



HAL
open science

Méthodes approchées pour les propriétés optiques d'agrégats de particules sphériques non absorbantes

Sandra Jacquier

► **To cite this version:**

Sandra Jacquier. Méthodes approchées pour les propriétés optiques d'agrégats de particules sphériques non absorbantes. Génie des procédés. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2006. Français. NNT: . tel-00137499

HAL Id: tel-00137499

<https://theses.hal.science/tel-00137499>

Submitted on 20 Mar 2007

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.



N° d'ordre : 425 GP

THESE
Présentée par

Sandra Jacquier

Pour obtenir le grade de Docteur
de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne

Spécialité : Génie des procédés

*Méthodes approchées pour les propriétés optiques d'agrégats de
particules sphériques non absorbantes*

Soutenue à Saint-Étienne le 11 Décembre 2006

Membres du jury, Messieurs

Président :	Jean-Charles Pinoli	Professeur, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne
Rapporteurs :	Gilles Fevotte	Professeur, Ecole Supérieure de Chimie Physique et Electronique de Lyon
	José-Marie Lopez-Cuesta	Maître-Assistant HDR, Ecole des Mines d'Alès
Examineurs :	Luis Garcia-Rubio	Professor, University of South Florida
	Benno Wessely	Professor, Technical University of Dresden
Directeur de thèse :	Frédéric Gruy	Professeur, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne

● **Spécialités doctorales :**

**SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX
MECANIQUE ET INGENIERIE
GENIE DES PROCEDES
SCIENCES DE LA TERRE
SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT
MATHÉMATIQUES APPLIQUÉES
INFORMATIQUE
IMAGE, VISION, SIGNAL
GENIE INDUSTRIEL
MICROELECTRONIQUE**

Responsables :

J. DRIVER Directeur de recherche – Centre SMS
A. VAUTRIN Professeur – Centre SMS
G. THOMAS Professeur – Centre SPIN
B. GUY Maître de recherche
J. BOURGOIS Professeur – Centre SITE
E. TOUBOUL Ingénieur
O. BOISSIER Professeur – Centre G2I
JC. PINOLI Professeur – Centre CIS
P. BURLAT Professeur – Centre G2I
Ph. COLLOT Professeur – Centre CMP

● **Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat** (titulaires d'un doctorat d'Etat ou d'une HDR)

BENABEN	Patrick	PR 2	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
BERNACHE-ASSOLANT	Didier	PR 1	Génie des Procédés	CIS
BIGOT	Jean-Pierre	MR	Génie des Procédés	SPIN
BILAL	Essaïd	MR	Sciences de la Terre	SPIN
BOISSIER	Olivier	PR 2	Informatique	G2I
BOUDAREL	Marie-Reine	MA	Sciences de l'inform. & com.	DF
BOURGOIS	Jacques	PR 1	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
BRODHAG	Christian	MR	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
BURLAT	Patrick	PR 2	Génie industriel	G2I
COLLOT	Philippe	PR 1	Microélectronique	CMP
COURNIL	Michel	PR 1	Génie des Procédés	SPIN
DAUZERE-PERES	Stéphane	PR 1	Génie industriel	CMP
DARRIEULAT	Michel	ICM	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
DECHOMETS	Roland	PR 2	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
DELAFOSSÉ	David	PR 2	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
DOLGUI	Alexandre	PR 1	Informatique	G2I
DRAPIER	Sylvain	PR 2	Mécanique & Ingénierie	CIS
DRIVER	Julian	DR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
FOREST	Bernard	PR 1	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
FORMISYN	Pascal	PR 1	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
FORTUNIER	Roland	PR 1	Sciences & Génie des Matériaux	CMP
FRACZKIEWICZ	Anna	MR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
GARCIA	Daniel	CR	Génie des Procédés	SPIN
GIRARDOT	Jean-Jacques	MR	Informatique	G2I
GOEURIOT	Dominique	MR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
GOEURIOT	Patrice	MR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
GRAILLOT	Didier	DR	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
GROSSEAU	Philippe	MR	Génie des Procédés	SPIN
GRUY	Frédéric	MR	Génie des Procédés	SPIN
GUILHOT	Bernard	DR	Génie des Procédés	CIS
GUY	Bernard	MR	Sciences de la Terre	SPIN
GUYONNET	René	DR	Génie des Procédés	SPIN
HERRI	Jean-Michel	PR 2	Génie des Procédés	SPIN
JOYE	Marc	Ing. (Gemplus)	Microélectronique	CMP
KLÖCKER	Helmut	CR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
LAFORÉST	Valérie	CR	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
LE COZE	Jean	PR 1	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
LI	Jean-Michel	EC (CCI MP)	Microélectronique	CMP
LONDICHE	Henry	MR	Sciences & Génie de l'Environnement	SITE
MOLIMARD	Jérôme	MA	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
MONTHEILLET	Frank	DR 1 CNRS	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
PERIER-CAMBY	Laurent	MA1	Génie des Procédés	SPIN
PIJOLAT	Christophe	PR 1	Génie des Procédés	SPIN
PIJOLAT	Michèle	PR 1	Génie des Procédés	SPIN
PINOLI	Jean-Charles	PR 1	Image, Vision, Signal	CIS
STOLARZ	Jacques	CR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
SZAFNICKI	Konrad	CR	Sciences de la Terre	SITE
THOMAS	Gérard	PR 1	Génie des Procédés	SPIN
TRAN MINH	Cahn	MR	Génie des Procédés	SPIN
VALDIVIESO	Françoise	CR	Génie des Procédés	SPIN
VALDIVIESO	François	MA	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
VAUTRIN	Alain	PR 1	Mécanique & Ingénierie	SMS
VIRICELLE	Jean-Paul	CR	Génie des procédés	SPIN
WOLSKI	Krzysztof	CR	Sciences & Génie des Matériaux	SMS
XIE	Xiaolan	PR 1	Génie industriel	CIS

Glossaire :

PR 1	Professeur 1 ^{ère} catégorie
PR 2	Professeur 2 ^{ème} catégorie
MA(MDC)	Maître assistant
DR 1	Directeur de recherche
Ing.	Ingénieur
MR(DR2)	Maître de recherche
CR	Chargé de recherche
EC	Enseignant-chercheur
ICM	Ingénieur en chef des mines

Centres :

SMS	Sciences des Matériaux et des Structures
SPIN	Sciences des Processus Industriels et Naturels
SITE	Sciences Information et Technologies pour l'Environnement
G2I	Génie Industriel et Informatique
CMP	Centre de Microélectronique de Provence
CIS	Centre Ingénierie et Santé

« La non-existence, n'existe pas. »(*Moi*)

Avant propos

Trois ans se sont déjà écoulés, depuis que je me suis installée pour la première fois à mon bureau et que je me suis dit : « Sandra au travail, il va falloir éclairer ta lanterne sur ce sujet ! ». Rappelons que mon sujet de thèse concerne les propriétés optiques et est donc en lien avec la lumière. Ajoutons que le symbole de l'école est une lampe de mineur et vous comprendrez tout le sens de ma phrase. Depuis, les jours sont passés et il a fallu se décider à mettre un point final à ce manuscrit bien que j'aurais aimé pouvoir tester d'avantage de voies d'étude ou les compléter. Pour moi, la recherche se vit au jour le jour, avec ses grands moments : de satisfaction mais aussi de doute et de remise en question. Si ce manuscrit n'avait pas un côté formel, j'aurais très facilement ajouté toutes ces petites remarques de vie pour le rendre plus vivant néanmoins l'important est de conduire le lecteur au travers d'un raisonnement le plus objectif possible, j'espère avoir réussi.

Au terme de cette aventure, et avant de laisser le lecteur découvrir les résultats obtenus pendant ses trois années, de nombreux remerciements s'imposent.

J'exprime toute ma reconnaissance et mon admiration à Monsieur Frédéric Gruy qui a encadré ce travail, pour la confiance qu'il m'a témoignée en me laissant une grande autonomie, tout en me guidant par son génie mathématique. Par son amour des sciences et de la recherche, il a su créer un climat de travail agréable et efficace.

Que Messieurs Gilles Fevotte et José-Marie Lopez-Cuesta qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire trouvent ici ma reconnaissance pour la lecture approfondie qu'ils ont faite de ces pages et les remarques constructives qu'ils ont apportées à ce travail de doctorat.

Je remercie également Messieurs Luis Garcia Rubio, Jean-Charles Pinoli et Benno Wessely. Je suis très honorée qu'ils aient accepté de faire partie de mon jury de thèse, et qu'ils m'aient fait partager leurs expériences respectives sur ce domaine de recherche au cours de discussions à la suite de ce mémoire.

Pour son intervention rapide lors des coupures de courant électrique ou des soucis informatiques, je remercie Jérôme Marcuso.

D'autre part, je tiens également à remercier Messieurs Yu-Lin Xu, Jean-Claude Auger, Nikolai Voshchinnikov et Vladimir Il'in pour avoir toujours répondu à mes questions très rapidement dans les grands moments de solitude que crée un bug informatique.

Une thèse, c'est également un travail dans un laboratoire où j'ai partagé non seulement des connaissances scientifiques mais aussi de vrais échanges humains, à ce titre je remercie : mes supers collègues de bureau Myriam Darbouret et Duc Nguyen Hong avec qui l'ambiance de travail a toujours été studieuse et amicale, ambiance qui a continué avec les « petits » nouveaux : Fatima-Zahra Hentati, George Crawley et Hung Le Ba. Je remercie également le groupe de Musique Diwane (D1) et les voisins de couloir : Luc Véchet, Fabien Chauvy, Nicolas Thonnet, Assane Thian, Ana Cameirao, Olivier Bonnefoy, Andrée-Aimée Toucas, Jean-Michel Herri, Jean-Pierre Bigot, Annie Fidel-Dufour, Abdellah Touil, Wilfried Minko, Kamel Berrada, Richard Drogo, Alain Lallemand, Thomas Richter, Marie-Claude Bartholin, Paul Jouffrey, Florence Delaporte....le personnel de l'école.

Lorsque l'on est enfant, on ne rêve pas de faire de la recherche, c'est beaucoup plus tard qu'on y songe, à la suite de rencontre avec des personnes passionnées par leur travail. A ce titre je voudrais remercier les enseignants que j'ai rencontrés après le baccalauréat et qui ont contribué indirectement à mon orientation dans cette voie, ainsi que mes directeurs de stage et plus particulièrement Thomas Germer.

Je remercie également : mes parents pour m'avoir offert la grande liberté de choisir ma voie professionnelle et soutenue dans mes choix, c'est un merveilleux cadeau; mais aussi Nelly, Maryane, Mikaël, Pierre-Jean et Marie pour leur soutien et patience.

Je finis donc ce mémoire, par ces quelques lignes et laisse le lecteur, qui a en main ce manuscrit, poursuivre sa lecture (lorsqu'on commence, on finit !).

Sandra Jacquier

Soutenance +5 jours

Table des matières

Introduction	- 1 -
Partie A. Etat des lieux	- 5 -
Chapitre I Notions de Base	- 7 -
A.I.1. Agrégats	- 7 -
A.I.1.1 Qu'est-ce qu'un agrégat ?	- 7 -
A.I.1.2 Comment le caractériser ?	- 8 -
A.I.2. Définitions élémentaires en optique	- 8 -
A.I.2.1 Onde électromagnétique	- 8 -
A.I.2.2 Interférence	- 9 -
A.I.2.3 Diffusion	- 9 -
A.I.2.4 Diffraction	- 10 -
A.I.3. Méthodes granulométriques	- 11 -
A.I.3.1 Turbidimétrie	- 12 -
A.I.3.1.a) Principe	- 12 -
A.I.3.1.b) Limitation (Brochette TI,J2150)	- 13 -
A.I.3.1.c) Milieux concentrés	- 13 -
A.I.3.2 Granulométrie à diffraction Laser	- 14 -
A.I.3.2.a) Principe	- 14 -
A.I.3.2.b) Limitation	- 15 -
A.I.3.3 Mesure de corde	- 15 -
A.I.3.3.a) Principe	- 15 -
A.I.3.3.b) Limitation	- 16 -
A.I.4. Bilan	- 16 -
Chapitre II Théorie de Mie pour une sphère	- 17 -
A.II.1. Les équations de Maxwell	- 17 -
A.II.2. Théorie de Mie	- 18 -
A.II.2.1 Equation d'onde vectorielle	- 19 -
A.II.2.2 Equation d'onde scalaire	- 20 -
A.II.2.2.a) Equation radiale :	- 20 -
A.II.2.2.b) Equation polaire :	- 21 -
A.II.2.2.c) Equation azimutale :	- 21 -
A.II.3. Expressions des champs	- 23 -

A.II.3.1 Les champs incidents :	- 24 -
A.II.3.2 Les champs internes et diffus	- 25 -
A.II.3.2.a) Champs internes :	- 25 -
A.II.3.2.b) Champs diffus :	- 25 -
A.II.3.3 Solution en champ lointain	- 26 -
A.II.3.4 Sections efficaces.....	- 27 -
A.II.3.5 Remarque	- 28 -
A.II.4. Bilan.....	- 28 -
Chapitre III Modèles pour un agrégat	- 29 -
A.III.1. Les différentes méthodes	- 29 -
A.III.1.1 Aperçu des différentes méthodes.....	- 29 -
A.III.1.2 « la méthode »: T-Matrix.....	- 31 -
A.III.1.3 Par superposition	- 32 -
A.III.2. GMM	- 32 -
A.III.2.1 Historique	- 34 -
A.III.2.2 Contexte de GMM.....	- 34 -
A.III.2.2.a) Introduction	- 34 -
A.III.2.2.b) Hypothèses	- 34 -
A.III.2.3 Généralisation de la théorie de Mie.....	- 35 -
A.III.2.3.a) Expression des champs incidents et diffus pour chaque sphère	- 35 -
A.III.2.3.b) Changement de repère.....	- 36 -
A.III.2.4 La solution en champ lointain :	- 39 -
A.III.2.5 Sections efficaces et paramètre d'asymétrie.....	- 42 -
A.III.3. Travaux sur la caractérisation d'un agrégat :	- 44 -
A.III.4. Bilan	- 45 -
Chapitre IV Méthodes approchées: milieu homogène	- 47 -
A.IV.1. Approximation de Rayleigh	- 47 -
A.IV.2. Approximation de Rayleigh- Debye-Gans (RDG).....	- 47 -
A.IV.3. Diffraction Anormale (DA).....	- 49 -
A.IV.4. Approximation des rayons optiques.....	- 51 -
A.IV.5. Bilan	- 52 -
Chapitre V Méthodes approchées : milieu hétérogène	- 53 -
A.V.1. Milieu effectif.....	- 53 -

A.V.1.1 Mélange composite :.....	- 53 -
A.V.1.2 Maxwell Garnett.....	- 54 -
A.V.1.3 Bruggeman	- 55 -
A.V.1.4 Looyenga	- 56 -
A.V.1.5 Lichtenecker	- 56 -
A.V.2. Relation entre la diffusion multiple et la fraction volumique.....	- 57 -
A.V.3. Bilan	- 57 -
Bilan de la partie A.....	- 58 -
Partie B. Expériences numériques.....	- 59 -
Chapitre I : Description géométrique des agrégats en 3D.....	- 61 -
B.I.1. Liste des coordonnées cartésiennes.....	- 61 -
B.I.2. Objet équivalent	- 63 -
B.I.2.1 Choix d'un objet équivalent	- 63 -
B.I.2.2 Distributions des surfaces projetées et des cordes pour un sphéroïde.....	- 64 -
B.I.2.2.a) Intersection ellipsoïde/droite	- 65 -
B.I.2.2.b) Distribution des surfaces projetées	- 66 -
B.I.2.2.c) Distribution de cordes	- 67 -
B.I.3. Surface projetée : S_p	- 70 -
B.I.3.1 Algorithme pour obtenir la surface projetée moyenne et $D(S_p)$	- 70 -
B.I.3.2 Distribution pour une sphère, des sphéroïdes et des agrégats de sphères -	71 -
B.I.3.2.a) Sphéroïdes:	- 71 -
B.I.3.2.b) Agrégats de sphères :	- 79 -
B.I.3.3 Sphère et Sphéroïde équivalents :	- 83 -
B.I.3.3.a) Sphère équivalente:	- 83 -
B.I.3.3.b) Sphéroïde équivalent:.....	- 86 -
B.I.4. Corde : l	- 91 -
B.I.4.1 Algorithme pour obtenir la corde moyenne et $D(l)$	- 91 -
B.I.4.2 Distribution pour une sphère, des sphéroïdes et des agrégats de sphères -	92 -
B.I.4.2.a) Sphère et sphéroïdes :.....	- 92 -
B.I.4.2.b) Agrégats :	- 97 -
B.I.5. Bilan	- 110 -
Chapitre II Conditions de l'étude des propriétés optiques	- 111 -
B.II.1. Programmation de la méthode exacte	- 111 -

B.II.2. Type d'agrégat	- 112 -
B.II.3. Condition de comparaison :	- 113 -
B.II.3.1 Moyenne sur les orientations	- 113 -
B.II.3.2 Temps de calcul	- 113 -
B.II.4. Bilan	- 114 -
Chapitre III Caractérisation avec la méthode exacte	- 115 -
B.III.1. La section efficace de diffusion	- 115 -
B.III.1.1 Une sphère	- 115 -
B.III.1.2 Effet du nombre de particules primaires.....	- 116 -
B.III.1.3 Effet de la morphologie	- 120 -
B.III.2. Section efficace de pression de radiation	- 128 -
B.III.2.1 Pour une sphère	- 128 -
B.III.2.2 Effet du nombre de particules primaires.....	- 130 -
B.III.2.3 Effet de la morphologie	- 131 -
B.III.3. Bilan.....	- 133 -
Chapitre IV Méthodes approchées pour un agrégat	- 135 -
B.IV.1. Etude préliminaire	- 135 -
B.IV.1.1 Approximation de Rayleigh	- 135 -
B.IV.1.2 Effet de la distance inter-particule :	- 137 -
B.IV.2. Méthodes approchées	- 141 -
B.IV.2.1 Sphère Compacte (SC)	- 142 -
B.IV.2.2 Sphère creuse ou Poreuse (SP).....	- 142 -
B.IV.2.3 Indice de Réfraction Effectif (IRE)	- 143 -
B.IV.2.4 Fractal	- 144 -
B.IV.2.5 Percival-Berry-Khlebtsov (PBK)	- 145 -
B.IV.2.6 Khlebtsov.....	- 146 -
B.IV.2.7 Diffraction Anormale (DA).....	- 147 -
B.IV.3. Bilan	- 147 -
Chapitre V Comparaison entre la méthode exacte et les méthodes approchées.....	- 151 -
B.V.1. Méthodes : Fractal, Khlebtsov, Creuse et Compacte.....	- 152 -
B.V.1.1 Méthodes Fractal et Khlebtsov	- 152 -
B.V.1.2 Méthode de la sphère creuse et compacte.....	- 152 -
B.V.2. PBK.....	- 153 -

