*, \mu^2, \phi^3) \qquad \text{(H.39)}$$

où μ^1 et μ^2 sont liés par les loi de la réfraction.

Dans le cas d'une interface rugueuse, ces relations deviennent

$$\begin{aligned} I_{r,sca}(0,\mu^1,\phi^1) &= \rho_{12}(\mu^1_{sca},\phi^1_{sca},\mu^1_0,\phi_0)F_0 + \tau_{21}(\mu^1,\phi^1,\mu^2_0,\phi_0)AF_0 \\ &+ \int_0^1\int_0^{2\pi} \tau_{21}(\mu^1,\phi^1,\mu^2,\phi^2)I_{sca}(0,\mu^2,\phi^2)\mu^2 d\mu^2 d\phi^2 \\ &+ T_{c21}(\mu^2)\frac{n_1^2}{n_2^2}I_{sca}(0,\mu^2,\phi^1) \end{aligned} \tag{H.40}$$

$$\begin{aligned} \text{et } I_{t,sca}(\tau^*,\mu^3,\phi^3) &= \tau_{23}(\mu^3,\phi^3,\mu^2_0,\phi_0)BF_0 \\ &+ \int_0^1\int_0^{2\pi} \tau_{23}(\mu^3,\phi^3,\mu^2,\phi^2)I_{sca}(\tau^*,\mu^2,\phi^2)\mu^2 d\mu^2 d\phi^2 \\ &+ T_{c23}(\mu^2)\frac{n_3^2}{n_2^2}I_{sca}(\tau^*,\mu^2,\phi^3) \end{aligned} \tag{H.41}$$

H.3.1 Les luminances émergentes pour chaque composante de Fourier

Les luminances émergentes et les BTDF sont développées sur une base de Fourier.

$$I_r(0,\mu^1,\phi^1) = \sum_{m=0}^{M} I_r^m(0,\mu^1)cos(m\phi^1) \tag{H.42}$$

$$I_t(\tau^*,\mu^3,\phi^3) = \sum_{m=0}^{M} I_t^m(\tau^*,\mu^3)cos(m\phi^1) \tag{H.43}$$

$$\tau_{21}(\mu^1,\phi^1,\mu^2,\phi^2) = \sum_{m=0}^{M} \tau_{21}^m(\mu^1,\mu^2)cos(m(\phi^1-\phi^2)) \tag{H.44}$$

$$\tau_{23}(\mu^3,\phi^3,\mu^2,\phi^2) = \sum_{m=0}^{M} \tau_{23}^m(\mu^3,\mu^2)cos(m(\phi^3-\phi^2)) \tag{H.45}$$

Si on injecte les relations (H.42- H.45) dans les équations (H.40) et (H.41) et que l'on discrétise les intégrales par une quadrature de Gauss, on obtient les luminances émergentes pour chaque ordre de Fourier.

$$\begin{aligned} I_r^m(0,\mu_i^1) &= \rho_{12}^m(\mu_i^1,\mu_0^1)F_0 + \tau_{21}^m(\mu_i^1,\mu_0^2)AF_0 \\ &+ \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{j=1}^{N}\tau_{21}^m(\mu_i^1,\mu_j^2)I_{sca}^m(0,\mu_j^2)\omega_j\mu_j^2 \\ &+ T_{c21}(\mu_i^2)\frac{n_1^2}{n_2^2}I_{sca}^m(0,\mu_i^2) \end{aligned} \tag{H.46}$$

$$\begin{aligned} I_t^m(\tau^*,\mu_i^3) &= \tau_{23}^m(\mu_i^3,\mu_0^2)BF_0 \\ &+ \pi(\delta_{0,m}+1)\sum_{j=1}^{N}\tau_{23}^m(\mu_i^3,\mu_j^2)I_{sca}(\tau^*,\mu_j^2)\omega_j\mu_j^2 \\ &+ T_{c23}(\mu_j^2)\frac{n_3^2}{n_2^2}I_{sca}(\tau^*,\mu_j^2) \end{aligned} \tag{H.47}$$

Finalement les luminances s'obtiennent dans les plans ϕ désirés en calculant (H.42) et (H.43).

Si on réitère ce calcul pour tous les angles d'incidences, on obtient au final la caractérisation complète (BRDF et la BTDF) de la diffusion par la couche.

$$\rho''(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca} - \phi_{inc}) = \frac{I_{r,sca}(0, \theta_{sca}, \phi_{sca})}{F_0} \quad \text{(H.48)}$$

$$\tau''(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca} - \phi_{inc}) = \frac{I_{t,sca}(\tau^*, \theta_{sca}, \phi_{sca})}{F_0} \quad \text{(H.49)}$$

H.3.2 Bilan énergétique

Les facteurs de réflexion et de transmission cohérents sont données par les formules:

$$R_c(\theta_{inc}) = R_{c12} + \Gamma T_{c12} T_{c21} R_{c23} e^{-\frac{2\tau^*}{\mu_0^2}} \quad \text{(H.50)}$$

$$T_c(\theta_{inc}) = \Gamma T_{c12} T_{c23} e^{-\frac{\tau^*}{\mu_0^2}} \quad \text{(H.51)}$$

Le facteur de réflexion hémisphérique diffus est défini par:

$$R_{sca}(\theta_{inc}) = \int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} \rho''_d(\theta_{sca}, \theta_{inc}, \phi_{sca} - \phi_{inc}) cos(\theta_{sca}) sin(\theta_{sca}) d\theta_{sca} d(\phi_{sca} - \phi_{inc}) \quad \text{(H.52)}$$

On montre facilement en injectant le développement de Fourier de la BRDF que l'on a:

$$R_{sca}(\theta_{inc}) = 2\pi \sum_j^N \frac{I^m_{sca}(0, \mu_j)}{F_0} \mu_j \omega_j \quad \text{(H.53)}$$

Il suffit de connaître l'ordre 0 dans l'espace de Fourier des luminances émergentes réfléchies, pour calculer le facteur de réflexion hémisphérique diffus. De même, on obtient le facteur de transmission hémisphérique diffus par la formule:

$$T_{sca}(\theta_i) = 2\pi \sum_j^N \frac{I^m_{sca}(\tau^*, \mu_j)}{F_0} \mu_j \omega_j \quad \text{(H.54)}$$

Références

Abramowitz, M. et A. Stegun (1965). *Handbook of Mathematical Functions*. Dover Publication, inc, New York.

Agarwal, G. (1973). New method in the Theory of Surface Polaritons. *Physical Review B 8*, 4768–4779.

Agarwal, G. (1977). Interaction of electromagnetic waves at rough dielectric surfaces. *Phys. Rev. B 15*, 2371–2383.

Agarwal, G., D. Pattanayak, et E. Wolf (1971). Structure of the Electromagnetic Field in a Spatially Dispersive Medium. *Physical Review Letter 27*, 1022–1025.

Anderson, P. (1957). Absence of Diffusion in Certain Random Lattices. *Phys. Rev. 109*(5), 1492–1505.

Anderson, P. (1985). The question of classical localization: A theory of white paintΓ *Philosophical Magazine B 52*(3), 505–509.

Apresyan, L. et Y. Kravtsov (1996). *Radiation Transfer, Statistical and Wave Aspects*. Gordon and Breach Publishers.

Arhaliass, A. et P. Snabre (1999). Multiple scattering in random systems: Analysis of the backscattering spot image. *European Physical Journal-Applied Physics 6*, 81–87.

Aronson, R. (1995). Boundary conditions for diffusion of light. *J. Opt. Soc. Am. A 12*(11), 2532.

Aronson, R. et N. Corngold (1999). Photon diffusion coefficient in absorbing medium. *J. Opt. Soc. Am. A 16*(5), 1066–1071.

Barabanenkov, Y. (1975). Multiple scattering of waves by ensembles of particles in the theory of radiation transport. *Sov. Phys. Uspekhi. 18*, 673–689.

Barabanenkov, Y. et V. Finkel'Berg (1968). Radiation Transport Equation for correlated scatterers. *Sov. Phys. JETP. 26*, 587–591.

Barrowes, B., C. Ao, F. Teixeira, J. Kong, et L. Tsang (2000). Monte-Carlo Simulation of Electromagnetic Wave Propagation in Dense Random Media with Dielectric Spheroids. *IEICE Trans. Electron. E83-C*, 1797–1802.

Beckmann, P. et A. Spizzichino (1963). *The scattering of electromagnetic waves from rough surfaces*. Pergamon Press, Oxford.

Berthier, S. (1993). *Optique des milieux composites*. Paris: Polytechnica.

Berthier, S. et J. Lafait (1999). Des tissus aux couleurs changeantes. *Pour la science* (266), 94–100.

Bilgen, M. et J. Rose (1994). Rough-surface effects on incoherent scattering from random volumetric scatterers: approximate analytic series solution. *J. Acoust. Soc. Am. 96*, 2856–2869.

Bishop, M. et A. Maradudin (1976). Energy flow in a semi-infinite spatially dispersive absorbing dielectric. *Phys. Rev. B 14*, 2856–2869.

Boccara, A. et P. French (1999). Towards Optical Biopsy: a Brief Introduction. In *Waves and Imaging through Complex Media, Proceedings of The International Physics School, edited by Patrick Sebbah*, pp. 15–26.

Bohren, C. et D. Gilra (1979). Extinction by spherical particules in an absorbing medium. *J. Colloid Interface Sci. 72*, 407–413.

Bohren, C. et D. Huffman (1983). *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley-Interscience Publication.

Born, M. et E. Wolf (1999). *Principles of optics, Electromagnetic Theory of Propagation,Interference and Diffraction of Light*. Pergamon Press, 7th Edition.

Bourret, R. (1962). Stochastically Perturbed Fields, with Applications to Wave Propagation in Random Media. *Il Nuovo Cimento 26*, 3833–3863.

Bruggeman, D. (1935). Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen. *Ann. Phys. (Leipz) 24*, 636–679.

Bruscaglioni, P., A. Ismaelli, et G. Zaccanti (1993). A note on the definition of scattering cross sections and phase functions for spheres immersed in an absorbing medium. *Waves in random media 3*, 147–156.

Calvo-Perez, O. (1999). *Diffusion des ondes électromagnétiques par un film diélectrique rugueux hétérogène. Etude expérimentale et modélisation*. Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Calvo-Perez, O., A. Sentenac, et J.-J. Greffet (1999). Light scattering by a two dimensional, rough penetrable medium: A mean-field theory. *Radio Science 34*, 311–335.