B.V.3. DA.....	- 155 -
B.V.4. IRE.....	- 158 -
B.V.5. Bilan sur les méthodes approchées :	- 161 -
Chapitre VI :Méthode IRE	- 163 -
B.VI.1. Sphère équivalente à un agrégat :	- 163 -
B.VI.1.1 Utilisation de la méthode IRE pour le calcul de la section efficace de pression de radiation.....	- 163 -
B.VI.1.2 Amélioration de la méthode IRE.....	- 165 -
B.VI.1.2.a) Pour le calcul de la section efficace de diffusion	- 165 -
B.VI.1.2.b) Pour le calcul de la section efficace de pression de radiation.....	- 173 -
B.VI.1.2.c) En changeant la méthode de calcul de l'indice effectif.....	- 176 -
B.VI.2. Sphéroïde équivalent à un agrégat.....	- 179 -
B.VI.2.1 Historique	- 179 -
B.VI.2.2 Amélioration de la méthode IRE.....	- 180 -
B.VI.2.2.a) Avec un sphéroïde défini par la méthode n°1 :	- 180 -
B.VI.2.2.b) Avec un sphéroïde défini par la méthode n°2:	- 182 -
B.VI.2.2.c) Evaluation de l'amélioration avec un sphéroïde équivalent :	- 183 -
B.VI.3. BPCA et BCCA.....	- 187 -
B.VI.3.1 Agrégats obtenus avec les mécanismes BPCA et BCCA:	- 187 -
B.VI.3.2 Comparaison de IRE avec la méthode exacte	- 188 -
B.VI.3.2.a) Dans le cas d'indices de réfraction réels :	- 189 -
B.VI.3.2.b) Dans le cas d'indices de réfraction complexes :	- 192 -
B.VI.4. Bilan	- 196 -
Conclusion et perspectives	- 199 -
Annexes	I
Annexe A.I.	II
Annexe A.III. :	IV
Annexe B.II.	VII
Annexe B.III.....	IX
Annexe B.IV.....	XXIV
Annexe B.V.....	XXVI
Annexe B.VI.....	XXXV
Bibliographie	I

Liste des figures

Partie A

<i>Figure A- I-1: Image MEB de particules de polystyrène de diamètre moyen $5.7\mu\text{m}$</i>	<i>- 7 -</i>
<i>Figure A- I-2: Principe de Huygens-Fresnel</i>	<i>- 10 -</i>
<i>Figure A- I-3: Diffraction de Fraunhofer (Chatelet TI ,E4410)</i>	<i>- 15 -</i>
<i>Figure A- I-4: Mesure de corde</i>	<i>- 16 -</i>
<i>Figure A- II-1: Fonction de Bessel de première et deuxième espèce d'ordre entier.</i>	<i>- 23 -</i>
<i>Figure A- II-2: Système de coordonnées sphériques centrées sur une particule sphérique de rayon a.....</i>	<i>- 23 -</i>
<i>Figure A- III-1: Diffusion multiple.....</i>	<i>- 33 -</i>
<i>Figure A- III-2: Approximation en champ lointain pour le déplacement du système de coordonnées</i>	<i>- 40 -</i>
<i>Figure A- IV-1 : Principe de la RDG (Bohren and Huffman 1998)</i>	<i>- 48 -</i>
<i>Figure A- IV-2: Rayon passant à travers une sphère (Hulst 1981)</i>	<i>- 50 -</i>
<i>Figure A- IV-3: Domaine de validité des méthodes d'approximation pour une sphère.....</i>	<i>- 52 -</i>
<i>Figure A- V-1: Cellule unité représentative du milieu modélisé par la théorie de MG.</i>	<i>- 54 -</i>
<i>Figure A- V-2: Cellule unité représentative du milieu modélisé par la théorie de Bruggman...-</i>	<i>56 -</i>

Partie B

<i>Figure B- I-1: Objets équivalents.....</i>	<i>- 63 -</i>
<i>Figure B- I-2 : Sphéroïde du type oblong (en anglais : prolate)</i>	<i>- 64 -</i>
<i>Figure B- I-3 : Sphéroïde du type aplati (en anglais : oblate)</i>	<i>- 64 -</i>
<i>Figure B- I-4: Agrégat projeté</i>	<i>- 70 -</i>
<i>Figure B- I-5: Distribution des surfaces projetées S_p pour un sphéroïde de type oblong ...-</i>	<i>73 -</i>
<i>Figure B- I-6: Distribution des surfaces projetées S_p normalisées ($S_p/\langle S_p \rangle$) pour un sphéroïde de type oblong.....</i>	<i>- 75 -</i>
<i>Figure B- I-7: Distribution des surfaces projetées S_p pour un sphéroïde de type aplati....-</i>	<i>77 -</i>

<i>Figure B- I-8: Distribution des surfaces projetées $S_p / \langle S_p \rangle$ normalisées pour un sphéroïde de type aplati</i>	- 79 -
<i>Figure B- I-9: Exemple de distribution des surfaces projetées normalisées pour des agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires en configuration compacte et chaîne.</i>	- 81 -
<i>Figure B- I-10: Exemple de distribution de la surface projetée normalisée pour des agrégats de 4, 16, 64 particules primaires en configuration plan.</i>	- 82 -
<i>Figure B- I-11: Rayon projeté R_p en fonction du nombre de particules primaires pour les configurations en chaîne, compacte et plan</i>	- 84 -
<i>Figure B- I-12: Rayon projeté R_p en fonction de la distance inter-particule moyenne pour toutes les configurations d'agrégat étudiées jusqu'à présent (Tableau B- I-1).</i>	- 85 -
<i>Figure B- I-13: Rayon projeté R_p en fonction du nombre de particules primaires N et de la distance inter-particule moyenne d_1.</i>	- 86 -
<i>Figure B- I-14: Approximation de la distribution des surfaces projetées d'un agrégat par celle d'un sphéroïde.</i>	- 90 -
<i>Figure B- I-15: Distribution des cordes pour un sphéroïde pour différents rapports des axes a et b (oblong)</i>	- 94 -
<i>Figure B- I-16: Distribution des cordes pour un sphéroïde pour différents rapports des axes a et b (aplatis).</i>	- 96 -
<i>Figure B- I-17: Distribution des cordes pour un cube et une sphère.</i>	- 97 -
<i>Figure B- I-18: Exemple de distribution des cordes pour des agrégats de 4, 8, 16 particules primaires en configuration chaîne et compacte</i>	- 98 -
<i>Figure B- I-19: Exemple de distribution des cordes pour des agrégats de 4, 16, 64 particules primaires en configuration plan.</i>	- 99 -
<i>Figure B- I-20: Exemple de distribution des cordes pour des agrégats de 64 et 100 particules primaires en configuration cube.</i>	- 100 -
<i>Figure B- I-21: Exemple de distribution des cordes pour une sphère (a) et un agrégat de 2 particules primaires (b).</i>	- 101 -
<i>Figure B- I-22: Comparaison entre les distributions de cordes issues des simulations et celles reconstruites avec les sous-distributions de cordes (approximation), pour des agrégats de 2, 4, 8 et 16 particules primaires en configuration chaîne et compacte.</i>	- 105 -
<i>Figure B- I-23: Comparaison entre les distributions de cordes issues des simulations et celles reconstruites avec les sous-distributions de cordes (approximation), pour des agrégats de 4, 16 et 64 particules primaires configuration plan.</i>	- 106 -

<i>Figure B- I-24: Comparaison entre les distributions de cordes issues des simulations et celles reconstruites avec les sous-distributions de cordes (approximation), pour des agrégats de 64 et 100 particules primaires configuration cube.</i>	<i>- 107 -</i>
<i>Figure B- I-25: x_1 en fonction du nombre de particules primaires N et de la distance inter particule moyenne d_1.</i>	<i>- 108 -</i>
<i>Figure B- I-26: Evaluation de x_3 en fonction du nombre de particules primaires N et de la distance inter particule moyenne d_1.</i>	<i>- 108 -</i>
<i>Figure B- II-1: Configuration C1, extraite de (Auger and Stout 2003).....</i>	<i>- 112 -</i>
<i>Figure B- III-1: Section efficace de diffusion pour trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) en fonction du paramètre de taille.</i>	<i>- 115 -</i>
<i>Figure B- III-2: Allure générale des courbes obtenues pour une configuration en chaîne (colonne de gauche), et une configuration compacte (colonne de droite).....</i>	<i>- 117 -</i>
<i>Figure B- III-3: idem que Figure B- III-2 mais pour un paramètre de taille maximal de 3-</i>	<i>118</i>
<i>-</i>	
<i>Figure B- III-4: idem que la Figure B- III-2 mais avec R_{xu} entre 0 et 2.....</i>	<i>- 120 -</i>
<i>Figure B- III-5: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 4 sphères primaires.</i>	<i>- 121 -</i>
<i>Figure B- III-6: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 8 particules primaires.....</i>	<i>- 123 -</i>
<i>Figure B- III-7: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 16 particules primaires.....</i>	<i>- 125 -</i>
<i>Figure B- III-8: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 64 (1^{ière} colonne) et 100 (2^{ième} colonne) particules primaires.</i>	<i>- 126 -</i>
<i>Figure B- III-9: Section efficace de pression de radiation pour les trois matériaux en fonction du paramètre de taille.</i>	<i>- 128 -</i>
<i>Figure B- III-10: Paramètre d'asymétrie pour les trois matériaux en fonction du paramètre de taille.</i>	<i>- 129 -</i>
<i>Figure B- III-11: Allure générale des courbes de C_{pr} pour une configuration en chaîne (colonne de gauche) et une configuration compacte (colonne de droite).....</i>	<i>- 131 -</i>
<i>Figure B- III-12: Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 4 sphères primaires.....</i>	<i>- 132 -</i>

<i>Figure B- IV-1: $R_{Rayleigh}$ pour les différentes configurations avec 4 sphères suivant le paramètre de taille et les 3 indices (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>- 136 -</i>
<i>Figure B- IV-2: Evolution de R_{Xu} en fonction du paramètre de taille et du facteur d'éloignement compris entre [1 ;6] pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>- 139 -</i>
<i>Figure B- IV-3: Evolution de R_{Xu} en fonction du paramètre de taille et du facteur d'éloignement compris entre [1 ;100] pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>- 140 -</i>
<i>Figure B- IV-4: Sphère creuse</i>	<i>- 142 -</i>
<i>Figure B- IV-5: Aire de la surface projetée</i>	<i>- 143 -</i>
<i>Figure B- IV-6: Corde.....</i>	<i>- 147 -</i>
<i>Figure B- V-1: Méthode PBK : Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>- 154 -</i>
<i>Figure B- V-2: Méthode AD: Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>- 155 -</i>
<i>Figure B- V-3: Méthode ADr : Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>- 157 -</i>
<i>Figure B- V-4: Méthode IRE : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).....</i>	<i>- 159 -</i>
<i>Figure B- V-5: Méthode IRE: Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>- 160 -</i>
<i>Figure B- VI-1: Méthode IRE : R_m pour la section efficace de pression de radiation, pour un paramètre de taille compris entre 0 et 10, de 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) suivant deux configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>- 164 -</i>
<i>Figure B- VI-2: Fonction $R_1(\alpha)/R_{max}$ et $R_2(\alpha)/R_{max}$ pour différentes valeurs de n</i>	<i>- 166 -</i>
<i>Figure B- VI-3: Concordance de $R_2(\alpha)/R_{max}$ et $R_{expérimental}(\alpha)/R_{max}$ pour un agrégat en configuration en chaîne composé de 8 particules primaires dans le cas de Al_2O_3....</i>	<i>- 167 -</i>

<i>Figure B- VI-4: $1/\alpha_{\max}$ en fonction de d_1 et N, calculé pour des agrégats en configuration chaîne, composés de 2, 4, 8, 16, 64 et 100 particules primaires, pour les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2)</i>	- 169 -
<i>Figure B- VI-5: R_{\max} en fonction de d_1 et N pour les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2)</i> -	170
-	
<i>Figure B- VI-6: Evolution de n en fonction de d_1 et N pour les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2)</i>	- 171 -
<i>Figure B- VI-7: Evolution de h_{\min} en fonction de d_1 pour SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2.</i>	- 174 -
<i>Figure B- VI-8: Indice effectif normalisé de SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2 en fonction de la fraction volumique.</i>	- 177 -
<i>Figure B- VI-9 : Exemple d'agrégats de 10 particules primaires construits à partir des mécanismes BPCA et BCCA.</i>	- 187 -
<i>Figure B- VI-10 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.</i>	- 190 -
<i>Figure B- VI-11 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.</i>	- 191 -
<i>Figure B- VI-12 : C_{sca} et C_{pr} pour une particule sphérique en fonction du paramètre de taille, pour les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) ayant une partie complexe égale à 0.1.</i> -	192
-	
<i>Figure B- VI-13 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.</i>	- 194 -
<i>Figure B- VI-14 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.</i>	- 195 -

Annexes

<i>Annexe Figure 1: Encadrement du paramètre de taille limite α_1 en fonction du rayon projeté R_p, et en fonction du type de matériau (Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>X</i>
<i>Annexe Figure 2: idem que Figure B- III-12 (page - 132 -) mais pour un paramètre de taille maximal de 3</i>	<i>XIII</i>
<i>Annexe Figure 3: idem que la Figure B- III-12 (page - 132 -) mais avec P_{Xu} compris entre 0 et 2</i>	<i>XIV</i>
<i>Annexe Figure 4 : Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 8 sphères primaires.....</i>	<i>XVII</i>
<i>Annexe Figure 5: Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 16 sphères primaires.....</i>	<i>XVIII</i>
<i>Annexe Figure 6: Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 64 sphères primaires et 100 sphères primaires.</i>	<i>XIX</i>
<i>Annexe Figure 7: Evolution de $1-p_1$ en fonction de N et d_1 pour des agrégats constitués de particules primaires de différents matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>XXI</i>
<i>Annexe Figure 8: Evolution de $1-p_2$ en fonction de N et d_1 pour des agrégats constitués de particules primaires de différents matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>XXII</i>
<i>Annexe Figure 9: Domaine de validité de l'approximation de Rayleigh pour une sphère pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>XXIV</i>
<i>Annexe Figure 10: Domaine de validité de l'approximation de Rayleigh pour des agrégats de 4 et 8 sphères pour les 3 matériaux.....</i>	<i>XXV</i>
<i>Annexe Figure 11: Méthode Fractal : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>XXVI</i>
<i>Annexe Figure 12: Méthode Fractal : Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).</i>	<i>XXVII</i>
<i>Annexe Figure 13: Méthode Khlebtsov : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).....</i>	<i>XXVIII</i>

Annexe Figure 14: Méthode Khlebtsov : Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne)..... XXIX

Annexe Figure 15: Méthode de la sphère compacte : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).....XXX

Annexe Figure 16: Méthode de la sphère compacte : Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne)..... XXXI

Annexe Figure 17: Méthode de la sphère creuse : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).....XXXII

Annexe Figure 18: Méthode de la sphère creuse : Avec $R_m \in [0.5,1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).....XXXIII

Liste des tableaux

Partie A

Tableau A- I-1: Caractéristique d'un agrégat.....- 8 -
Tableau A- III-1: Méthodes permettant de traiter la diffusion de la lumière par un agrégat
(N : Nombre d'opérations dans l'algorithme issue de l'analyse de (Kahnert 2003)). - 31 -

Partie B

Tableau B- I-1: Configuration des agrégats- 62 -
Tableau B- I-2: Surface projetée moyenne $\langle S_p \rangle$ en fonction du rapport des axes pour des
sphéroïdes du type oblong et aplati.....- 71 -
Tableau B- I-3: Rayon projeté R_p , pour des configurations en chaîne et compactes en fonction
du nombre de particules primaires.- 83 -
Tableau B- I-4: Rayon projeté R_p , pour des configurations en plan dans le cas d'agrégats
ayant 4, 16, 64,100 particules primaires- 83 -
Tableau B- I-5: Rayon projeté R_p pour différentes configurations dans le cas d'un agrégat de
4 particules primaires- 83 -
Tableau B- I-6: Largeur de la distribution des surfaces projetées normalisées pour chaque
type de sphéroïde suivant le rapport de leurs axes.- 87 -
Tableau B- I-7: Détermination du rapport des axes pour chaque agrégat.- 88 -
Tableau B- I-8: Valeurs des longueurs des demi-axes du sphéroïde équivalent pour chaque
agrégat.- 88 -
Tableau B- I-9: x_1 , x_2 et x_3 sont les pourcentages alloués à chaque sous-distribution d'un
agrégat avec $x_1+x_2+x_3=1$- 102 -
Tableau B- III-1: Différence entre les configurations de C_{sca} pour un agrégat de 4 sphères
 $\alpha \in [0;10]$ - 122 -
Tableau B- III-2: Différence entre les configurations de C_{sca} pour un agrégat de 8 sphères
 $\alpha \in [0;10]$ - 124 -
Tableau B- III-3: Différence entre les configurations de C_{sca} pour un agrégat de 16 sphères
 $\alpha \in [0;10]$ - 124 -