Carminati, R. et J.-J. Greffet (1999). Near-Field effects in spatial coherence of thermal sources. *Phys. Rev. Lett. 82*, 1660–1663.

Cartigny, J., Y. Yamada, et C. Tien (1986). Radiative Transfer With Dependent Scattering by Particles: Part 1- Theoretical investigation. *ASME Journal of Heat Transfer 108*, 608–613.

Case, K. et P. Zweifel (1967). *Linear Transport Theory*. Addison-Wesley Publishing Company.

Castel, T., A. Beaudoin, N. Floury, T. Le Toan, Y. Caraglio, et J. Barczi (2001). Deriving forest canopy parameters for backscatter models using the AMAP architectural plant model. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing 39*, 571–583.

Chabanov, A., M. Stoytchev, et A. Genack (1998). Statistical signatures of photon localization. *Nature 15*, 850–853.

Chandrasekhar, S. (1960). *Radiative Transfer*. Dover Publication.

Chateau, N. et J.-P. Hugonin (1994). Algorithm for the rigorous coupled-wave analysis. *J. Opt. Soc. Am. A 11*, 1321–1331.

Chen, B. et D. Nelson (1993a). Wave propagation of exciton polaritons by a wave-vector-space method. *Phys. Rev. B. 48*, 15372–15389.

Chen, B. et D. Nelson (1993b). Wave-vector-space method for wave propagation in bounded media. *Phys. Rev. B. 48*, 15365–15371.

Chylek, P. (1977). Light scattering by small particules in an absorbing medium. *J. Opt. Soc. Am. 67*, 561–563.

Clayton, C. et Y. Kuga (1995). Bistatic scattering characteristics of dense randomly distributed cylinders. *Radio Science 30*, 817–826.

Da Silva, A. (2001). *Étude théorique et expérimentale de la diffusion de la lumière dans des milieux hétérogènes denses multicouches*. Ph. D. thesis, Université Pierre et Marie Curie (P6).

Dalichaouch, R., J. Armstrong, S. Schultz, P. Platzman, et S. Mc Call (1991). Microwave localization by two-dimensional random scattering. *Nature 354*, 53–55.

Dolin, L. (1964). Ray description of weakly inhomogeneous wave fields. *Izv. VUZ Radiofiz 7*, 559–562.

Drolen, B., S. Kumar, et C. Tien (1987). Experiment on Dependent Scattering of Radiation. In *22nd Thermophys. conf.*, pp. 1–8.

Dyson, F. (1949a). The radiation theories of Tomonaga, Schwinger, and Feynmann. *Phys. Rev. 75*, 486–502.

Dyson, F. (1949b). The S matrix in quantum electrodynamics. *Phys. Rev. 75*, 1736–1755.

Elaloufi, R. (2003). *Propagation du rayonnement en milieu diffusant. Etude de la transition entre régime balistique et régime diffusif et des fluctuations temporelles d'intensité.* Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Elaloufi, R., R. Carminati, et J.-J. Greffet (2002). Time-dependent transport through scattering media: from radiative transfer to diffusion. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 4*, S103–S108.

Elaloufi, R., R. Carminati, et J.-J. Greffet (2003b). Definition of the diffusion coefficient in scattering and absorbing Media. *Accepted for publication in J. Opt. Soc. Am. A.*

Elaloufi, R., R. Carminati, et J.-J. Greffet (2003a). Diffusive to ballistic transition in dynamic light transmission through thin scattering slabs : A radiative transfer approch. *submitted to Phys. Rev. E.*

Elson, J. (1984). Theory of light scattering from rough surface with an inhomogeneous dielectric permittivity. *Phys. Rev. B 30*, 5460–5480.

Fardella, G. (1995). *Modélisation de l'émission thermique de rayonnement infrarouge par les milieux inhomogènes.* Ph. D. thesis, Université Pierre et Marie Curie (P6).

Fardella, G. et S. Berthier (1994). Infrared emissivity of inhomogeneous media. In *Physica A*, Volume 207, pp. 346–351.

Ferrazzoli, P. et L. Guerriero (1996). Passive microwave remote sensing of forests: A model investigation. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing 34*, 433–443.

Finkel'Berg (1968). Wave Propagation in a Random Medium. The correlation Group Method. *Soviet Physics JETP 26*, 268–277.

Foldy, L. (1945). General Theory of Isotropic Scattering by Randomly Distributed Scatterers. *Phys. Rev. 67*, 107–119.

Fraden, S. et G. Maret (1990). Multiple Light Scattering from Concentrated, Interacting Suspensions. *Phys. Rev. Lett. 65*, 512–515.

Frisch, U. (1967). *La propagation des ondes en milieu aléatoire et les équations stochastiques.* Institut d'Astrophysique.

Frisch, U. (1968). *Wave Propagation in Random Media*, Volume 1. In Bharuch-Reid, editor, in Probabilistic Methods in Applied Mathematics, Academic Press.

Fu, Q. et W. Sun (2001). Mie theory for light scattering by a spherical particle in an absorbing medium. *Applied Optics 40*(09), 1354–1361.