<i>Tableau B- IV-1: Dimension fractale</i>	- 144 -
<i>Tableau B- IV-2: Comparaison des différentes méthodes</i>	- 148 -
<i>Tableau B-V-1: Performance des meilleures méthodes suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 0 et 2, sauf pour les cellules entourées par un trait pointillé $0 < \alpha < 1$</i>	- 161 -
<i>Tableau B-V-2: Performance des meilleures méthodes suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 2 et 10, sauf pour les cellules entourées par un trait pointillé $1 < \alpha < 10$</i>	- 161 -
<i>Tableau B- VI-1: Performance de la méthode IRE pour le calcul de la section efficace de pression de radiation</i>	- 165 -
<i>Tableau B- VI-2: Correction de la méthode IRE avec une fonction F pour $\alpha \in [0,2]$</i>	- 172 -
<i>Tableau B- VI-3: Performance des méthodes IRE et IRE/G pour C_{pr} pour différents matériaux et un paramètre de taille compris entre 0 et 2.</i>	- 175 -
<i>Tableau B- VI-4: Performance des méthodes IRE et IRE/G pour C_{pr} pour différents matériaux et un paramètre de taille compris entre 2 et 10.</i>	- 175 -
<i>Tableau B- VI-5: Configuration en chaîne : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion, calculés avec la méthode IRE et différentes méthodes d'indice effectif, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 10</i>	- 178 -
<i>Tableau B- VI-6: Configuration compacte : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion, calculés avec la méthode IRE et différentes méthodes d'indice effectif, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégat de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 10</i>	- 178 -
<i>Tableau B- VI-7: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration compacte (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) pour $\alpha \in [0,4]$ et les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2)</i>	- 181 -
<i>Tableau B- VI-8: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration chaîne (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) pour $\alpha \in [0,2]$ et les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2)</i>	- 181 -
<i>Tableau B- VI-9: Configuration compacte : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 4</i>	- 184 -
<i>Tableau B- VI-10: Configuration en chaîne : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par</i>	

<i>rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2 et 4 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 2</i>	<i>- 185 -</i>
<i>Tableau B- VI-11: Configuration compacte : erreur moyenne et écart type de la section efficace de pression de radiation calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 4</i>	<i>- 186 -</i>
<i>Tableau B- VI-12: Configuration en chaîne : erreur moyenne et écart type de la section efficace de pression de radiation calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2 et 4 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 2</i>	<i>- 186 -</i>
<i>Tableau B- VI-13: Résumé de l'étude visant à améliorer IRE.....</i>	<i>- 196 -</i>

Annexes

<i>Annexe Tableau 1: Techniques de mesure de taille de particules</i>	<i>II</i>
<i>Annexe Tableau 2: Caractéristiques de certains appareillages commerciaux</i>	<i>III</i>
<i>Annexe Tableau 3: Caractéristiques des particules primaires ne permettant pas une résolution sous Delphi.....</i>	<i>VII</i>
<i>Annexe Tableau 4: Tests effectués pour un doublet aligné dans le sens du vecteur d'onde, avec $\lambda=632.8\mu\text{m}$, $n_p=1.57$, $n_m=1.332$</i>	<i>VIII</i>
<i>Annexe Tableau 5: Comparaison faite pour une longueur d'onde $\lambda=3.14$, $n_m=1$ dans le cas de 9 sphères dans une configuration C1 ci dessous.....</i>	<i>VIII</i>
<i>Annexe Tableau 6: Configuration C1 voir Figure B- II-1</i>	<i>VIII</i>
<i>Annexe Tableau 7: Borne supérieure et inférieure du paramètre de taille limite α_l.....</i>	<i>IX</i>
<i>Annexe Tableau 8: 64 particules primaires (C_{sca} en μm^2)</i>	<i>XII</i>
<i>Annexe Tableau 9: 100 particules primaires (C_{sca} en μm^2)</i>	<i>XII</i>
<i>Annexe Tableau 10: Différence entre les configurations de C_{pr} pour un agrégat de 4 sphères</i>	<i>XV</i>
<i>Annexe Tableau 11: Différence entre les configurations de C_{pr} pour un agrégat de 8 sphères</i>	<i>XV</i>
<i>Annexe Tableau 12: Différence entre les configurations de C_{pr} pour un agrégat de 16 sphères</i>	<i>XV</i>
<i>Annexe Tableau 13: 64 particules primaires (C_{pr} en μm^2).....</i>	<i>XVI</i>

<i>Annexe Tableau 14: 100 particules primaires (C_{pr} en μm^2).....</i>	<i>XVI</i>
<i>Annexe Tableau 15 : Performance de DA et DAr suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 0 et 2</i>	<i>XXXIV</i>
<i>Annexe Tableau 16: Performance de DA et DAr suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 2 et 10</i>	<i>XXXIV</i>
<i>Annexe Tableau 17: Performance des méthodes approchées permettant de calculer C_{pr} pour un paramètre de taille compris entre 1.5 et 10.</i>	<i>XXXV</i>
<i>Annexe Tableau 18: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration compacte (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) pour $\alpha \in [0,4]$ et les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>XXXVI</i>
<i>Annexe Tableau 19: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration chaîne (de 2 et 4 particules primaires) pour $\alpha \in [0,2]$ et les trois matériaux (SiO_2, Al_2O_3, TiO_2).....</i>	<i>XXXVI</i>
<i>Annexe Tableau 20: Valeurs des longueurs des demi-axes du sphéroïde équivalent pour chaque agrégat avec la méthode n°2.</i>	<i>XXXVII</i>
<i>Annexe Tableau 21: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.</i>	<i>XXXVIII</i>
<i>Annexe Tableau 22: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.</i>	<i>XXXVIII</i>
<i>Annexe Tableau 23: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.</i>	<i>XXXVIII</i>
<i>Annexe Tableau 24: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.</i>	<i>XXXIX</i>
<i>Annexe Tableau 25: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.</i>	<i>XXXIX</i>
<i>Annexe Tableau 26: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2, Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.</i>	<i>XXXIX</i>

Annexe Tableau 27: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.XL

Annexe Tableau 28: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.XL

Liste des appendices

La numérotation des annexes est en fonction du chapitre auquel ces dernières se réfèrent.

Annexe A.I.	II
➤ Instruments d'analyse de taille de particules basés sur différents principes physiques (Jillavenkatesa, Dapkunas et al. 2001)	II
➤ Limitation d'analyse de taille de particules.....	III
Annexe A.III. :	IV
➤ Formulations pour le champ magnétique:	IV
➤ Formulations pour le coefficient de diffusion	IV
➤ Formulations pour les coefficients de translation de vecteur	IV
➤ Formulations pour la matrice de diffusion en champ lointain	V
Annexe B.II.	VII
➤ Programme sous Dephi6	VII
➤ Comparaison des programmes Scatagl et MeGMM avec celui de Xu (gmm01s)..	VIII
➤ Comparaison pour un agrégat entre nos valeurs et celles obtenues par Xu et Auger (Auger and Stout 2003)	VIII
Annexe B.III.	IX
➤ Détermination du paramètre de taille limite:.....	IX
➤ 64 et 100 particules primaires :variation de Cscat suivant la forme, sur l'ensemble des paramètres de taille $\alpha \in [0;6]$	XII
➤ Variation de Cpr suivant la forme, sur l'ensemble des paramètres de tailles $\alpha \in [0;10]$	XV
➤ 64 et 100 particules primaires :variation de Cpr suivant la forme, sur l'ensemble des paramètres de taille $\alpha \in [0;6]$	XVI
➤ Détermination du facteur de proportionnalité entre Cpr $X_{u,N}$ et C pr $X_{u,1}$ ou C pr $X_{u,2}$	XX
Annexe B.IV.	XXIV
➤ Approximation de Rayleigh	XXIV
Annexe B.V.	XXVI

➤	Méthode Fractal.....	XXVI
➤	Méthode Khlebtsov	XXVIII
➤	Sphère compacte (SC).....	XXX
➤	Sphère creuse.....	XXXII
➤	Comparaison entre DA et DAr.....	XXXIV
Annexe B. VI.....		XXXV
➤	Evaluation des méthodes approchées permettant de calculer Cpr	XXXV
➤	Comparaison entre les deux méthodes (n°1 et 2).....	XXXV
➤	Dimension du sphéroïde équivalent (méthode n°2):.....	XXXVII
➤	BPCA et BCCA.....	XXXVIII

Liste des sigles

BCCA	Ballistic Cluster-Cluster Aggregate
BPCA	Ballistic Particle-Cluster Aggregate
DA ou AD	Diffraction Anormale
DAr	Diffraction Anormale rapide
DDA	Discrete Dipole Approximation
FDTD	Finite Difference Time Domain method
FEM	Finite Element Method
GMM	Generalized Multiparticle Mie solution
IRE	Indice de Réfraction Effectif
MEB	Microscope Electronique à Balayage
MG	Maxwell-Garnett
MoM	Method of Moments
PBK	Percival-Berry-Khlebtsov
PMM	Point-Matching Method
RCTMA	Recursive Centered T-Matrix Algorithm
RDG	Rayleigh-Debye-Gans
SC	Sphère Compacte
SP	Sphère Creuse ou Poreuse
SVM	Separation of Variables Method
VIEM	Volume Integral Equation Method
VSWF	Vector Spherical Wave Function

Principales notations

Lettres grecques

Symbole	Description	Unité
α	Paramètre de taille	-
α_{lim}	Paramètre de taille limite	-
α_p	Facteur pour les Coefficients de Vecteur de Translation	-
β	Paramètre pour les Coefficients de Mie	-
β_p	Angle de polarisation	rad
ϵ_0	Permittivité du vide	F/m
ζ	Fonction de Riccati-Bessel	-
θ	Angle sphérique	rad
χ	Fonction de Riccati-Bessel	-
λ	Longueur d'onde	m
λ_0	Longueur d'onde dans le vide	m
μ_0	Perméabilité du vide	H/m
π_n	Fonction angulaire	-
π_{mn}	Fonction angulaire généralisée	-
ρ_l	Densité volumique de charge	C/m ³
σ	Ecart type	-
τ	Turbidité	m ⁻¹
τ_n	Fonction angulaire	-
τ_{mn}	Fonction angulaire généralisée	-
ψ	Fonction de Riccati-Bessel	-
ω	Pulsation	s ⁻¹

Lettres latines

Symbole	Description	Unité
A_0	Coefficients de Vecteur de Translation	-
a_n	Coefficient de Mie	-
A_p	Fonction pour les Coefficients de Vecteur de Translation	-
a_q	Coefficient de Gaunt	-
a_{mn}^j	Coefficients partiels de diffusion	-
B_0	Coefficients de Vecteur de Translation	-
b_n	Coefficient de Mie	-
b_q	Coefficient de Gaunt	-
b_{mn}^j	Coefficients partiels de diffusion	-
\vec{B}	Champ d'induction magnétique	T
C_0	Facteur pour les Coefficients de Vecteur de Translation	-
C_{ext}	Section efficace d'extinction	m^2
C_{mn}	Facteur de normalisation pour les fonctions angulaires	-
C_p	Facteur pour les Coefficients de Vecteur de Translation	-
C_{pr}	Section efficace de pression de radiation	m^2
$\langle \cos\theta \rangle$	Paramètre d'asymétrie	-
C_{sca}	Section efficace de diffusion	m^2
d	Diamètre des particules primaires	m
$D(.)$	Distribution	-
d_1	Distance inter-particule	m
D_f	Dimension fractale	-
\vec{D}	Champ d'induction électrique	C/m^2

Symbole	Description	Unité
\vec{E}_1	Champ électrique interne	V/m
\vec{E}_{inc}	Champ électrique incident	V/m
\vec{E}_{sca}	Champ électrique diffus	V/m
F G	Fonction de correction	-
f, Φ	Fraction volumique	-
G	Aire projetée	m ²
h _n	Fonction de Hankel sphérique de 1 ^{ière} espèce	-
H _n	Fonction de Hankel	-
\vec{H}	Champ magnétique	A/m
I ₀	Intensité lumineuse incidente	W/m ²
\vec{J}_l	Densité de courant	A/m ²
j _n	Fonction de Bessel sphérique de 1 ^{ière} espèce	-
J _n	Fonction de Bessel de 1 ^{ière} espèce	-
k	Vecteur d'onde	m ⁻¹
K	Densité de charge de surface	C/m ²
\vec{L}	Densité de courant de surface	A/m ²
l _t	Libre parcours moyen de transport	m
m n	Variable de décompte	-
m _r	Indice optique relatif de réfraction	-
\vec{M}	VSWF	-
N	Nombre de particules primaires	-
n _{eff}	Indice effectif	-
n _m	Indice de réfraction du milieu	-
n _p	Indice de réfraction des particules	-

Symbole	Description	Unité
N_w	Nombre de Wiscombe	-
\vec{N}	VSWF	-
P_n	Polynôme de Legendre	-
P_n^m	Polynôme de Legendre associé	-
P_{Xu}	Rapport d'interaction des particules d'un agrégat pour C_{pr} (équ. (B.26))	-
Q	Efficacité	-
R_m	Rapport méthode approchée et exacte (équ.(B.32))	-
R_p	Rayon projeté	m
$R_{Rayleigh}$	Rapport d'interaction des particules d'un agrégat pour C_{sca} dans le cas de l'approximation de Rayleigh (équ.(B.27))	-
R_{Xu}	Rapport d'interaction des particules d'un agrégat pour C_{sca} (équ.(B.24))	-
S	Facteur de structure	-
S_i	Fonction d'amplitude	-
S_p	Surface projetée	m ²
t	Temps	s
ts	Rapport d'axe	-
x	Rayon des particules primaires	m
y_n	Fonction de Bessel sphérique de 2 ^{ième} espèce	-
Y_n	Fonction de Bessel de 2 ^{ième} espèce	-
$z_n^{(J)}$	Symbole général de la fonction de Bessel d'ordre n et de J ^{ième} type	-

Introduction

Des interactions entre la lumière et la matière sont utilisées dans de nombreuses disciplines scientifiques pour caractériser cette matière. L'étude des phénomènes qui en découlent est parfois le seul moyen d'obtenir des informations sur le système matériel, comme en astrophysique. Cette discipline a donc largement contribué au développement des connaissances dans ce domaine, elles-mêmes utilisées dans cette thèse.

Les motivations de ce travail réalisé au sein d'une école des Mines sont de répondre à un problème industriel. Par exemple, de nombreux processus mettent en œuvre des suspensions solide-liquide (comme dans les industries des peintures, pharmaceutique, des céramiques etc.). Ces suspensions, constituées initialement de particules primaires solides, contiennent de nombreux agrégats modifiant leurs propriétés (eg. l'opacité, la filtrabilité, etc.). Les écoulements de suspension sont turbulents dans les procédés industriels. L'agrégation des particules est favorisée par le cisaillement, mais les agrégats formés sont souvent petits : moins de cent particules primaires par agrégat. Les méthodes de caractérisation (eg. taille de particules primaires) de ces suspensions font intervenir la diffusion de la lumière (car la taille de ces particules est de l'ordre du micron) dont le formalisme mathématique a été développé par G. Mie en 1908.

Or, la théorie de Mie est rarement applicable aux problèmes pratiques ; sa plus grande limitation étant de considérer les particules comme étant sphériques. En effet, il existe de nombreuses dispersions qui sont constituées de particules primaires sphériques, mais celles-ci « aspirent » à former des agrégats qui eux ne sont pratiquement jamais sphériques. Les granulomètres traditionnels reposent sur cette théorie qui ne permet donc pas de mesurer ces agrégats.

Une extension de cette théorie dans le cas de la diffusion multiple a été donnée par Xu (1995-2003), intitulée GMM (*Generalized Multiparticle Mie solution*). Elle permet d'obtenir les propriétés optiques d'un agrégat quelconque de particules primaires sphériques, mais nécessite des temps de calcul assez conséquents¹. On ne peut donc pas dans l'immédiat

¹ A titre indicatif pour un agrégat de 16 particules primaires de rayon 0.2 μm le CPU est de plusieurs minutes avec l'ordinateur n°3 (p - 113 -)

(puissance de calcul des ordinateurs actuels) envisager de l'utiliser pour la caractérisation d'une population d'agrégats.

Notre étude repose sur cette théorie (GMM de Xu) pour caractériser les agrégats suivant leur morphologie, le nombre et la taille des particules primaires qui les composent. Elle nous conduira à proposer et tester des approximations des propriétés optiques des agrégats dans le but d'en extraire des expressions facilement utilisables en granulométrie.

Ce rapport de thèse est découpé en deux parties : dans la première, sont rappelées les connaissances théoriques nécessaires à l'élaboration de méthodes approchées de la méthode exacte, tandis que ces dernières seront analysées dans une deuxième partie.

Le contenu de la Partie A sera le suivant :

- Un bref résumé des principes optiques des techniques granulométriques existantes afin de permettre au lecteur de comprendre le cadre et l'enjeu de cette étude.
- Une présentation de la théorie de Mie appliquée à une particule sphérique, car elle est utilisée par les granulomètres actuels, mais surtout parce que son formalisme, sera étendu aux agrégats dans le chapitre suivant (méthode exacte).
- Un exposé des méthodes approchées (de la théorie exacte) existantes dans le cas de milieux homogènes : approximations de Rayleigh, Rayleigh-Debye-Gans, Diffraction Anormale.
- Un rappel de la notion d'indice de réfraction effectif permettant d'aborder les milieux hétérogènes.

Le contenu de la Partie B sera le suivant :

- Une description géométrique des agrégats où la notion d'objet équivalent sera introduite. Nous découvrirons que la morphologie d'un agrégat peut être représentée par l'intermédiaire des notions de distribution de cordes ou de surfaces projetées. Les résultats de cette étude préliminaire seront utilisés dans l'élaboration de certaines méthodes approchées (DA et IRE qui sont respectivement les méthodes de Diffraction Anormale et Indice de Réfraction Effectif).

- Après avoir défini les conditions de l'étude (types d'agrégats de particules sphériques, matériaux non absorbants utilisés: SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2 ,..), nous examinerons dans un premier temps les propriétés optiques (section efficace de diffusion et de pression de radiation) obtenues avec la méthode exacte. Nous y montrerons l'influence : du nombre de particules primaires au sein de l'agrégat, de l'agencement de ces dernières (définissant ainsi différentes configurations), de la nature du matériau des particules primaires (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2).
- L'analyse des résultats obtenus avec la méthode exacte nous conduira à sélectionner 7 méthodes approchées, dénommées: Sphère Compacte, Sphère Creuse, IRE, Fractal, Percival-Berry-Khlebtsov, Khlebtsov et Diffraction Anormale.
- Ces méthodes approchées seront comparées à la méthode exacte par l'intermédiaire de la section efficace de diffusion.
- Enfin, l'étude des performances de la méthode approchée IRE, ayant retenu plus particulièrement notre attention sera étendue au calcul de la section efficace de pression de radiation. Nous essaierons d'améliorer ses performances, en changeant l'expression de l'indice de réfraction effectif initialement utilisé, en envisageant un objet équivalent sphéroïdal et en élaborant des fonctions de correction.

Nous avons dû nous restreindre à l'étude des agrégats de particules sphériques non absorbantes. Néanmoins, la sélection des méthodes approchées, permet d'envisager l'étude d'agrégats de particules absorbantes. Nous terminerons donc ce mémoire de thèse par un bilan des connaissances acquises et par les prochaines voies d'investigation qu'elles suggèrent.

Partie A. Etat des lieux

Dans cette partie, nous allons définir toutes les notions nécessaires à la compréhension du sujet, la théorie de Mie ainsi que ces approximations. Nous détaillerons également la méthode, dite exacte utilisée pour déterminer les propriétés optiques d'un agrégat. De même, nous aborderons des notions considérées comme le point de départ dans l'élaboration des approximations utilisées dans le cas d'un agrégat qui seront, quant à elles, développées dans la partie suivante de ce rapport de thèse.

Chapitre I Notions de Base

Dans ce chapitre nous allons rappeler ce qu'est un agrégat, des notions élémentaires en optique (interférence, diffusion, diffraction) et les techniques optiques traditionnelles utilisées pour la caractérisation d'une suspension. Les limitations des techniques traditionnelles expliqueront l'élaboration d'un tel sujet de recherche.

A.I.1. Agrégats

A.I.1.1 Qu'est-ce qu'un agrégat ?

Un agrégat est une masse en cohésion constituée de particules primaires, définie elle-même comme la plus petite unité identifiable (Hackley and Ferraris 2001). Cette définition ne fait pas l'objet d'un standard et dépend de la discipline scientifique dans laquelle la notion d'agrégat est employée.

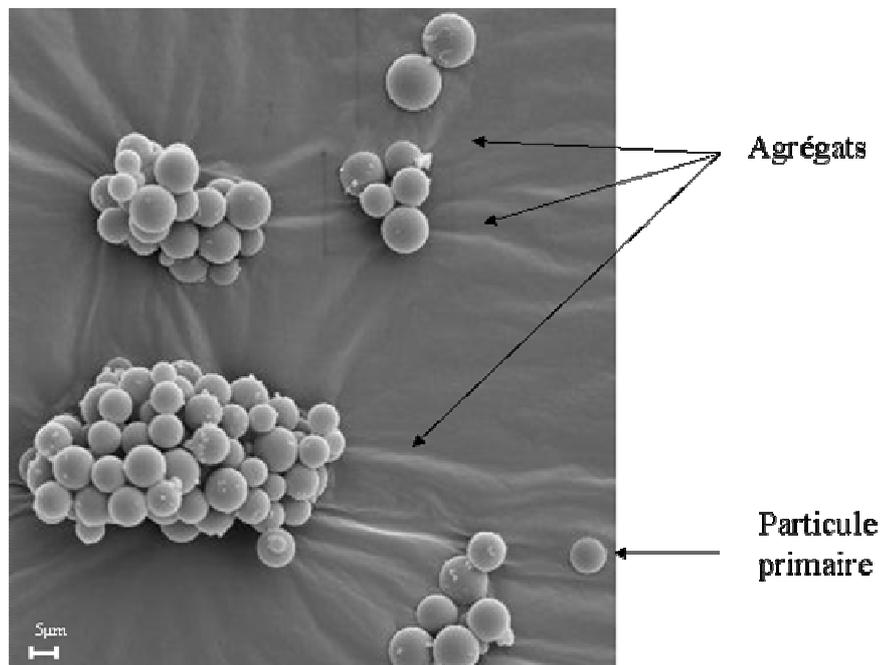


Figure A- I-1: Image MEB de particules de polystyrène de diamètre moyen 5.7µm

A.I.1.2 Comment le caractériser ?

Faisons une liste rapide des caractéristiques morphologiques d'un agrégat :

Liées aux particules primaires :	Propres à l'agrégat
<ul style="list-style-type: none">• la taille des particules primaires qui le compose, leur forme,• La nature chimique des particules primaires,	<ul style="list-style-type: none">• Sa forme qui découle de l'agencement des particules primaires,• Le nombre de particules primaires qui le compose,

Tableau A- I-1: Caractéristique d'un agrégat

Ce descriptif élémentaire sera complété ultérieurement.

Les grandeurs caractéristiques d'un agrégat peuvent être mises au jour en ayant recourt à la lumière, plus exactement en comparant la lumière incidente et celle collectée après sa rencontre avec un agrégat. Nous expliciterons ce point dans A.I.3; mais tout d'abord, il est nécessaire de rappeler des notions de base en optique avant d'aller plus en avant dans ce sujet.

A.I.2. Définitions élémentaires en optique

L'optique ondulatoire permet de rendre compte des principaux phénomènes optiques à savoir la diffraction, la diffusion et les interférences.

A.I.2.1 Onde électromagnétique

Une onde est la propagation d'une perturbation, qui produit sur son passage une variation réversible de propriétés physiques locales.

La lumière est une onde électromagnétique qui se compose de deux champs de vecteurs couplés, le champ électrique \vec{E} et le champ magnétique \vec{B} , se propageant à la vitesse $c = 3.10^8$ m.s⁻¹ dans le vide.

Dans le cas d'une onde plane, ces vecteurs sont perpendiculaires entre eux et à la direction de propagation.

Dans le cas de la lumière naturelle, la direction du vecteur \vec{E} change de manière aléatoire au cours du temps (temps de cohérence), il n'est donc pas possible d'attribuer une direction au champ \vec{E} ; on dit que la lumière est non polarisée. A l'inverse, la lumière polarisée a la

particularité de présenter une orientation précise pour le champ électrique dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation.

Représentation mathématique d'une onde:

Une onde plane monochromatique (de longueur d'onde dans le vide λ_0) se propageant dans la direction \vec{u} au sein d'un milieu d'indice n est de la forme :

$$s(M, t) = A_0 e^{i(\varphi(O) + \vec{k} \cdot \vec{OM} - \omega t)}$$

Où $\vec{k} = k\vec{u} = n \frac{2\pi}{\lambda_0} \vec{u}$ est le vecteur d'onde, A_0 l'amplitude, $\varphi(O)$ le retard de phase en un point

O, t le temps, ω la pulsation.

A.I.2.2 Interférence

Le phénomène d'interférence existe lorsqu'il y a superposition de deux ou plusieurs ondes dans un volume de l'espace (apparition de figures structurées) sous la condition que les ondes soient cohérentes (même pulsation et une différence de phase constante au cours du temps).

A.I.2.3 Diffusion

Le champ électromagnétique d'une onde interagit avec les atomes et les molécules du milieu qu'il traverse. Ces atomes ou molécules se comportent alors comme des dipôles oscillants et émettent à leur tour une onde électromagnétique. Cette onde étant émise dans des directions différentes de celle excitatrice, on dit qu'il y a diffusion.

La solution à un problème de diffusion par une particule sphérique dépend du rapport d/λ , où d et λ sont respectivement le diamètre ($d=2x$) de la sphère et la longueur d'onde:

- Lorsque le diamètre est de l'ordre de grandeur de λ , on utilise le modèle de Mie,
- Lorsque le diamètre de la particule est largement supérieur à la longueur d'onde ($d \gg \lambda$) on peut utiliser le modèle plus ancien de Fraunhofer, cas limite de la théorie de Mie.
- Lorsque le diamètre est largement inférieur à la longueur d'onde ($d \ll \lambda$), on utilise le modèle plus ancien de Rayleigh, également cas limite de la théorie de Mie.

Tandis que le modèle de Fraunhofer est indépendant des propriétés du matériau, les modèles de Rayleigh et de Mie sont complètement dépendants des propriétés optiques du matériau, et donc nécessitent la connaissance des indices de réfraction.

La théorie de Mie, qui développe la solution mathématique de la diffusion d'une onde électromagnétique par une sphère, peut être étendue à des particules de différentes formes (ie : sphéroïde, cylindre, agrégat...etc). Celle-ci sera détaillée dans le Chapitre II

A.I.2.4 Diffraction

Le phénomène de diffraction est un couplage des deux phénomènes cités plus haut. Il s'agit des interférences des ondes diffusées.

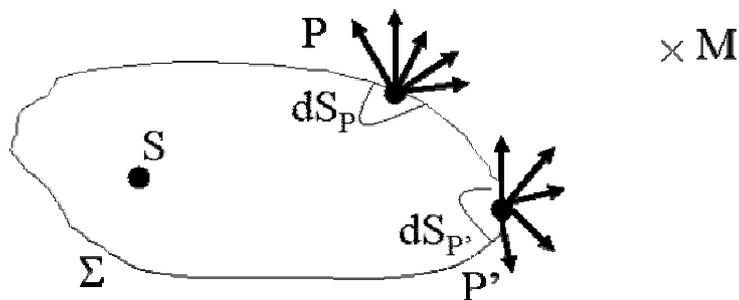


Figure A- I-2: Principe de Huygens-Fresnel

Le principe de Huygens-Fresnel sera rappelé:

Soit une source ponctuelle S de lumière monochromatique et une surface Σ entourant S.

- Chaque surface élémentaire dS_p autour d'un point P de Σ atteinte par l'onde venant de S (appelée onde incidente), se comporte comme une source secondaire ponctuelle qui émet donc une onde sphérique. Cette onde (appelée onde secondaire) a la même phase au point P que l'onde incidente et une amplitude proportionnelle à l'amplitude de l'onde incidente en P et à l'élément de surface dS_p .
- Les sources secondaires sont cohérentes entre elles : les ondes secondaires interfèrent au point M.

L'objet à caractériser et les phénomènes d'interaction de ce dernier avec la lumière étant définis, les principales méthodes granulométriques seront décrites.

A.I.3. Méthodes granulométriques

La granulométrie a pour objet la mesure de la distribution en taille de grains d'un échantillon de poudre ou de gouttes d'une émulsion. La connaissance de cette distribution permet de qualifier l'échantillon, et d'y adjoindre des critères de qualité.

Lorsque les tailles de grains le permettaient, ces mesures étaient faites auparavant par des méthodes de tamisage ou de sédimentation. Cependant, ces méthodes de mesures étaient longues à mettre en œuvre et leur automatisation restait délicate à mettre au point. Nous invitons le lecteur à consulter le guide édité par le *National Institute of Standard Technology* (Jillavenkatesa, Dapkunas et al. 2001), qui décrit parfaitement la technique d'échantillonnage des poudres, le tamisage, la sédimentation par gravitation, les techniques basées sur la microscopie et la diffraction laser avec les normes et standards qui leur sont rattachés (Annexe A.I.) .

La technique la plus « visuelle » et la plus directe (si on exclut les erreurs d'échantillonnage) est celle où l'on obtient directement l'image de l'agrégat, à l'aide d'un microscope optique ou électronique, mais celle-ci, en terme de coût et de suivi de production, n'est pas la plus appropriée.

Nous nous intéresserons donc davantage aux autres méthodes optiques qui permettent d'envisager des mesures localement non intrusives, en temps réel, et permettent de couvrir une gamme très étendue de tailles de particules.

Les méthodes optiques font appel aux lois de la diffusion de la lumière par les particules. Lorsqu'une particule est éclairée par un faisceau lumineux, elle réémet de la lumière dans toutes les directions de l'espace. En corollaire, ces particules diffusantes vont perturber la vision directe des objets en diminuant l'énergie lumineuse transmise dans la direction initiale du faisceau d'éclairage.

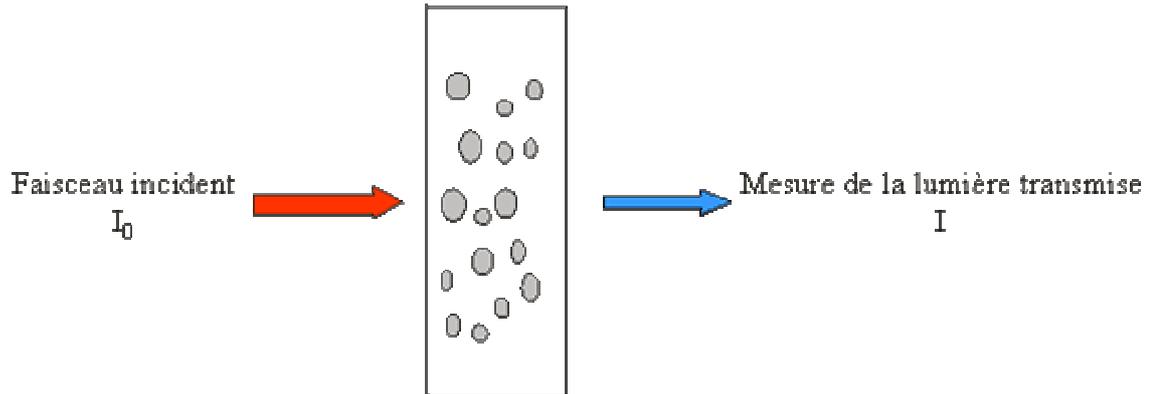
Dans la suite du texte, nous nous référons à des appareils disponibles dans la plupart des laboratoires universitaires et industriels qui ont conduit, par leur limitation de mesure, à ce sujet de thèse. Le lecteur intéressé particulièrement par les techniques de mesure pourra consulter l'article de Jones où est également décrit le traitement mathématique des données acquises (Jones 1999).

A.I.3.1 Turbidimétrie

A.I.3.1.a) Principe

Les particules à mesurer sont mises en suspension (ex : dans l'eau)

Chaque particule présente dans le faisceau incident, produit un déficit énergétique dI , qui est égal à la quantité totale de lumière diffusée par celle-ci.



La traduction mathématique, pour les suspensions diluées, en est la loi de Beer-Lambert; le rapport entre l'intensité en présence de particules I et l'intensité non atténuée I_0 est fonction de la concentration en particules et des propriétés optiques des constituants de la suspension. La loi de Beer-Lambert s'écrit, en introduisant la turbidité τ :

$$\tau = -\frac{1}{L} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) = C_N C_{sca} \quad (\text{A.1})$$

Où L est la longueur du chemin optique, C_N le nombre de particules par unité de volume, C_{sca} la section efficace de diffusion (dont l'unité est : m^2) que nous définirons analytiquement dans le Chapitre II. C_{sca} est fonction de la longueur d'onde, de la taille et de l'indice de réfraction de la particule, ainsi que de l'indice de réfraction du milieu dans lequel évolue cette dernière.

$l = \tau^{-1} = (C_N C_{sca})^{-1}$ est le libre parcours moyen des photons dans la suspension

Pour une distribution granulométrique caractérisée par la densité de population $F(D)$ en nombre, on a :

$$\tau(\lambda) = C_N \int_0^{\infty} C_{sca}(D) F(D) dD \quad \text{avec } D \text{ le diamètre de la particule.}$$

A.I.3.1.b) Limitation (Brochette TLJ2150)

Evaluer le diamètre moyen des particules en suspension par cette technique exige,

- la connaissance des indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde,
- que le milieu soit suffisamment dilué pour ne pas avoir de diffusion multiple (Chapitre III),
- que les particules soient supposées sphériques dans la recherche du diamètre moyen.
- dans le cas d'une suspension polydisperse, on doit faire l'hypothèse d'un type de distribution granulométrique (ex : log-normale)

A.I.3.1.c) Milieux concentrés

Dans le cas de milieux concentrés le libre parcours moyen de transport l_t devient la grandeur pertinente. Dans ce cas, la mesure porte sur le rayonnement rétrodiffusé, lequel est plus intense. En effet, la présence d'un pic en intensité (Akkermans, Wolf et al. 1988) apparaît dans la direction de rétrodiffusion (c'est-à-dire pour des angles proches de 180°). Le phénomène associé, dénommé « rétrodiffusion cohérente », a pour origine une interférence provoquée par le double passage d'ondes à travers les mêmes inhomogénéités. La forme du pic de rétrodiffusion est triangulaire et sa largeur est proportionnelle au libre parcours moyen de transport :

$\theta^* = 0.4 \frac{\lambda}{2\pi l_t}$ où θ^* est le demi-angle pour lequel la valeur de l'intensité est la moitié de la valeur totale de l'intensité rétrodiffusée.

Le libre parcours moyen de transport l_t est une fonction de la concentration particulaire C_N , de la section efficace de diffusion C_{sca} et du paramètre d'asymétrie noté $\langle \cos\theta \rangle$ (définit p- 27 -) :

$$l_t = (C_N C_{sca} (1 - \langle \cos\theta \rangle))^{-1} .$$

Le paramètre d'asymétrie traduit la non-uniformité de la diffusion angulaire. Cette dernière relation n'est valable que pour des particules non absorbantes

La section efficace de pression de radiation C_{pr} est définie par la relation : $C_{pr} = C_{sca} (1 - \langle \cos\theta \rangle)$

A.I.3.2 Granulométrie à diffraction Laser

Les particules sont mises en suspension.

La mesure de granulométrie par diffraction laser se ramène à une mesure d'intensité lumineuse (par l'intermédiaire de capteur) suivant une répartition angulaire autour de l'échantillon.