Fung, A. et M. Chen (1981). Scattering from a Rayleigh layer with an irregular interface. *Radio Science 15*, 1337–1347.

Fung, A. et H. Eom (1981). Multiple Scattering and Depolarisation by Randomly Rough Kirchhoff Surface. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation 29*(3), 463–471.

Garcia-Martin, A. et J. Saenz (2001). Universal Conductance Distributions in the Crossover between Diffusive and Localization Regimes. *Phys. Rev. Lett. 87*, 6603–6606.

Gélébard, B., D. Ferrand, H. J. Schnorenberg, et S. Avrilier (1995). Attenuation of coherent field in a dense scattering medium. In *Photon Propagation in tissues*, Volume 2626, pp. 66–74.

Giovannini, H., M. Saillard, et A. Sentenac (1998). Numerical study of scattering from rough inhomogeneous films. *J.Opt.Soc.Am. A 15*, 1182–1191.

Gobel, G., J. Kuhn, et J. Fricke (1995). Dependent scattering effects in latex-sphere suspensions and scattering powders. *Waves in Random Mdia 5*, 413–426.

Goodman, J. (1996). *Introduction to Fourier Optics*. McGraw-Hill Education (ISE Editions).

Goodman, J. (2000). *Statistical Optics*. John Wiley and Sons.

Goody, R. et Y. Yung (1995). *Atmospheric Radiation: theoritical Basis*. Oxford University Press.

Greffet, J.-J. (1998). *Electromagnétisme*. Ecole Centrale Paris.

Greffet, J.-J. et R. Carminati (1997). Image Formation in Near-Field Optics. *Progress in Surface Science 56*, 133–237.

Greffet, J.-J., R. Carminati, K. Joulain, J. Mulet, S. Mainguy, et Y. Chen (2002). Coherent emission of light by thermal sources. *Nature 416*, 61–64.

Greffet, J.-J. et M. Nieto-Vesperinas (1998). Field theory for generalized bidirectional reflectivity: derivation of Helmholtz's reciprocity principle and Kirchhoff's law. *J.Opt.Soc.Am. A 15*, 2735–2744.

Guinnepain, M. et J. Cladé (2001). Modélisation numérique de la diffraction d'une électromagnétique par un réseau. *Projet de deuxième année à l'Ecole Centrale Paris*.

Harrington, R. (1968). *Field Computation by moment methods*. Malabar, R.E. Krieger.

Heckmann, D. et S. Dvorak (2001). Numerical computation of Hankel functions of integer order for complex-valued arguments. *Radio Science 36*, 1265–1270.

Henkel, C. (1997). *Transfert Radiatif et Transport d'atomes*. Rapport Post Doctoral, Ecole Centrale Paris.

Henkel, C., K. Joulain, R. Carminati, et J.-J. Greffet (2000). Spatial coherence of thermal near fields. *Optics Communications 186*, 57–67.

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*. Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Hespel, L., S. Mainguy, et J.-J. Greffet (2001). Theoritical and experimental investigation of the extinction in a dense distribution of particles: nonlocal effects. *J.Opt.Soc.Am. A 18*, 3072–3076.

Hottel, H., A. Sarofim, et W. Vasalos, I.A. Dalzell (1970). Multiple Scatter: Comparison of Theory With Experiment. *Journal of Heat Transfer Mai*, 285–291.

Ishimaru, A. (1978a). *Wave Propagation and Scattering in Random Media, Volume 1: Single Scattering and Transport Theory*. Academic Press, New York.

Ishimaru, A. (1978b). *Wave Propagation and Scattering in Random Media, Volume 2: Multiple Scattering, Turbulence, Rough Surfaces and Remote Sensing*. Academic Press, New York.

Ishimaru, A. et J. Chen (1990). Scattering from very rough surfaces based on the modified second-order Kirchhoff approximation with angular and propagation shadowing. *J.Acoust.Soc.Am 88*, 1877–1883.

Ishimaru, A. et Y. Kuga (1982). Attenuation constant of a coherent field in a dense distribution of particles. *J.Opt.Soc.Am 72*, 1317–1320.

John, S. (1991). Localization of light. *Physics Today 32*, 32–40.

Karam, M., A. Fung, L. Lang, et N. Chauhan (1992). A microwave-scattering model for layered vegetation. *IEEE Transaction on Geoscience and Remote Sensing 30*, 767–784.

Keller, J. (1964). Stochastic equation and wave propagation in random media. In *Stochastic processes in mathematical physics and engineering: Proc. Symposium appl. math., New-York*, pp. 145–170.

Kop, R., P. de Vries, R. Sprik, et A. Lagendijk (1997). Observation of Anomalous Transport of Strongly Multiple Scattered Light in Thin Disordered Slabs. *Phys. Rev. Lett. 79*, 4369–4372.

Kuga, Y. et A. Ishimaru (1984). Retroreflectance from a Dense distribution of Spherical Particles. *J. Opt. Soc. Am. A 1*, 831–835.

Kuga, Y., F. Ulaby, T. Haddock, et R. DeRoo (1991). Millimeter-wave radar scattering from snow 1. Radiative transfer model. *Radio Science 26*, 329–341.

Kumar, S., A. Majumdar, et C. Tien (1990). The differential-discrete-ordinate method for solutions of the equation of radiative transfer. *Journal of Heat Transfer 112*, 424–429.