En effet, la diffraction est un phénomène qui se produit chaque fois qu'un obstacle (c'est-à-dire un corps d'indice optique différent du milieu environnant) s'interpose dans la propagation de la lumière incidente. Plus l'ouverture (ou l'obstacle) est étroite, plus la déviation angulaire de la lumière est importante : il en est ainsi pour les particules, considérées comme des obstacles à la propagation de la lumière incidente. Les particules de faible diamètre diffractent suivant les grands angles (ex : $d \leq 1 \mu\text{m}$, $\theta \geq 45^\circ$) tandis que les grosses particules diffractent près de l'axe optique.

A.I.3.2.a) Principe

- Cas des grosses particules

La mesure consiste à analyser la répartition angulaire de l'intensité lumineuse diffractée à l'infini. Des particules de même dimension, mais de position quelconque dans l'espace, vont donner une image de diffraction identique et superposable. En effet, les figures de diffraction à l'infini (*diffraction dite de Fraunhofer*) ne dépendent que de l'angle de diffusion θ et du diamètre d ; elles sont indépendantes de l'indice de réfraction.

On obtient donc une répartition lumineuse du type « anneaux de Airy », qui permet la détermination du diamètre en analysant cette figure de diffraction.

Si les particules sont de dimensions différentes, alors les figures de diffraction se superposent en donnant une figure globale plus lissée. L'intensité I de la figure de diffraction globale est la somme des contributions des différentes classes de taille de particules :

$$I(\theta) = A \int_0^{\infty} F(x) x^4 \left[\frac{J_1(kx \sin(\theta))}{kx \sin(\theta)} \right]^2 dx$$

Avec θ angle d'observation, x le rayon des particules et J_1 est la fonction de Bessel d'ordre 1.

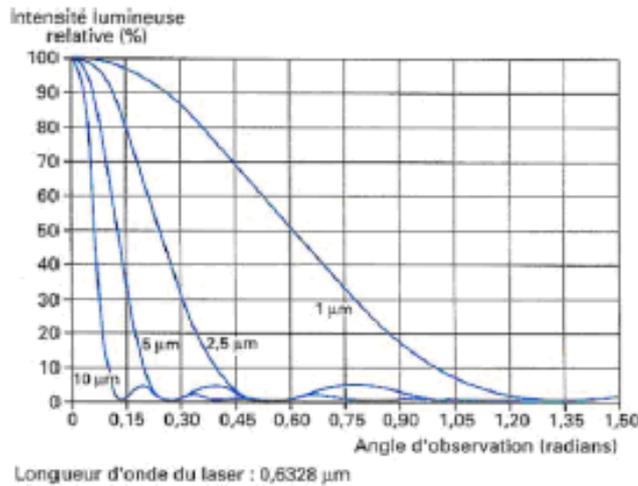


Figure A- I-3: Diffraction de Fraunhofer (Chatelet TI ,E4410)

- Cas des petites particules

Cela correspond à la limite de la théorie de la diffraction de Fraunhofer. Le principe reste le même: la mesure de l'intensité lumineuse suivant sa répartition angulaire ; seule, la technique de calcul pour aboutir à la dimension de la particule, diffère et utilise la théorie de Mie, laquelle sera expliquée au Chapitre II

A.I.3.2.b) Limitation

- la diffraction laser ne considère pas la diffusion multiple : la concentration en particules doit être faible
- la connaissance des indices de réfraction est nécessaire uniquement pour les petites particules.

A.I.3.3 Mesure de corde

Les particules sont en suspension.

A.I.3.3.a) Principe

On utilise ici le principe de réflexion : lorsqu'un faisceau laser rencontre un obstacle il est réfléchi et reçu par un détecteur. Le faisceau est en mouvement suivant une vitesse connue. En mesurant le temps où il y a réflexion, on en déduit une longueur de corde (longueur d'interception du signal lumineux par la particule), on obtient ainsi une distribution de corde pour l'ensemble du système.

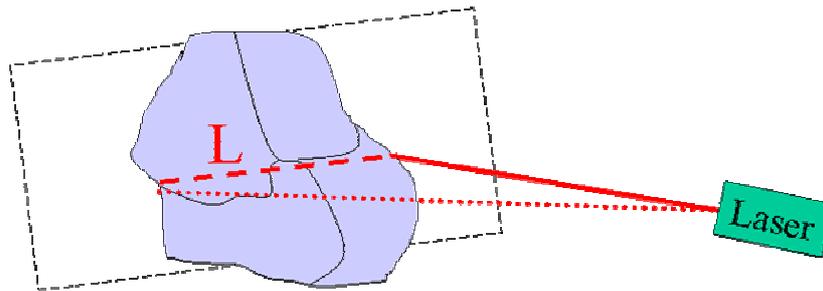


Figure A- I-4: Mesure de corde

A.I.3.3.b) Limitation

Ce système permet de voir l'évolution d'un procédé en fonction du temps grâce à la variation de la distribution de cordes ; dans l'état actuel, il ne donne toutefois aucune information sur la forme des particules en suspension et leur distribution de taille.

A.I.4. Bilan

Les trois méthodes citées précédemment se réfèrent aux principes de fonctionnement du détecteur d'extinction dynamique de chez Aello, au Mastersizer de chez Malvern ou à la mesure de distribution de cordes par le Lasentec D600.

Malheureusement, dans l'état d'avancement des techniques de calculs, ces appareils perçoivent une différence de signal entre une particule primaire et un agrégat, mais ne peuvent utiliser ces mesures pour définir la forme de l'agrégat et font l'hypothèse, dans le cas des deux premiers appareils, qu'il s'agit d'une sphère pour en extraire un diamètre (*Annexe Tableau 2*). La problématique de ce sujet de thèse est donc d'essayer de mettre en place une méthode de calcul permettant d'exploiter cette différence de signal entre une particule primaire et un agrégat. Les prochains chapitres de cette partie dressent l'état des lieux des connaissances théoriques et « outils de calcul » nécessaires à l'élaboration de ces méthodes de calculs.

Au cours des deux dernières sections, nous avons largement mentionné l'utilisation de la théorie de Mie qui est valable sur l'ensemble des gammes de taille de particules primaires ; le prochain chapitre lui est consacré.

Chapitre II Théorie de Mie pour une sphère

Gustave Mie publia en 1908 une théorie sur la diffusion de la lumière par une particule, d'où le nom de la théorie de Mie. Nous avons rappelé dans A.I.3 que la lumière est une onde électromagnétique, donc composée d'un champ \vec{E} et d'un champ \vec{H} . Gardons en mémoire, au cours des prochaines lignes, qu'une intensité lumineuse I (dont nous avons déjà parlé en A.I.3) se définit en fonction de ces champs; nous avons donc besoin de les connaître.

A.II.1. Les équations de Maxwell

Nous adoptons une approche macroscopique pour déterminer l'absorption et la diffusion d'une onde électromagnétique par une particule.

La solution de Mie provient des équations de Maxwell qui constituent le postulat de base de l'électromagnétisme :

$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{A.2})$$

$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{H} = \vec{J}_l + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (\text{A.3})$$

$$\text{div} \cdot \vec{D} = \rho_l \quad (\text{A.4})$$

$$\text{div} \vec{B} = 0 \quad (\text{A.5})$$

ρ_l et \vec{J}_l représentent la densité volumique de charge et le vecteur densité de courant des charges libres, ils sont nuls dans le cas envisagé; les particules ne sont pas chargées électriquement, ni le milieu.

Les champs électrique \vec{E} , magnétique \vec{H} , d'induction magnétique \vec{B} et le champ d'induction électrique \vec{D} sont reliés par :

$$\vec{D} = \epsilon \cdot \vec{E} \quad (\text{A.6})$$

$$\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu} \quad (\text{A.7})$$

Les constantes ε et μ sont respectivement la permittivité diélectrique et la perméabilité magnétique du milieu.

Les équations (A.2) et (A.3) peuvent être écrites sous la forme :

$$\Delta \vec{E} - \varepsilon \cdot \mu \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (\text{A.8})$$

$$\Delta \vec{H} - \varepsilon \cdot \mu \cdot \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} = 0 \quad (\text{A.9})$$

Dès lors, tous les phénomènes comme la diffusion, les interférences ou la diffraction se modélisent grâce aux équations de Maxwell.

Nous considérons une sphère de rayon x , constituée d'un matériau (noté 1), dans un milieu (noté 2).

A.II.2. Théorie de Mie

La solution de Mie repose sur plusieurs hypothèses :

- les particules sont sphériques,
- la longueur d'onde entre les radiations incidentes et diffuses est la même,
- les particules sont constituées d'un matériau homogène,
- les particules sont isolées spatialement c'est-à-dire qu'il n'y a pas de diffusion multiple,

La propagation de l'onde électromagnétique dans la sphère et le milieu environnant obéit aux équations (A.8) et (A.9). A l'interface entre les deux milieux 1 et 2, nous pouvons écrire :

$$\vec{n} \times (\vec{H}_2 - \vec{H}_1) = \vec{L} \quad (\text{A.10})$$

$$\vec{n} \times (\vec{E}_2 - \vec{E}_1) = 0 \quad (\text{A.11})$$

$$\vec{n} \cdot (\vec{D}_2 - \vec{D}_1) = K \quad (\text{A.12})$$

$$\vec{n} \cdot (\vec{B}_2 - \vec{B}_1) = 0 \quad (\text{A.13})$$

avec L la densité de courant de surface et K la densité de charge de surface qui sont nulles dans notre cas. Nous admettrons, que dans le cas contraire, l'absorption et la diffusion sont

très légèrement modifiées. Les équations (A.10)-(A.13) constituent les conditions aux limites des équations (A.8) et (A.9) .

A.II.2.1 Equation d'onde vectorielle

Les champs \vec{E} et \vec{H} dans un milieu homogène satisfont l'équation d'onde vectorielle où les champs ont la même forme que $\vec{A} : (\vec{A}(r,t) = \vec{C}(r)e^{-i\omega t})$. Ainsi, (A.8) et (A.9) sont sous la forme :

$$\Delta \vec{C} + k^2 \vec{C} = 0$$

$$\text{avec } k^2 = \omega^2 \varepsilon \mu$$

Les équations vectorielles ci-dessus sont équivalentes aux équations scalaires $\Delta u + k^2 u = 0$ où u sont les composantes de \vec{E} et \vec{H} . Une méthode due à Stratton (Stratton 1941) permet de réduire le nombre élevé d'équations aux dérivées partielles à résoudre.

Si u satisfait l'équation d'onde scalaire, alors les vecteurs \vec{M}_u et \vec{N}_u définis par :

$$\vec{M}_u = \text{rot}(\vec{r}u) \quad (\text{A.14})$$

$$k\vec{N}_u = \text{rot}\vec{M}_u \quad (\text{A.15})$$

satisfont l'équation d'onde vectorielle et sont reliés par : $k\vec{M}_u = \text{rot}\vec{N}_u$

Une simple substitution montre que si π_1 et π_2 sont solutions de l'équation d'onde scalaire et $\vec{M}_{\pi_1}, \vec{M}_{\pi_2}, \vec{N}_{\pi_1}, \vec{N}_{\pi_2}$ sont les champs de vecteurs, on a :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \vec{M}_{\pi_2} + i\vec{N}_{\pi_1} \\ \vec{H} &= (-\vec{M}_{\pi_1} + i\vec{N}_{\pi_2}) \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

Les composantes de \vec{E} et \vec{H} peuvent alors être écrites en terme de solution π_1 et π_2 de l'équation d'onde scalaire.

A.II.2.2 Equation d'onde scalaire

L'équation d'onde scalaire s'écrit :

$$\Delta\pi + k^2\pi = 0 \quad (\text{A.17})$$

En coordonnées sphériques cette équation s'écrit :

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \pi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \pi}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 \pi}{\partial \phi^2} + k^2 \pi = 0 \quad (\text{A.18})$$

Avec la méthode de séparation des variables on a :

$$\pi(r, \theta, \phi) = R(r)\Theta(\theta)\Phi(\phi) \quad (\text{A.19})$$

L'équation (A.18) se décompose alors en trois équations, faisant apparaître les deux entiers relatifs n et m :

A.II.2.2.a) Equation radiale :

$$\frac{d^2 R(r)}{dr^2} + \left[k^2 - \frac{n(n+1)}{r^2} \right] rR(r) = 0 \quad (n \in \mathbb{N}) \quad (\text{A.20})$$

Les solutions de cette équation sont les fonctions de Riccati- Bessel et leurs combinaisons définies comme suit :

$$\psi_n(kr) = krj_n(kr) = (\pi kr / 2)^{1/2} J_{n+\frac{1}{2}}(kr) \quad (\text{A.21})$$

$$\chi_n(kr) = -kry_n(kr) = -(\pi kr / 2)^{1/2} Y_{n+\frac{1}{2}}(kr) \quad (\text{A.22})$$

où $J_{n+\frac{1}{2}}(kr)$ et $Y_{n+\frac{1}{2}}(kr)$ sont les fonctions de Bessel de première et deuxième espèce d'ordre demi-entier. On remarque que :

$$\xi_n(kr) = \psi_n(kr) + i\chi_n(kr) = (\pi kr / 2)^{1/2} H_{n+\frac{1}{2}}^{(2)}(kr) = krh_n^{(2)}(kr) \quad (\text{A.23})$$

car $H_n^{(2)}(kr) = J_n(kr) - iY_n(kr)$

où $H_{n+\frac{1}{2}}^{(2)}(kr)$ est la fonction de Hankel de second type qui a la particularité de s'annuler lorsque kr tend vers l'infini. Pour plus de détails sur leurs particularités ou leurs combinaisons voir (Abramoowitz and Stegun 1965)

A.II.2.2.b) Equation polaire :

$$\frac{1}{\sin \theta} \frac{d}{d\theta} \left(\sin \theta \frac{d\Theta(\theta)}{d\theta} \right) + \left[n(n+1) - \frac{m^2}{\sin^2 \theta} \right] \Theta(\theta) = 0 \quad n \in \mathbb{N} \quad m \in [-n; n] \quad (\text{A.24})$$

Les solutions de (A.24) sont les polynômes de Legendre associés, sujets aux restrictions de m et n :

$$\Theta = P_n^m(\cos \theta) \quad (\text{A.25})$$

A.II.2.2.c) Equation azimutale :

$$\frac{d^2 \Phi(\phi)}{d\phi^2} + m^2 \Phi(\phi) = 0 \quad (\text{A.26})$$

$$\text{Dont la solution est : } \Phi(\phi) = e^{im\phi} \quad (\text{A.27})$$

La solution générale de l'équation d'onde scalaire en coordonnées sphériques est la superposition linéaire de toutes les solutions particulières.

$$r\pi = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \{c_n \psi_n(kr) + d_n \chi_n(kr)\} \{P_n^m(\cos \theta)\} \{a_m \cos(m\phi) + b_m \sin(m\phi)\}$$

$$\text{Soit } \pi_{1mn} = \cos(m\phi) P_n^m(\cos \theta) z_n(kr), \quad \pi_{2mn} = \sin(m\phi) P_n^m(\cos \theta) z_n(kr)$$

Où z_n est une des fonctions j_n , y_n ou une fonction de Hankel $h_n^{(1)}$ et $h_n^{(2)}$ (définies par $h_n^{(1)}(kr) = j_n(kr) + iy_n(kr)$ et $h_n^{(2)} = j_n(kr) - iy_n(kr)$)

On pose : $\rho = kr$

Les composantes complètes de M_u et N_u sont avec (A.14) et (A.15):

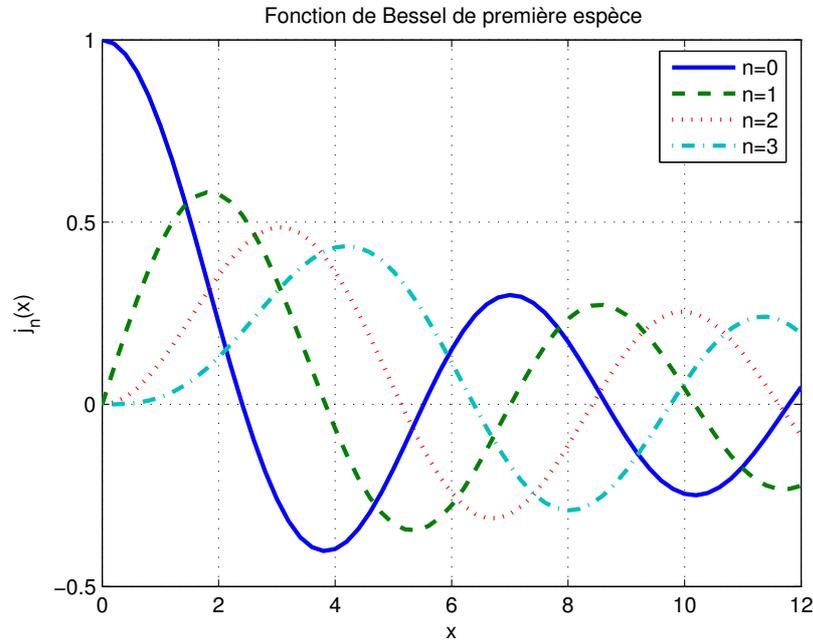
$$\begin{aligned} \vec{M}_{\pi_{1mn}} = \vec{M}_{1mn} &= \frac{-m}{\sin \theta} \sin(m\phi) P_n^m(\cos \theta) z_n(\rho) \vec{e}_\theta \\ &- \cos(m\phi) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} z_n(\rho) \vec{e}_\phi \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

$$\begin{aligned} \vec{M}_{\pi_{2mn}} = \vec{M}_{2mn} &= \frac{m}{\sin \theta} \cos(m\phi) P_n^m(\cos \theta) z_n(\rho) \vec{e}_\theta \\ &- \sin(m\phi) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} z_n(\rho) \vec{e}_\phi \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

$$\begin{aligned} \vec{N}_{\pi_{1mn}} = \vec{N}_{1mn} &= \frac{z_n(\rho)}{\rho} \cos(m\phi) n(n+1) P_n^m(\cos \theta) \vec{e}_r \\ &+ \cos(m\phi) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \vec{e}_\theta \\ &- m \sin(m\phi) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \vec{e}_\phi \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

$$\begin{aligned} \vec{N}_{\pi_{2mn}} = \vec{N}_{2mn} &= \frac{z_n(\rho)}{\rho} \sin(m\phi) n(n+1) P_n^m(\cos \theta) \vec{e}_r \\ &+ \sin(m\phi) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \vec{e}_\theta \\ &+ m \cos(m\phi) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \vec{e}_\phi \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

Le choix de z_n est précisé, dans le paragraphe suivant, connaissant les propriétés des fonctions de Bessel de première et deuxième espèces comme l'illustre *Figure A- II-1*.