Lagendijk, A. et B. van Tiggelen (1996). Resonant multiple scattering of light. *Physics Reports 270*, 143–215.

Lalanne, P. et G. Morris (1996). Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polaization. *J.Opt.Soc.Am. A. 13*, 779–784.

Lam, C. et A. Ishimaru (1993). Mueller matrix representation for a slab of random medium with discrete particles and random rough surfaces with moderate surface roughness. *J. Phys. A: Math. Gen. 260*, 111–125.

Landau, L. et E. Lifchitz (1965). *Physique Statistique, tome 5 du traité de physique théorique.* Éditions Mir Moscou.

Landau, L., E. Lifchitz, et L. Pitaevskii (1985). *Electrodynamics of Continuous Media, Course of Theoretical Physics, Volume 8.* Elsevier Science, Second Edition.

Lax, M. (1951). Multiples Scattering of Waves. *Reviews of Modern Physics 23*(4), 287–310.

Lebedev, A., M. Gartz, U. Kreibig, et O. Stenzel (1999). Optical extinction by spherical particles in an absorbing media: Application to composite absorbing films. *Eur. Phys. J. D 6*, 365–373.

Lebedev, A. et O. Stenzel (1999). Optical extinction of an assembly of spherical particles in an absorbing medium: Application to silver cluster in absorbing organic materials. *Eur. Phys. J. D 7*, 83–88.

Li, L. (1996). Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures. *J.Opt.Soc.Am. A. 13*, 1870–1876.

Littlejohn, R. et R. Winston (1993). Corrections to classical radiometry. *J.Opt.Soc.Am. A 10*(9), 2024–2037.

Littlejohn, R. et R. Winston (1995). Generalized Radiance and Measurement. *J.Opt.Soc.Am. A 12*(12), 2736–2743.

Lu, C., W. Chew, et L. Tsang (1995). The application of recursive aggregate T-matrix algorithm in the Monte Carlo simulations of the extinction rate of random distribution of particles. *Radio Science 30*, 25–28.

Lu, C., Y. Wang, W. Chew, et L. Tsang (1993). The Application of Recursive Aggregate T-matrix Algorithm in the Monte Carlo Simulations of the Extinction Rate of Random Particles. In *IEEE, New York*, pp. 1292–1295.

Mandel, L. et E. Wolf (1995). *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press.

Mandt, C., Y. Kuga, et A. Ishimaru (1992). Microwave propagation and scattering in a dense distribution of non-tenuous spheres: experiment and theory. *Waves in Random Media 2*, 225–234.

Mareschal, P. (1996). *Étude de la diffraction électromagnétique par des géométries bidimentionnelles infinies*. Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Maxwell-Garnet, J. (1904). Colours in metal glasses and metallics films. *Philos. Trans. R. Soc. A 203*, 159–163.

Meyzonnette, J.-L. et T. Lépine (2001). *Bases de Radiométrie Optique*. Cépaduès-Éditions.

Mishchenko, M. (1990). Extinction of Light by Randomly-Oriented Non-Spherical Grains. *Astrophysics and Space Science 164*, 1–13.

Mishchenko, M. (1991). Light scattering by randomly oriented axially symmetric particles. *J.Opt. Soc. Am. A 8*(6), 871–882.

Mishchenko, M. (1996). Coherent backscattering by two-spheres clusters. *Optics Letters 21*(9), 623–625.

Mishchenko, M. et D. Mackowski (1996). Electromagnetic Scattering by Randomly Oriented Bispheres: Comparison of Theory and Experiment and Benchmark Calculations. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 55*(6), 683–694.

Mishchenko, M., D. Mackowski, et L. Travis (1995). Scattering of light by bispheres with touching and separated components. *Applied Optics 34*(21), 4589–4599.

Moore, J., H. Ling, et C. Liang (1993). The scattering and Absorption characteristics of materials coated periodic gratings under oblique incidence. *IEEE Trans. Antennas Propagati. 41*, 1281–1288.

Mundy, W., J. Roux, et A. Smith (1974). Mie scattering by spheres in an absorbing medium. *J. Opt. Soc. Am. 64*, 1593–1597.

Nashashibi, A. et K. Sarabandi (1999). Experimental characterization of the effective propagation constant of dense random media. *IEEE Transaction on Antennas and Propagation 47*(9), 1454–1462.

Nelson, D. (1995). Deriving the transmission and reflection coefficients of an optically active medium without using boundary conditions. *Phys. Rev. E 51*, 6142–6153.

Nieto-Vesperinas, M., J. Sanchez-Gil, A. Sant, et J. Dainty (1990). Light transmission from a randomly rough dielectric diffuser: theoretical and experimental results. *Optics Letters 15*(22), 1261–1263.

Ogilvy, J. (1991). *Theory of wave scattering from random rough surfaces*. Adam Hilger.

Pak, K., L. Tsang, L. Li, et C. Chan (1993). Combined random rough surface and volume scattering based on Monte Carlo simulations of solutions of Maxwell's equations. *Radio Science 28*, 331–338.

Percus, J. et G. Yevick (1958). Analysis of Classical Statistical Mechanics by Means of collective Coordinates. *Physical Review 110*(1), 1–13.