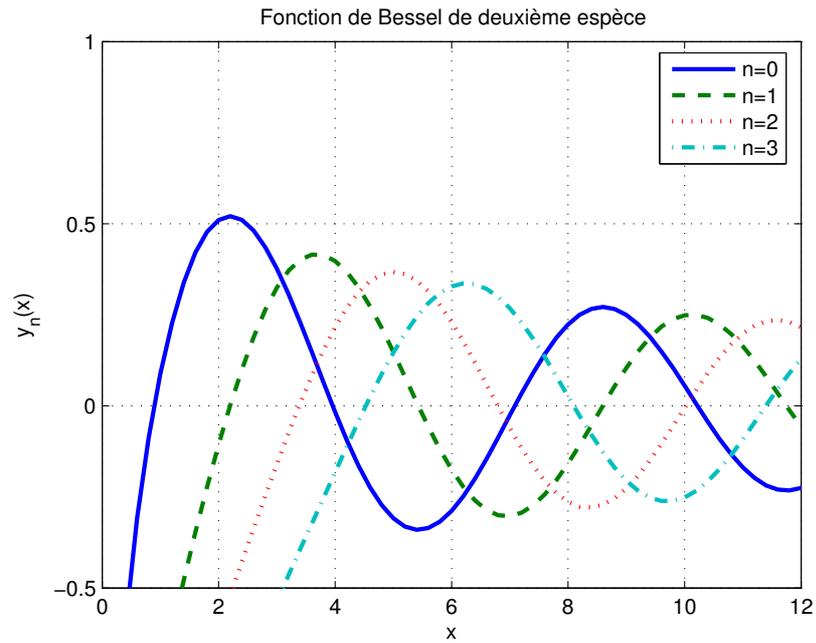


Figure A- II-1: Fonction de Bessel de première et deuxième espèce d'ordre entier.

A.II.3. Expressions des champs

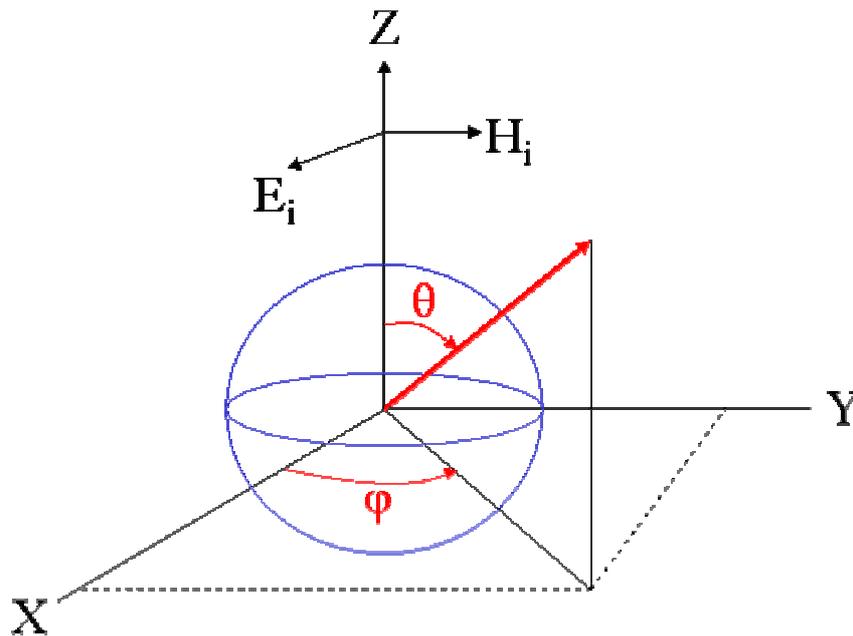


Figure A- II-2: Système de coordonnées sphériques centrées sur une particule sphérique de rayon a .

Nous allons rechercher l'expression des champs incident \vec{E}_{inc} , interne \vec{E}_1 et diffus \vec{E}_{sca} .

A.II.3.1 Les champs incidents :

On choisit une onde incidente plane polarisée suivant x (*Figure A- II-2*)

$$\vec{E}_{inc} = E_0 e^{ikr \cos \theta} \vec{e}_x$$

$$\text{Avec } \vec{e}_x = \sin \theta \cos \phi \vec{e}_r + \cos \theta \cos \phi \vec{e}_\theta - \sin \phi \vec{e}_\phi$$

On peut alors exprimer \vec{E}_{inc} comme une combinaison linéaire de vecteurs harmoniques sphériques (A.16) de façon à être compatible avec la solution générale.

$$\vec{E}_{inc} = \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=m}^{\infty} B_{2mn} \vec{M}_{2mn} + A_{1mn} \vec{N}_{1mn}$$

$$\text{Avec } A_{quv} = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \vec{E}_{inc} \vec{N}_{quv} \sin \theta d\theta d\phi}{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi |\vec{N}_{quv}|^2 \sin \theta d\theta d\phi} \quad \text{et} \quad B_{quv} = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \vec{E}_{inc} \vec{M}_{quv} \sin \theta d\theta d\phi}{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi |\vec{M}_{quv}|^2 \sin \theta d\theta d\phi} \quad (\text{A.32})$$

or avec (A.29) et (A.30) on voit que ces coefficients s'annulent dû à l'orthogonalité du sinus et de cosinus pour tous m et n sauf si m=1. De plus, l'onde incidente est finie à l'origine, donc $\chi_n(k_2 r)$ a été enlevé de la composante radiale de cette expression car cette fonction est infinie à l'origine ; nous utiliserons donc l'exposant (1) pour identifier cette particularité ($z_n=j_n$); d'où :

$$\vec{E}_{inc} = \sum_{n=1}^{\infty} B_{21n} \vec{M}_{21n}^{(1)} + A_{11n} \vec{N}_{11n}^{(1)}$$

On détermine B_{21n} et A_{11n} avec (A.32)

$$\text{On obtient finalement : } \vec{E}_{inc} = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\vec{M}_{21n}^{(1)} - i \vec{N}_{11n}^{(1)})$$

$$\text{Avec (A.2) et (A.7) on obtient : } \vec{H}_{inc} = \frac{-k_2}{\omega \mu_2} E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\vec{M}_{11n}^{(1)} - i \vec{N}_{21n}^{(1)})$$

Ici $\rho = k_2 r$

A.II.3.2 Les champs internes et diffus

A.II.3.2.a) Champs internes :

$$\vec{E}_1 = \sum_{n=1}^{\infty} E_n (c_n \vec{M}_{21n}^{(1)} - i d_n \vec{N}_{11n}^{(1)}), \quad \vec{H}_1 = \frac{-k_1}{\omega \mu_1} \sum_{n=1}^{\infty} E_n (d_n \vec{M}_{11n}^{(1)} - i c_n \vec{N}_{21n}^{(1)})$$

De même, la fonction $\chi_n(k_1 r)$ a été enlevée de cette expression car elle est infinie à l'origine. Ceci explique la présence de l'exposant (1) dans l'expression ci-dessus ($z_n = j_n$).

A.II.3.2.b) Champs diffus :

$$\vec{E}_{sca} = \sum_{n=1}^{\infty} E_n (i a_n \vec{M}_{11n}^{(3)} - b_n \vec{N}_{21n}^{(3)}), \quad \vec{H}_{sca} = \frac{-k_2}{\omega \mu_2} \sum_{n=1}^{\infty} E_n (i b_n \vec{M}_{21n}^{(3)} + a_n \vec{N}_{11n}^{(3)}) \quad (\text{A.33})$$

L'onde diffuse doit être nulle à l'infini, ce qui est en accord avec la fonction de Hankel $\xi_n(k_2 r)$, d'où l'exposant (3), ($z_n = h_n^{(1)}$).

$$\text{Avec } E_n = i^n E_0 \frac{(2n+1)}{n(n+1)}$$

Les conditions aux limites ((A.10) et (A.11)) font que les composantes tangentielles du champ électrique et magnétique sont continues à la surface; nous avons donc quatre équations linéaires permettant d'obtenir les coefficients a_n , b_n , c_n et d_n :

$$E_{inc\theta} + E_{sca\theta} = E_{1\theta}, \quad H_{inc\theta} + H_{sca\theta} = H_{1\theta}$$

$$E_{inc\phi} + E_{sca\phi} = E_{1\phi}, \quad H_{inc\phi} + H_{sca\phi} = H_{1\phi}$$

Seuls a_n et b_n sont intéressants pour la suite ; ils sont appelés coefficients de Mie :

$$a_n = \frac{\psi_n(\alpha)\psi_n'(\beta) - m_r \psi_n(\beta)\psi_n'(\alpha)}{\xi_n(\alpha)\psi_n'(\beta) - m_r \psi_n(\beta)\xi_n'(\alpha)} \quad (\text{A.34})$$

$$b_n = \frac{m_r \psi_n(\alpha)\psi_n'(\beta) - \psi_n(\beta)\psi_n'(\alpha)}{m_r \xi_n(\alpha)\psi_n'(\beta) - \psi_n(\beta)\xi_n'(\alpha)} \quad (\text{A.35})$$

où

$$m_r = \frac{n_p}{n_m},$$

$$\alpha = \frac{2 \cdot \pi \cdot x}{\lambda},$$

$$\beta = m_r \cdot \alpha,$$

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{n_m}$$

$n_p=m_1$ et $n_m=m_2$ et x =rayon de la sphère. **α est le paramètre de taille**

On peut maintenant complètement déterminer les composantes du champ diffus (A.33)

A.II.3.3 Solution en champ lointain

Nous considérons maintenant le champ diffus à une distance importante de la particule, c'est-à-dire $k_2 r \gg n$; où n est l'ordre de la fonction de Riccati-Bessel. Les expressions du champ diffus se simplifient.

Tout d'abord, la fonction de Hankel dans (A.23) se réduit à :

$$\xi_n(k_2 r) = i^{(n+1)} \exp(-ik_2 r)$$

$$\xi_n'(k_2 r) = i^n \exp(-ik_2 r)$$

De plus, les composantes radiales E_r et H_r qui décroissent comme $(\lambda/r)^2$, peuvent être négligées en champ lointain.

Ainsi, comme il est expliqué par Van de Hulst (Hulst 1981), les composantes du champ diffus peuvent être exprimées en fonction des composantes du champ incident par l'intermédiaire de quatre fonctions d'amplitude S_i ($i \in [1;4]$) qui sont :

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel, sca} \\ E_{\perp, sca} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \cdot \frac{e^{i \cdot k \cdot r - i \cdot k \cdot z}}{-i \cdot k \cdot r} \cdot \begin{pmatrix} E_{\parallel, inc} \\ E_{\perp, inc} \end{pmatrix} \quad (\text{A.36})$$

Les indices \perp et \parallel signifient respectivement composante perpendiculaire et parallèle au plan de diffusion, lui-même défini par la direction incidente et la direction de diffusion. Cette équation suppose que le champ incident se propage suivant z . Les éléments de la matrice de diffusion ont une dépendance angulaire. Pour des particules sphériques S_3 et S_4 sont nulles (ceci étant dû aux relations de symétrie (Hulst 1981)).

Mie a obtenu les expressions analytiques pour les deux premières fonctions d'amplitude :

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \cdot [a_n \pi_n(\cos \theta) + b_n \cdot \tau_n(\cos \theta)] \quad (\text{A.37})$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \cdot [b_n \pi_n(\cos \theta) + a_n \cdot \tau_n(\cos \theta)] \quad (\text{A.38})$$

Dans les équations (A.37) et (A.38), les fonctions angulaires π_n et τ_n sont définies comme suit :

$$\pi_n = \frac{P_n^1(\cos \theta)}{\sin \theta} \quad (\text{A.39})$$

$$\tau_n = \frac{dP_n^1(\cos \theta)}{d\theta} \quad (\text{A.40})$$

Les notions précédentes conduisent aux grandeurs utilisées pour caractériser optiquement une particule.

A.II.3.4 Sections efficaces

- La section efficace d'extinction représente l'énergie extraite du faisceau incident par la particule par absorption et diffusion et se calcule à l'aide des coefficients de Mie :

$$C_{ext} = (\lambda^2 / 2\pi) \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \{\Re(a_n + b_n)\}$$

$$\text{Et } C_{ext} = C_{sca} + C_{abs} \quad (\text{A.41})$$

- La section efficace de diffusion est :

$$C_{scat} = (\lambda^2 / 2\pi) \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \{|a_n|^2 + |b_n|^2\} \quad (\text{A.42})$$

- La section efficace d'absorption se déduit de (A.41).
- Le paramètre d'asymétrie est le cosinus moyen des angles de diffusion et s'écrit g ou $\langle \cos \theta \rangle$. Si la lumière diffuse est isotrope (la même dans toutes les directions), ou si la diffusion est symétrique par rapport à l'angle de diffusion de 90° , g s'annule. Il est positif si la diffusion est majoritairement une diffusion avant (*forward scattering*) et négatif dans le cas d'une rétro-diffusion (*back scattering*) prédominante.
- La lumière transporte de l'énergie mais aussi une quantité de mouvements (celle des photons). Un faisceau va donc exercer sur la particule une pression de radiation. Une section efficace de pression de radiation est définie comme suit :

$$C_{pr} = C_{ext} - C_{sca} \langle \cos \theta \rangle \quad (\text{A.43})$$

A.II.3.5 Remarque

Avec ces équations, il est donc possible de résoudre mathématiquement le problème de la diffusion de la lumière par une sphère ; or, comme nous pouvons le constater dans les équations (A.37) et (A.38), le nombre de sommations à effectuer est grand avant d'obtenir la convergence de la série. Il existe un critère de troncature permettant d'obtenir une convergence plus rapide, qui porte le nom de son inventeur Wiscombe (Wiscombe 1980)

$$N_w = \text{arrondi}(\alpha + 4\alpha^{1/3} + 2) \quad (\text{A.44})$$

A.II.4. Bilan

Nous venons de définir les grandeurs pertinentes (section efficace, paramètre d'asymétrie) pour caractériser une sphère et nous allons nous intéresser maintenant au cas d'un groupe de sphères très proches, dont le cas limite est l'agrégat.

Chapitre III Modèles pour un agrégat

La théorie de Mie est rarement applicable aux problèmes pratiques, sa plus grande limitation est que nous considérons les particules comme étant sphériques. Cependant, il existe de nombreuses dispersions qui sont constituées de particules primaires sphériques mais celles-ci aspirent à former des agrégats qui eux ne sont pratiquement jamais sphériques. Comme ces systèmes sont d'un grand intérêt dans de nombreuses disciplines scientifiques telles que l'astronomie ou la chimie, les recherches sur les propriétés de diffusion d'agrégats ont commencé dans les années soixante dix.

Nous allons présenter brièvement quelques unes des méthodes permettant de traiter la diffusion de la lumière par un agrégat avant de nous attarder plus précisément sur celle utilisée dans la suite de cette thèse.

A.III.1. Les différentes méthodes

A.III.1.1 Aperçu des différentes méthodes

Dans le *Tableau A- III-1*, nous avons essayé de montrer différentes méthodes utilisées pour calculer les propriétés optiques d'un agrégat. Nous invitons le lecteur à consulter l'article de F. Michael Kahnert (Kahnert 2003) pour avoir un éventail plus complet de ces méthodes. Il est assez difficile de les classer précisément et surtout de toutes les énumérer car généralement une même méthode, modifiée légèrement, porte un nom différent. Néanmoins on peut les classer en trois grandes catégories :

- Les méthodes basées sur les équations aux dérivées partielles qui calculent le champ diffus en résolvant les équations de Maxwell, ou l'équation d'onde vectorielle, soumise aux conditions aux limites appropriées dans le domaine des temps ou des fréquences.
- Les méthodes par intégration en volume ou surface d'équations dérivées des équations de Maxwell sachant qu'ainsi les conditions aux limites sont incluses automatiquement dans la solution.
- Les autres méthodes sont dites hybrides puisqu'elles dérivent de ces différentes approches.

Nom	Principe	Applications	Points forts et faibles
Méthode avec équations aux dérivées partielles			
S.V.M. Méthode par Séparation des Variables	Méthode appliquée dans le cas de la théorie de Mie ; elle peut s'appliquer lorsque les frontières de la particule envisagée coïncident avec celle d'un système de coordonnées dans lequel on peut alors opérer la séparation des variables.	Dans n'importe quel système de coordonnées où l'on peut séparer les variables . Précisons dès lors, que entre autres , Asano et Yamamoto (Asano 1979) ont utilisé cette technique pour déterminer les propriétés optiques d'un sphéroïde dont nous parlerons plus tard dans ce texte.	- La solution ainsi obtenue est dite exacte mais les calculs sont longs. - on doit répéter l'opération pour chaque orientation - $N \approx O(\alpha^3)$
F.D.T.D. Différences Finies dans le domaine des temps	Cette méthode consiste à discrétiser les équations de Maxwell, en espace et temps, puis à les résoudre à partir des valeurs initiales (Yang and Liou 2000).	Toutes les formes de particules mais dans un domaine fini.	-on doit répéter l'opération pour chaque orientation - $N \approx O(\alpha^4)$
F.E.M. Méthode par Eléments Finis	Cette méthode consiste à discrétiser l'équation d'Helmholtz dans l'espace et à résoudre numériquement avec les conditions aux limites (Coccioli, Itoh et al. 1996).	Toutes les formes de particules mais dans un domaine fini	- on doit répéter l'opération pour chaque orientation - la précision est fonction du maillage qui doit être choisi en fonction de la forme des particules - $N \approx O(\alpha^7)$
P.M.M. Méthode par Point-Matching	Dans cette méthode, les champs interne et externe sont exprimés en tant que vecteur harmonique sphérique et, comme son nom l'indique, le champ tangentiel aux frontières doit être continu pour un nombre fini de points appartenant à la surface de la particule.	Normalement toutes les formes de particules mais cette méthode connaît un certain nombre de problèmes pour les géométries allongées.	- Cette méthode est limitée aux particules quasi-sphériques, elle a une convergence incertaine, et donc un temps de calcul important (Wriedt 1998).