Petit, R. (1988). *Ondes électromagnétiques en radio électricité et en optique*. Masson, Paris.

Petit, R. (1991). *L'outil mathématique*. Masson, Paris 3ème édition.

Poggio, A. et E. Miller (1973). Integral equations solutions for three-dimensional scattering problems. *Computer techniques for electromagnetics , Vol. 7 of Monographs in electrical engineering (First ed.) Pergamon Press, Oxford*, 159–264.

Quinten, M. et J. Rostalski (1996). Lorenz-Mie Theory for Spheres Immersed in an Absorbing Host Medium. *Part. Part. Syst. Charact. 13*, 89–96.

Rayleigh, L. J. S. (1871). On light from the sky, its Polarization and Colour. *Philosophical Magazine 41*, 107–120,274–279.

Rayleigh, L. J. S. (1899). On Transmission of Light through an Atmosphere containing Small Particles in Suspension, and on the Origin of the Blue of the Sky. *Philosophical Magazine 47*, 375–384.

Roux, L. (1999). *Etude numérique de la diffusion multiple dans des milieux aléatoires. Modèles de transfert radiatif et électromagnétique*. Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Roux, L., P. Mareschal, N. Vukadinovic, J.-B. Thibaud, et J.-J. Greffet (2001). Scattering by a slab containing randomly located cylinders: comparison between radiative transfer and electromagnetic simulation. *J.Opt.Soc.Am. A 18*(2), 374–384.

Rytov, S., Y. Kravtsov, et V. Tatarskii (1989b). *Principles of Statistical Radiophysics, Volume III: Elements of Random Fields*. Springer-Verlag, Berlin.

Rytov, S., Y. Kravtsov, et V. Tatarskii (1989a). *Principles of Statistical Radiophysics, Volume IV: Wave Propagation Through Random Media*. Springer-Verlag, Berlin.

Ryzhik, L., G. Papanicolaou, et J. Keller (1996). Transport equations for elastic and other waves in random media. *Wave Motion 24*, 327–370.

Saillard, M. et A. Sentenac (2001). Rigourous solutions for electromagnetic scattering from rough surface. *Waves in Random Media 11*, 103–137.

Sarabandi, K. et P. Siqueira (1997). Numerical Scattering Analysis for Two-Dimensional Dense Random Media: Characterization of Effective Permittivity. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation 45*, 858–867.

Scheffold, F., R. Lenke, R. Tweer, et G. Maret (1999). Localization or classical diffusion of lightΓ *Nature 398*, 206–207.

Scheffold, F. et G. Maret (1998). Universal Conductance Fluctuations of Light. *Phys. Rev. Lett. 81*, 5800–5803.

Sentenac, A. (1993). *Etude de la diffusion des ondes électromagnétiques par des surfaces rugueuses. Application à la conception de surfaces sélectives*. Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Sentenac, A., H. Giovannini, et M. Saillard (2002). Scattering from rough inhomogeneous media: splitting of surface and volume scattering. *J.Opt.Soc.Am. A 19*, 727–736.

Sentenac, A. et J.-J. Greffet (1998). Mean-field theory of light scattering by one-dimensional rough surfaces. *J.Opt.Soc.Am. A 15*, 528–532.

Shchegrov, A., K. Joulain, R. Carminati, et J.-J. Greffet (2000). Near-field spectral effects due to electromagnetic surface excitations. *Phys. Rev. Lett. 85*, 1548–1551.

Sheng, P. (1995). *Introduction to Wave Scattering Localization, and Mesoscopic Phenomena*. Academic Press, inc, San Diego.

Simon, J.-C. (1995). *Chap 3: Diffusion de la lumière dans un milieu absorbant*. Ph. D. thesis, Université Pierre et Marie Curie (P6).

Siqueira, P. et K. Sarabandi (1996). Method of Moment Evaluation of the Two-Dimensional Quasi-Crystalline Approximation. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation 44*, 1067–1077.

Siqueira, P. et K. Sarabandi (2000). T-Matrix Determination of Effective Permittivity for Three-Dimensional Dense Random Media. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation 48*, 317–327.

Snabre, P. et A. Arhaliass (1998). Anisotropic scattering of light in random media: incoherent backscattered spot light. *Applied Optics 37*, 4017–4026.

Snabre, P. et L. Brunel (Mai, 2001). Diffusion multiple de la lumière dans des milieux hétérogènes. *Ecole de printemps de rayonnement d'Olérons*.

Soriano, G., C. Guerin, et M. Saillard (2002). Scattering by two-dimensional rough surfaces: comparison between the method of moments, Kirchhoff and small-slop approximations. *Waves in random media 12*(1), 63–83.

Soubret, A. (2001). *Diffusion des ondes électromagnétiques par des milieux et des surfaces aléatoires: étude des effets cohérents dans le champ diffusé*. Ph. D. thesis, Université de la Méditerranée - Aix Marseille II - Centre de physique Théorique.

Stamnes, K., S.-C. Tsay, W. Wiscombe, et K. Jayaweera (1988). Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-methode radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media. *Applied Optics 27*, 2502–2509.

Sudiarta, I. et P. Chylek (2001a). Mie scattering efficiency of a large spherical particle embedded in an absorbing medium. *J.Q.S.R.T. 70*, 709–714.