Nom	Principe	Applications	Points forts et faibles
Intégration volumique ou surfacique			
V.I.E.M. Méthode par intégration volumique	On exprime le champ total dans tout l'espace en terme de champ incident et de champ interne au volume choisi -On évalue le champ interne en le considérant, pour chaque élément de volume, comme étant constant : M.O.M (Méthode des Moments) (Harrington. 1968). Ou -Chaque élément est considéré comme un dipôle : D.D.A (Approximation des dipôles discrétisés)(Draine and Flatau 1994) La façon dont on évalue le champ interne donne le nom à la méthode.	-Particules inhomogènes, anisotropes.	-MoM et DDA sont longues en temps de calcul - on doit répéter l'opération pour chaque orientation - $N \approx O(\alpha^9)$

Tableau A- III-1: Méthodes permettant de traiter la diffusion de la lumière par un agrégat
(N : Nombre d'opérations dans l'algorithme issue de l'analyse de (Kahnert 2003)).

Il s'avère important de préciser au lecteur la signification de l'expression T-matrix ou matrice T que nous retrouvons dans la majorité des publications.

A.III.1.2 « la méthode »: T-Matrix

Dans la méthode T-matrix, les champs incidents et diffus sont exprimés sous la forme de séries de fonctions vectorielles d'onde sphérique. On parle de méthode T-Matrix, lorsque on relie les coefficients d'expansion de l'onde incidente et de l'onde diffuse par une transformation linéaire (T : Transition). Cette matrice T contient toutes les informations sur les propriétés optiques des particules pour une longueur d'onde donnée. Elle est fonction du paramètre de taille, de la forme, de l'indice de réfraction des particules considérées, mais elle ne dépend pas du champ incident. Cette matrice n'est donc pas à recalculer pour chaque orientation du champ incident, d'où sa grande utilisation.

Pour classer l'ensemble des publications utilisant cette méthode (plus de 700), une base de données a été réalisée par M.Mishchenko, G. Videen, V. A. Babenko, N. Khlebtsov et T.

Wriedt (Mishchenko, Videen et al. 2004). Cette méthode, est en fait, une technique de calcul, qui se retrouve associée à différentes méthodes (eg. : SVM).

Ainsi toute méthode permettant de formuler le problème sous la forme d'une matrice T est appelée *T-Matrix method*.

Voyons donc maintenant une de ces associations dans le paragraphe suivant.

A.III.1.3 Par superposition

La solution par séparation des variables (SVM) pour une seule sphère, peut être étendue à un agrégat de sphères en utilisant le théorème de translation pour le vecteur d'onde sphérique qui exprime ce vecteur dans différentes bases de coordonnées. Le champ diffus total pour un agrégat est alors représenté par la superposition des champs diffus individuels issus de chaque particule sachant que ces champs sont interdépendants. De plus, on peut formuler le problème sous la forme d'une T-matrice.

Cette méthode est très précise mais son temps de calcul dépend du nombre et du paramètre de taille des particules primaires.

Nous utiliserons dans la suite de ce texte cette méthode qui est en fait un cas particulier de la *méthode T-matrix* (Mishchenko, Travis et al. 2004) portant le nom de GMM (Generalized Multiparticle Mie-solution) .

A.III.2. GMM

Nous n'avons pas trouvé de comparaison des différentes méthodes entre elles, mis à part un article de Hovenier et al. (Hovenier, Lumme et al. 1996) qui compare la T-matrix (Méthode par intégration de surface), SVM et DDA. Cet article montre que cette dernière n'est pas parfaitement en accord avec les deux autres méthodes. Comme aucune étude n'a été menée dans ce sens, nous avons choisi la méthode qui nous semble la plus proche de celle utilisée pour une sphère simple et validée par l'expérience (Xu and Gustafson 2001) :GMM.

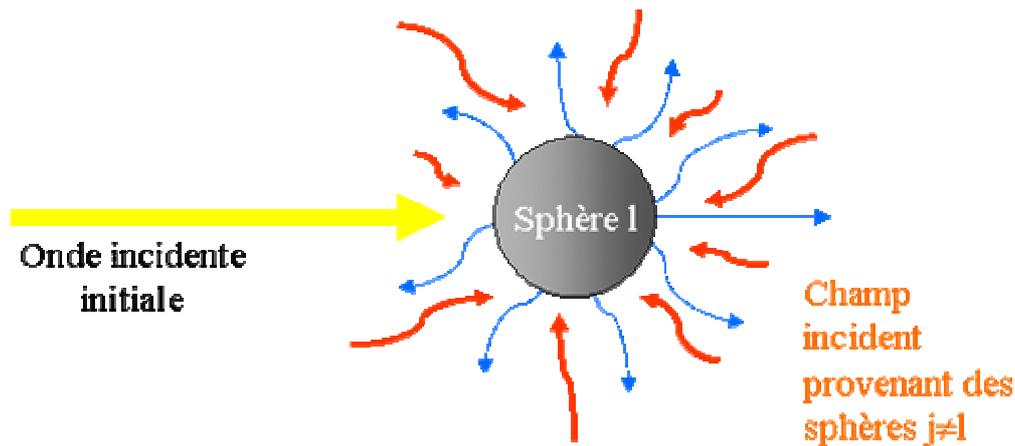


Figure A- III-1: Diffusion multiple

Tant que les sphères constituant l'agrégat ne se coupent pas, il est possible d'utiliser la solution aux équations de Maxwell pour chaque particule ; il reste néanmoins important dans ce cas, de considérer le champ incident comme la somme du champ incident originel et du champ incident dû à la diffusion des autres particules vers cette particule :

Champ incident sur la sphère j = Champ incident originel + Σ Champ diffus des sphères primaires (avec $l \neq j$)

Soit :

$$\vec{E}_{inc}(j) = \vec{E}_0(j) + \sum_{l \neq j} \vec{E}_{sca}(l, j) \quad (\text{A.45})$$

$$\vec{H}_{inc}(j) = \vec{H}_0(j) + \sum_{l \neq j} \vec{H}_{sca}(l, j) \quad (\text{A.46})$$

On entrevoit donc le problème suivant : le système de coordonnées de l'ensemble de l'agrégat, ne peut pas avoir pour origine le centre de chaque sphère. Par conséquent, on doit transformer les coordonnées du champ diffusé par une sphère dans un référentiel centré sur une autre sphère et ainsi de suite.

Pour cela on utilise le théorème d'addition développé par Curzhan en 1961. Dès lors il fût possible de résoudre un problème lié au changement de base de coordonnées d'un vecteur.

A.III.2.1 Historique

La première publication utilisant le théorème d'addition date de 1971. Les auteurs Bruning et Lo (Bruning and Lo 1971) y décrivent la diffusion par une chaîne de deux sphères. Par la suite, en 1991, Mackowski (Mackowski 1991) fut l'un des premiers à modéliser le phénomène de diffusion pour une configuration d'agrégats arbitraires, en utilisant encore une troncature sur le nombre de séries infinies normalement nécessaires à l'obtention des propriétés de diffusion. La première solution complète, comparable à celle de Mie fut donnée en 1995 par Xu (Xu 1995). Le travail présenté dans la suite de ce rapport repose sur cette théorie, appelée G.M.M. (Generalized Multiparticle Mie-solution).

A.III.2.2 Contexte de GMM

A.III.2.2.a) Introduction

Soit une onde plane se propageant suivant la direction z et avec une polarisation linéaire β_p .

$$\vec{E}_i = \vec{E}_0 e^{ikz} \text{ avec } \vec{E}_0 = E_0 (\cos \beta_p \vec{e}_x + \sin \beta_p \vec{e}_y)$$

Nous avons vu au chapitre précédent l'expression des vecteurs d'onde sphérique ((VSWF : *Vector Spherical Wave Function*) (A.28) à (A.31) avec (A.39) et (A.40) dont nous allons largement nous servir:

$$\vec{M}_{mn}^{(J)}(kr, \theta, \phi) = [\mathbf{i} \cdot \pi_{mn}(\cos \theta) \vec{e}_\theta - \tau_{mn}(\cos \theta) \vec{e}_\phi] \cdot z_n^{(J)}(kr) \cdot e^{i \cdot m \cdot \phi} \quad (\text{A.47})$$

$$\begin{aligned} \vec{N}_{nm}^{(J)}(kr, \theta, \phi) = & \cdot n \cdot (n+1) P_n^m(\cos \theta) \cdot \frac{z_n^{(J)}(kr)}{kr} \cdot e^{i \cdot m \cdot \phi} \vec{e}_r \\ & + [\tau_{mn}(\cos \theta) \vec{e}_\theta + \mathbf{i} \cdot \pi_{mn}(\cos \theta) \vec{e}_\phi] \cdot \frac{1}{kr} \cdot \frac{d}{dr} [kr z_n^{(J)}(kr)] \cdot e^{i \cdot m \cdot \phi} \end{aligned} \quad (\text{A.48})$$

$z_n^{(J)}$ est la fonction de Bessel appropriée, de première (j_n), deuxième (y_n) ou troisième (h_n) espèce ; avec une fonction de Hankel pouvant être de premier ou deuxième ordre ($h_n^{(1)}$, $h_n^{(2)}$). Ceci est spécifié par J qui prend respectivement la valeur de 1, 2, 3 ou 4.

A.III.2.2.b) Hypothèses

Les hypothèses de la théorie de Xu sont les suivantes :

- les particules primaires doivent être homogènes et sphériques,

- Le champ incident doit pouvoir s'exprimer en onde sphérique,
- Il n'y a pas de décalage de phase entre l'onde incidente et l'onde diffuse.

A.III.2.3 Généralisation de la théorie de Mie

A.III.2.3.a) Expression des champs incidents et diffus pour chaque sphère

La généralisation de la théorie de Mie repose sur le changement de repère des champs d'une sphère comme nous l'avons déjà indiqué. Ceci peut être fait en utilisant la définition de SVWF lorsque l'origine du système de coordonnées est située au centre de la particule.

Le champ interne, bien qu'indispensable pour déterminer le champ diffus (cf. Chapitre II), ne nous intéresse pas à proprement parlé dans la suite de ce travail, mais les équations correspondantes peuvent se trouver dans (Xu 1995). Elles ne seront donc pas présentées ici.

Les champs électriques et magnétiques diffus par la l-ième sphère ont donc la forme suivante:

$$\vec{\mathbf{E}}_{sca}(l) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n i \cdot E_{mn} \left[a_{mn}^l \cdot \vec{\mathbf{N}}_{mn}^{(3)}(kr^l, \theta^l, \phi^l) + b_{mn}^l \cdot \vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(3)}(kr^l, \theta^l, \phi^l) \right] \quad (\text{A.49})$$

$$\vec{\mathbf{H}}_{sca}(l) = \frac{k}{\omega\mu_0} \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n E_{mn} \left[b_{mn}^l \cdot \vec{\mathbf{N}}_{mn}^{(3)}(kr^l, \theta^l, \phi^l) + a_{mn}^l \cdot \vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(3)}(kr^l, \theta^l, \phi^l) \right] \quad (\text{A.50})$$

Les champs sont la superposition de simples SVWF pondérées par les coefficients de diffusion partielle a_{mn}^l et b_{mn}^l . L'exposant (3) indique que, dans SVWF, les fonctions générées sont des fonctions de Hankel d'ordre un. Ceci a été choisi pour des raisons physiques, en effet l'amplitude du champ diffusé doit rapidement décroître lorsque l'on s'éloigne du diffuseur, d'où la fonction d'Hankel.

De même, les champs incidents, dans le système de coordonnées rattaché à la j-ième sphère, sont écrits sous la forme

$$\vec{\mathbf{E}}_{inc}(j) = -\sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n i \cdot E_{mn} \left[p_{mn}^j \cdot \vec{\mathbf{N}}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + q_{mn}^j \cdot \vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right] \quad (\text{A.51})$$

$$\vec{\mathbf{H}}_{inc}(j) = -\frac{k}{\omega\mu_0} \cdot \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n E_{mn} \left[q_{mn}^j \cdot \vec{\mathbf{N}}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + p_{mn}^j \cdot \vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right] \quad (\text{A.52})$$

Nous savons déjà d'après la théorie de Mie que:

Les coefficients pondérants, sont ici les coefficients d'expansion (p et q) du champ incident sur cette base. L'exposant (1) indique ici qu'il s'agit d'une fonction de Bessel d'ordre un, traduisant le fait que la radiation incidente s'atténue, mais plus progressivement que l'onde diffuse.

Dans les équations (A.49)-(A.52), Xu a introduit un facteur E_{mn} (Xu 1996) pour rester en accord avec la théorie de Mie lorsque l'agrégat n'est en fait qu'une sphère.

$$E_{mn} = |E_0| \cdot i^n \cdot \sqrt{\frac{(2n+1) \cdot (n-m)!}{n \cdot (n+1) \cdot (n+m)!}} \quad (\text{A.53})$$

A partir de maintenant nous ne donnerons que les formules relatives au champ électrique pour alléger la lecture (Annexe A.III).

Xu a dérivé deux équations simples reliant les coefficients partiels de diffusion et les paramètres d'incidence (Xu 1995). Lorsque les conditions aux limites sont appliquées, nous obtenons :

$$a_{mn}^j = a_n^j \cdot p_{mn}^j \quad (\text{A.54})$$

$$b_{mn}^j = b_n^j \cdot q_{mn}^j \quad (\text{A.55})$$

Dans les équations ci-dessus a_n^j et b_n^j sont exactement les coefficients de Mie définis dans (A.34) et (A.35) pour la j-ième sphère. Ceci montre que pour le calcul de diffusion multiple, seul le profil du faisceau incident, et, donc les coefficients d'expansion pour chaque sphère, sont à déterminer. Il est évident que les facteurs p et q doivent tenir compte de tous les champs arrivant sur la sphère traitée.

A.III.2.3.b) Changement de repère

Le changement de repère le plus facile à effectuer est celui pour le champ incident car il ne varie pas pour l'ensemble de l'agrégat. Si le centre de chaque sphère est choisi comme l'origine, l'équation pour le champ incident s'écrit :

$$\vec{E}_0(j) = - \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n i \cdot E_{mn} \cdot \left[p_{mn}^{j,j} \vec{N}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + q_{mn}^{j,j} \vec{M}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right] \quad (\text{A.56})$$

Notons que les coefficients de pondération p et q sont indicés par j,j (différent de (A.51)), il indique que ce sont les coefficients de la j -ième sphère dans le j -ième repère.

Maintenant il faut transformer l'onde diffusée par chaque particule (excepté celle considérée j) en un champ incident. Ceci implique la transformation des coefficients de diffusion partielle a_{mn}^j et b_{mn}^j en facteurs incidents. Une relation peut être obtenue en utilisant le théorème d'addition des VSWF d'une sphère dans différents systèmes de coordonnées (Xu 1995). Ceci a été développé par Cruzan (Curzan 1961)

Théorème I :

$$\vec{\mathbf{M}}_{mn}(kr^l, \theta^l, \phi^l) = \sum_{\nu=0}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(A0_{mn\mu\nu} \vec{\mathbf{M}}'_{\mu\nu}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + B0_{mn\mu\nu} \vec{\mathbf{N}}'_{\mu\nu}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right) \quad (\text{A.57})$$

Théorème II :

$$\vec{\mathbf{N}}_{mn}(kr^l, \theta^l, \phi^l) = \sum_{\nu=0}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(A0_{mn\mu\nu} \vec{\mathbf{N}}'_{\mu\nu}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + B0_{mn\mu\nu} \vec{\mathbf{M}}'_{\mu\nu}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right) \quad (\text{A.58})$$

Le prime indique que SVWF est dans un système de coordonnées déplacées. Les facteurs A0 et B0 sont appelés coefficients de vecteur de translation.

En injectant ces égalités dans les équations (A.49) et (A.50) , on obtient une description générale du champ diffusé par la sphère l dans le système de coordonnées de la sphère j.

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{E}}_{sca}(l, j) = & \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \mathbf{i} \cdot \mathbf{E}_{mn} \cdot \left\{ a_{mn}^l \cdot \left[\sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(A0_{mn\mu\nu}^{l,j} \vec{\mathbf{N}}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + B0_{mn\mu\nu}^{l,j} \vec{\mathbf{M}}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right) \right] + \right. \\ & \left. + b_{mn}^l \cdot \left[\sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(B0_{mn\mu\nu}^{l,j} \vec{\mathbf{N}}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + A0_{mn\mu\nu}^{l,j} \vec{\mathbf{M}}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right) \right] \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.59})$$

Cette équation indique uniquement le passage du champ diffus par la sphère l en une partie du champ incident pour la sphère j. Comme le champ incident est caractérisé par les coefficients p et q, on peut écrire l'équation (A.59) sous la forme :

$$\vec{\mathbf{E}}_{sca}(l, j) = - \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \mathbf{i} \cdot \mathbf{E}_{mn} \left[p_{mn}^{l,j} \cdot \vec{\mathbf{N}}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + q_{mn}^{l,j} \cdot \vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right]$$

l'indice l,j indique la transformation des coordonnées liées à la sphère l à celles de la sphère j.