Sudiarta, I. et P. Chylek (2001b). Mie-scattering formalism for spherical particles embedded in an absorbing medium. *J.Opt.Soc.Am. A 18*(6), 1275–1278.

Sun, W., Q. Fu, et Z. Chen (1999). Finite-difference time-domain solution of light scattering by dielectric particles with a perfectly matched layer absorbing boundary condition. *Applied Optics 38*, 3141–3151.

Tai, C.-T. (1993). *Dyadic Green Function in electromagnetic Theory*. IEEE PRESS.

Tamoikin, V. (1971). The average field in a medium having strong anisotropic inhomogeneities. *Radiophysics Quantum Electron. 50*, 228–233.

Thibaud, J.-B. (2000). *Propagation de la lumière en milieu aléatoire. Fondement et limites de la description radiométrique. Application à l'imagerie*. Ph. D. thesis, Ecole Centrale Paris.

Thomas, G. et K. Stamnes (1999). *Radiative Transfer in the Atmosphere and Ocean*. Cambridge University Press.

Tourin, A., A. Derode, P. Roux, B. Van Tiggelen, et M. Fink (1997). Time-Dependent Coherent Backscattering of Acoustic Waves. *Phys. Rev. Lett. 79*, R31–R60.

Tourin, A., M. Fink, et A. Derode (2000). Multiple scattering of sound. *Waves in Random Media 10*, R31–R60.

Tsang, L., C.-T. Chen, A. Chang, J. Guo, et K.-H. Ding (2000). Dense media radiative transfer theory based on quasicrystalline approximation with applications to passive microwave remote sensing of snow. *Radio Science 35*, 731–749.

Tsang, L. et J. Kong (1981). Scattering of electromagnetic waves from random media with strong permittivity fluctuations. *Radio Science 16*, 303–320.

Tsang, L. et J. Kong (2001). *Scattering of Electromagnetic Waves, Volume III: Advanced Topics*. Wiley Series.

Tsang, L., J. Kong, et K.-H. Ding (2000). *Scattering of Electromagnetic Waves, Volume I: Theories and Applications*. Wiley Series.

Tsang, L., J. Kong, K.-H. Ding, et C. Ao (2001). *Scattering of Electromagnetic Waves, Volume II: Numerical Simulations*. Wiley Series.

Tsang, L., J. Kong, et R. Shin (1984). Radiative transfer theory for active remote sensing of a layer of nonspherical particles. *Radio Science 19*(2), 629–642.

Tsang, L., J. Kong, et R. Shin (1985). *Theory of Microwave Remote Sensing*. Wiley Series in Remote Sensing.

Tsang, L., C. Mandt, et K. Ding (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.

Twersky, V. (1978). Acoustic bulk parameters in distributions of pair-correlated scatterers. *J. Acoust. Soc. Am 64*, 1710–1719.

Twersky, V. (1979). Propagation in pair-correlated distribution of small-spaced lossy scatterers. *J. Opt. Soc. Am 69*, 1567–1552.

Ulaby, F., R. Moore, et A. Fung (1982). *Microwave Remote Sensing Volume 2, Radar Remote Sensing and Surface Scattering And Emission Theory*. Addison-Wesley Publishing Company.

van Albada, M. et A. Lagendijk (1985). Observation of Weak Localization of Light in a Random medium. *Phys. Rev. Lett. 55*, 2692–2695.

van de Hulst, H. (1949). On the attenuation of plane waves by obstacles of arbitrary size and form. *Physica 62*, 740–746.

van de Hulst, H. (1981). *Light Scattering by Small Particles*. Dover Publication.

van Rossum, M. et T. Nieuwenhuizen (1999). Multiple scattering of classical wave: microscopy, mesoscopy, and diffusion. *Reviews of Modern Physics 71*, 313–371.

van Tiggelen, B. (1992). *Multiple scattering and localization of light*. Ph. D. thesis, FOM institute for Atomic and Molecular Physics.

van Tiggelen, B. et A. Lagendijk (1994). Resonantly induced dipole-dipole interactions in the diffusion of scaler waves. *Phys. Rev. B 50*, 16729–16732.

Voronovich, A. (1985). Small-slope approximation in wave scattering by rough surface. *Sov. Phys. JETP 62*, 65–70.

Wagner, R. (1966). Shadowing of Randomly Rough Surfaces. *J.Acoust.Soc.Am 41*, 138–147.

Walther, A. (1968). Radiometry and Coherence. *J.Opt.Soc.Am. 58*, 1256–1259.

Walther, A. (1973). Radiometry and Coherence. *J.Opt.Soc.A. 63*, 1622–1623.

Wang, L. (1991). *Generalized Moment Method in Electromagnetics: Formulation and Computer Solution of Integral Equations*. Wiley, New York.

Waterman, P. (1971). Symmetry, Unitarity, and Geometry in Electromagnetic Scattering. *Phys. Rev. D 3*(4), 825–839.

Wertheim, M. (1963). Exact Solution of the Percus-Yevick Integral Equation for Hard Spheres. *Phys. Rev. Lett. 10*, 321–323.

West, R., D. Gibbs, L. Tsang, et A. Fung (1994). Comparison of optical scattering experiments and the quasi-crystalline approximation for dense media. *J.Opt.Soc.Am. A 11*(6), 1854–1858.

Wiersma, D. (1995). *Light in Strongly Scattering and Amplifying Random Media*. Ph. D. thesis, FOM institute for Atomic and Molecular Physics.

Wiersma, D., P. Bartolini, A. Lagendijk, et R. Righini (1997). Localization of light in a disordered medium. *Nature 390*, 671–673.

Wiersma, D., J. Rivas, P. Bartolini, A. Lagendijk, et R. Righini (1999). Localization or classical diffusion of lightΓ Reply. *Nature 398*, 207–207.

Wiersma, D., M. van Albada, B. van Tiggelen, et A. Lagendijk (1995). Experimental Evidence for Recurrent Multiple Scattering Events of Light in Disordered Media. *Phys. Rev. Lett. 30*, 4193.

Wiscombe, W. (1980). Improved Mie scattering algorithms. *Applied Optics 19*(9), 1505–1509.

Wolf, E. (1978). Coherence and Radiometry. *J.Opt.Soc.Am. 68*, 6–17.

Wolf, P.-E. et G. Maret (1985). Weak Localization and Coherent Backscattering of Photons in Disordered Media. *Phys. Rev. Lett. 55*, 2696–2699.

Yaghjian, A. (1980). Electric Dyadic Green's Functions in the Source Region. *Proceedings of The IEEE 68*, 248–263.

Yamada, Y., J. Cartigny, et C. Tien (1986). Radiative Transfer With Dependent Scattering by Particles: Part 2- Experimental investigation. *ASME Journal of Heat Transfer 108*, 614–618.

Yang, P., B.-C. Gao, W. Wiscombe, M. Mishchenko, S. Platnick, H.-L. Huang, B. Baum, X. Hu, D. Winker, S.-C. Tsay, et S. Park (2002). Inherent and apparent scattering properties of coated or uncoated spheres embedded in an absorbing host medium. *Applied Optics. 41*, 2740–2759.

Yoo, K., F. Liu, et R. Alfano (1990). When does the Diffusion Approximation Fail to Describe Photon Transport in Random MediaΓ *Phys. Rev. Lett. 64*, 2740–2759.

Résumé

L'étude de la propagation de la lumière à travers un milieu diffusant est un sujet de recherche d'une portée à la fois fondamentale et appliquée : - fondamentale pour l'étude des phénomènes de transport en général ; - et appliquée par exemple pour évaluer les propriétés radiatives de revêtements (comme des peintures diffusantes), pour faire de l'imagerie à travers un milieu diffusant (tissus vivants) *etc*... De manière générale, la lumière est diffusée (*scattered* en anglais) lorsqu'elle se propage dans un milieu hétérogène. Du point de vue de la théorie électromagnétique, un milieu est dit hétérogène quand l'indice de réfraction varie spatialement. En principe, la solution exacte du problème s'obtient par la résolution numérique des équations de Maxwell, mais si le système hétérogène étudié dépasse en taille quelques longueurs d'onde, alors le nombre d'inconnues est beaucoup trop important pour que l'on puisse résoudre exactement le problème. Il est nécessaire de moyenner les propriétés de diffusion du système. Pour un milieu fortement diffusant, et de taille macroscopique, on peut décrire phénoménologiquement le transport de la lumière au moyen d'une équation de diffusion (*diffusion* en anglais) tout comme est décrit le transport de chaleur ou de masse. On peut aussi décrire le transport de la lumière au moyen d'une Equation de Transfert Radiatif (ETR) plus générale que l'équation de la diffusion. Cette équation, une fois résolue, donne des résultats qui sont en très bon accord avec l'expérience si les paramètres de cette équation sont correctement évalués.

La majeure partie de cette thèse est consacrée à cet aspect : la détermination des paramètres de l'ETR pour un milieu contenant des particules de taille comparable à la longueur d'onde, aléatoirement disposées dans un milieu **absorbant**. Alors que les modèles pour l'obtention de ces paramètres décrits dans la littérature en présence d'absorption sont tous phénoménologiques, nous présentons une méthode basée sur une théorie de champ rigoureuse et qui permet de définir sans ambiguïté ces paramètres. Nous analysons par ailleurs le rôle des corrélations en milieu absorbant (diffusion dépendante).

Nous nous intéressons aux milieux fortement chargés pour lesquels les corrélations sur les positions des diffuseurs jouent un rôle fondamental et rendent le calcul très complexe. Nous présentons les premiers pas d'une méthode numérique capable de prendre en compte toutes les corrélations entre les paires de particules, ce qui permet de calculer le coefficient d'extinction au delà de l'approximation de la diffusion indépendante.

Enfin, nous cherchons à évaluer les propriétés radiatives d'un système couramment rencontré : celui d'une couche diffusante à la fois en surface et en volume. Nous étudions en particulier le rôle de la diffusion multiple entre l'interface rugueuse et le volume chargé.

Mots clés

Transport d'ondes, optique, ondes électromagnétiques, milieux hétérogènes, surfaces rugueuses, diffusion, absorption, équation de transfert radiatif, radiométrie, cohérence, théorie de champ perturbative, corrélations, diffusion dépendante, méthode diagrammatique, méthode des moments, ordonnées discrêtes, matrices T, couplage diffusion surface-volume.