En arrangeant ces équations, on obtient :

$$p_{mn}^{l,j} = -\sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left[a_{\mu\nu}^l \cdot A_{mn\mu\nu}^{l,j} + b_{\mu\nu}^l \cdot B_{mn\mu\nu}^{l,j} \right] \quad (l \neq j) \quad (\text{A.60})$$

$$q_{mn}^{l,j} = -\sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left[a_{\mu\nu}^l \cdot B_{mn\mu\nu}^{l,j} + b_{\mu\nu}^l \cdot A_{mn\mu\nu}^{l,j} \right] \quad (l \neq j) \quad (\text{A.61})$$

Nous rappelons que les coefficients d'expansion pour le champ incident originel sont obtenus avec (A.54) et (A.55)

Les coefficients de vecteur de translation A et B sont calculés à partir de la relation tirée de Curzan (Curzan 1961)

$$A_{mn\mu\nu}^{l,j} = \frac{E_{\mu\nu}}{E_{mn}} \cdot A0_{mn\mu\nu}^{l,j} = i^{\nu-n} \cdot \sqrt{\frac{(2n+1)(n-m)! \nu(\nu+1)(\nu+\mu)!}{n(n+1)(n+m)! (2\nu+1)(\nu-\mu)!}} \cdot A0_{mn\mu\nu}^{l,j} \quad (\text{A.62})$$

Il est obtenu une relation identique pour B, (confère annexe).

Il est maintenant possible de calculer les coefficients partiels incidents pour l'onde incidente ; en considérant que l'onde diffuse et l'onde incidente originelle n'interagissent pas, nous obtenons (par simple superposition) :

$$p_{mn}^j = \sum_{l=1}^{N_j} p_{mn}^{l,j} \cdot q_{mn}^j = \sum_{l=1}^{N_j} q_{mn}^{l,j} \quad (\text{A.63})$$

En substituant les équations (A.60) et (A.61) dans (A.63) , puis en reportant celles-ci dans (A.54) et (A.55), nous obtenons deux expressions pour les coefficients de diffusion partiels :

$$a_{mn}^j = a_n^j \left[p_{mn}^{j,j} - \sum_{l \neq j} \sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(a_{\mu\nu}^l A_{mn\mu\nu}^{lj} + b_{\mu\nu}^l B_{mn\mu\nu}^{lj} \right) \right] \quad (\text{A.64})$$

$$b_{mn}^j = b_n^j \left[q_{mn}^{j,j} - \sum_{l \neq j} \sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(a_{\mu\nu}^l B_{mn\mu\nu}^{lj} + b_{\mu\nu}^l A_{mn\mu\nu}^{lj} \right) \right] \quad (\text{A.65})$$

Une fois ces coefficients calculés (il s'agit de résoudre l'équation matricielle Ax=b), il est possible d'obtenir le champ de diffusion totale pour l'ensemble de l'agrégat. Pour cela il faut

appliquer une dernière fois le théorème de translation de vecteur pour passer du système de coordonnées de chaque sphère l dans le système arbitraire j_0 (de référence):

$$\vec{E}_{sca,total}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n i \cdot E_{mn} \left(a_{mn} \vec{N}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) + b_{mn} \vec{M}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) \right) \quad (A.66)$$

$$a_{mn} = \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{v=1}^{\infty} \sum_{\mu=-v}^v \left(a_{\mu\nu}^l A_{mn\mu\nu}^{l j_0} + b_{\mu\nu}^l B_{mn\mu\nu}^{l j_0} \right) \quad (A.67)$$

$$b_{mn} = \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{v=1}^{\infty} \sum_{\mu=-v}^v \left(a_{\mu\nu}^l B_{mn\mu\nu}^{l j_0} + b_{\mu\nu}^l A_{mn\mu\nu}^{l j_0} \right) \quad (A.68)$$

Les propriétés de diffusion pour l'ensemble de l'agrégat sont maintenant complètement connues. Il est alors possible de calculer, les sections efficaces d'extinction et de diffusion en imaginant une sphère entourant l'ensemble de l'agrégat, ainsi que la matrice de diffusion (Xu 1995).

A.III.2.4 La solution en champ lointain :

Un problème a été mis de côté dans les équations précédentes : en effet, dans les équations (A.49)-(A.67), les sommations sur n et v sont infinies. Ceci fût déjà le cas dans la théorie de Mie, et nous avons mentionné l'utilisation du nombre de Wiscombe N_w (Wiscombe 1980) permettant d'atteindre rapidement la convergence de la série.

La théorie de Mie généralisée (GMM), n'utilise pas d'autres propriétés que celle d'une sphère seule même si celle-ci appartient à un agrégat ; il apparaît donc possible d'utiliser le nombre de Wiscombe pour obtenir une convergence rapide. Ceci ne pose aucun problème lors de la détermination des coefficients de diffusion partiels de chaque sphère ((A.64) et (A.65)) ; mais lors du calcul du champ diffus total (A.67), N doit être largement supérieur à N_w comme il est démontré dans (Xu 1997) ; il faut donc trouver un autre critère d'arrêt.

Xu a trouvé que la convergence n'est pas uniquement fonction de la taille des particules (Xu and Gustafson 1997) mais aussi de la distance de celles-ci au centre de coordonnées d'origine arbitraire. Etablir une relation entre les deux est impossible; de plus, ceci signifierait que le nombre de termes doit être calculé pour chaque configuration d'agrégat.

Heureusement le problème peut être résolu, en imaginant que la diffusion d'un ensemble de sphères n'intéresse pas uniquement les effets à courte distance (diffusion multiple de sphère en sphère) mais l'effet sur la perception de l'ensemble qu'en a un observateur (ex : un détecteur). Or cet observateur est loin en comparaison de la taille de l'agrégat ou de la longueur d'onde, d'où l'idée de trouver une solution en champ lointain.

Dans ce cas, on peut trouver une expression très simple lors de l'expansion avec les coefficients de translation de vecteur. Si on définit le vecteur position \vec{r} du système de coordonnées communes (j_0) et pour le système de coordonnées liées à la sphère l , le vecteur position \vec{r}^l , ces deux vecteurs sont reliés au vecteur distance \vec{d} par :

$$\vec{r}^l = \vec{r} - \vec{d} \quad (\text{A.69})$$

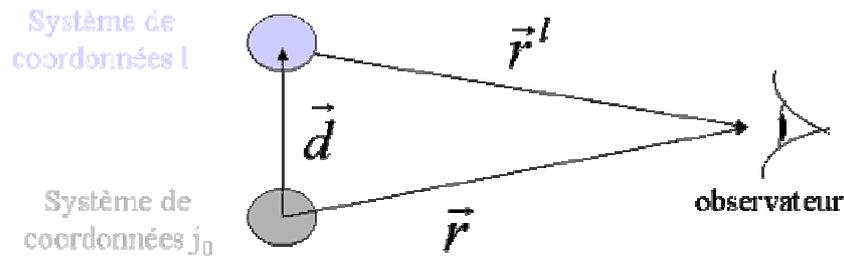


Figure A- III-2: Approximation en champ lointain pour le déplacement du système de coordonnées

Pour un observateur situé loin de l'agrégat, les deux vecteurs positions peuvent être considérés comme parallèles, d'où l'expression pour le vecteur distance :

$$\vec{d}^l \rightarrow \Delta^l = \vec{e}_r \cdot \vec{d}^l = X^l \cdot \sin \theta \cdot \cos \varphi + Y^l \cdot \sin \theta \cdot \sin \varphi + Z^l \cos \theta \quad (\text{A.70})$$

Les notations X^l , Y^l et Z^l sont utilisées pour les coordonnées de la sphère l dans le système commun j_0 de coordonnées. Dans les équations (A.47) et (A.48), deux autres simplifications peuvent être faites. La première est que le terme radial s'annule lorsque r tend vers l'infini. La seconde est qu'il existe une approximation asymptotique des fonctions de Bessel et Hankel. Ainsi nous obtenons pour les SVWF :

$$\vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(3)}(kr^l, \theta^l, \varphi^l) = e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \cdot \vec{\mathbf{M}}_{mn}^{(3)}(kr, \theta, \varphi) \quad (\text{A.71})$$

$$\bar{\mathbf{N}}_{mn}^{(3)}(kr^l, \theta^l, \phi^l) = e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \cdot \bar{\mathbf{N}}_{mn}^{(3)}(kr, \theta, \phi) \quad (\text{A.72})$$

Lorsque ces équations sont comparées aux théorèmes de translation de vecteur, les équations pour les coefficients de translation de vecteur (VTC) qui permettent de passer dans le système de coordonnées arbitraires deviennent :

$$A_{mn\mu\nu}^{j_0} = \delta_{m\mu} \delta_{n\nu} \cdot e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} ; B_{mn\mu\nu}^{j_0} = 0 \quad (\text{A.73})$$

Si ces relations sont introduites dans (A.66) et (A.67), on obtient la formule suivante pour les coefficients de diffusion partiels sans avoir recours au théorème de translation de vecteur :

$$a_{mn} = \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \cdot a_{mn}^l \quad (\text{A.74})$$

$$\bar{\mathbf{E}}_{sca, total}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) = \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n i \cdot E_{mn} \left(a_{mn}^l \bar{\mathbf{N}}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) + b_{mn}^l \bar{\mathbf{M}}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) \right) \quad (\text{A.75})$$

Cela veut dire que le passage d'un système à un autre est caractérisé par un changement de phase qui dépend de la distance entre les deux origines de chaque système. On doit donc garder en mémoire que, maintenant, les coefficients de diffusion totale sont fonctions des angles d'observation.

Dès lors, les équations (A.64) et (A.65) ne dépendent que de la taille de chaque particule primaire ; seule l'utilisation du nombre de Wiscombe nous permet d'atteindre la convergence de la série.

Une autre simplification est possible lorsque la propagation de l'onde incidente se fait suivant la direction positive de l'axe des z, les coefficients d'expansion du champ incident deviennent :

$$p_{mn} = q_{mn} = 0, |m| \neq 1 \quad (\text{A.76})$$

$$p_{1n} = q_{1n} = \frac{\sqrt{2n+1}}{2} e^{-i \cdot \beta_p} \quad (\text{A.77})$$

$$p_{-1n} = -q_{-1n} = -\frac{\sqrt{2n+1}}{2} e^{i\beta_p} \quad (\text{A.78})$$

où β_p la polarisation de l'onde incidente.

Ces équations doivent être transformées dans le système de coordonnées de chaque sphère, or dans le cas d'une propagation suivant z , le terme de phase se réduit seulement à Z^l :

$$p_{mn}^l = e^{ikZ^l} \cdot p_{mn}, q_{mn}^l = e^{ikZ^l} \cdot q_{mn} \quad (\text{A.79})$$

A.III.2.5 Sections efficaces et paramètre d'asymétrie

Avec ces simplifications, les expressions pour la section efficace d'extinction, de diffusion, le paramètre d'asymétrie, la matrice de diffusion, ont été redéfinies par Xu (Xu 1997)

- La section d'extinction pour un agrégat pour une seule orientation caractérise la perte totale d'énergie du faisceau incident:

$$C_{ext} = \sum_{l=1}^{N_l} C_{ext}^l = \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{n=1}^{N_w^l} \sum_{m=-n}^n \text{Re} \left(p_{mn}^{l*} a_{mn}^l + q_{mn}^{l*} b_{mn}^l \right) \quad (\text{A.80})$$

l^* est utilisée pour le complexe conjugué.

- La perte d'énergie par diffusion est caractérisée par une section efficace de diffusion notée :

$$C_{sca} = \text{Re} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \frac{1}{2} \left(E_{\theta,sca} H_{\varphi,sca}^* - E_{\varphi,sca} H_{\theta,sca}^* \right) r^2 \sin \theta \, d\theta \, d\varphi \quad (\text{A.81})$$

Les composantes du champ électrique et magnétique diffusés peuvent être reliées aux composantes parallèles et perpendiculaires de l'onde incidente dans le cas d'une propagation suivant z par :

$$\begin{bmatrix} E_{\parallel,sca} \\ E_{\perp,sca} \end{bmatrix} = \frac{\exp(ik(r-z))}{-ikr} \begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{\parallel,inc} \\ E_{\perp,inc} \end{bmatrix} \quad (\text{A.82})$$

Ces composantes peuvent être calculées à partir de la matrice de diffusion (A.36).

Xu (Xu 1998) a résolu l'intégrale (A.81) pour un agrégat de sphère :

$$C_{sca} = \sum_{l=1}^{N_l} C_{sca}^l = \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{n=1}^{N_w^l} \sum_{m=-n}^n \operatorname{Re} \left(a_{mn}^{l*} a_{mn}^{(l)} + b_{mn}^{l*} b_{mn}^{(l)} \right) \quad (\text{A.83})$$

$$\text{où } a_{mn}^{(l)} = \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{\nu=1}^{N_w^l} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(\tilde{A}_{mn\mu\nu}^{lj} a_{\mu\nu}^j + \tilde{B}_{mn\mu\nu}^{lj} b_{\mu\nu}^j \right) \quad (\text{A.84})$$

Les coefficients de translation de vecteur dans (A.84) sont marqués par un tilde pour les distinguer de ceux exprimés en annexe. Ces coefficients sont utilisés pour transformer les coefficients de diffusion partiels d'une sphère j dans le système de coordonnées d'une sphère l . Cette étape est nécessaire pour calculer l'intégrale. L'unique différence entre les VTC tildés et les VTC déjà calculés est que dans leurs expressions la fonction de Hankel est remplacée par une fonction de Bessel de première espèce (j_n).

- La section efficace d'absorption est la différence entre : la section efficace d'extinction et celle de diffusion, Xu donne également une expression explicite dans (Xu 1997)

$$C_{abs} = C_{ext} - C_{sca} \quad (\text{A.85})$$

- La section efficace de pression de radiation : la lumière transporte une quantité de mouvements ; sa variation, lors de la diffusion, se traduit par une force ou une pression. L'onde incidente échange de la quantité de mouvements avec la particule diffusante, ce qui engendre une force ou une pression de radiation :

$$C_{pr} = C_{ext} - C_{sca} \cdot \langle \cos \theta \rangle \quad (\text{A.86})$$

- $\langle \cos \theta \rangle$ est le paramètre d'asymétrie, il représente la moyenne du cosinus des angles de diffusion ; il traduit la non-uniformité de la diffusion autour de la particule. Lorsque la particule est très petite (domaine de Rayleigh), le paramètre d'asymétrie est proche de zéro car le profil de diffusion est isotrope.

$$\langle \cos \theta \rangle = \frac{4\pi}{k^2 C_{sca}} \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{n=1}^{N_w^l} \sum_{m=-n}^n \operatorname{Re} \left(a_{mn}^{l*} \tilde{a}_{mn}^{(l)} + b_{mn}^{l*} \tilde{b}_{mn}^{(l)} \right) \quad (\text{A.87})$$

où

$$\tilde{a}_{mn}^{(l)} = f_1 b_{mn}^{(l)} + f_2 a_{mn+1}^{(l)} + f_3 a_{mn-1}^{(l)} \quad (\text{A.88})$$

$$\tilde{b}_{mn}^{(l)} = f_1 a_{mn}^{(l)} + f_2 b_{mn+1}^{(l)} + f_3 b_{mn-1}^{(l)} \quad (\text{A.89})$$

avec:

$$f_1 = \frac{m}{n(n+1)} \quad (\text{A.90})$$

$$f_2 = \frac{1}{n+1} \sqrt{\frac{n(n+2)(n-m+1)(n+m+1)}{(2n+1)(2n+3)}} \quad (\text{A.91})$$

$$f_3 = \frac{1}{n} \sqrt{\frac{(n-1)(n+1)(n-m)(n+m)}{(2n-1)(2n+1)}} \quad (\text{A.92})$$

A.III.3. Travaux sur la caractérisation d'un agrégat :

Nous nous servirons, par la suite, des valeurs des sections efficaces obtenues par Auger au cours de ses travaux (Auger, Barrera et al. 2002) et (Auger and Stout 2003) pour valider en partie notre programme. Ainsi une comparaison est faite entre GMM et RCTMA (*Recursive Centered T-matrix Algorithm*) (Auger and Stout 2003). RCTMA comporte un algorithme récursif pour résoudre le système linéaire d'équations comportant comme inconnues les coefficients de diffusion a_{mn}^l tandis que GMM comporte un algorithme itératif. Les deux méthodes sont en accord, ce qui nous permettra d'ajouter ces valeurs à notre panel de vérifications.

J-C Auger et al. ont déjà développé une étude (Auger, Barrera et al. 2002) sur le comportement de la section efficace d'extinction d'un agrégat suivant sa forme (configuration linéaire ou compact) et le nombre de particules primaires le constituant (2,4,8,13) dans le cas d'un indice de 2.8 correspondant au dioxyde de titane TiO_2 . Dans cet article, la section efficace d'extinction moyenne (moyenne sur la polarisation et la direction de l'onde incidente) divisée par le volume de l'agrégat composé de sphères de diamètres identiques est calculée, en fonction de leur rayon (entre 0.04 et 0.132 μm). Il montre qu'il existe deux domaines de taille : pour un rayon de particule primaire inférieur à 0.8 μm -0.9 μm , une particule primaire seule diffuse moins que si elle était contenue dans un agrégat ; tendance qui est inversée dans le second domaine. Il note également qu'il existe deux domaines de taille où

l'influence de la forme varie, à savoir que dans la première, une configuration compacte diffuse plus qu'une configuration linéaire et vice versa. Enfin, une comparaison avec la méthode approchée de sphère équivalente montre la non efficacité de cette dernière.

Auger et al (Auger, Stout et al. 2005) mènent une étude similaire à la nôtre dans le sens où il compare la section efficace de diffusion pour différentes configurations. Leur étude est basée sur la distribution de la section efficace de diffusion, d'agrégats comportant un même nombre de sphères mais générés de façon aléatoire.

Nous élargirons l'étude en B.III.1 à des indices de réfraction optique différents, une plus grande gamme de paramètres de taille des particules primaires, et différentes configurations.

A.III.4. Bilan

Après avoir rappelé la théorie exacte pour une sphère seule et un agrégat avec GMM (définition dans les deux cas des sections efficaces), nous allons nous intéresser dans le prochain chapitre aux approximations possibles dans le cas d'un milieu homogène à savoir une seule particule constituée d'un matériau donné, puis aux outils nous permettant de traiter le cas des milieux hétérogènes (ensemble de particules baignant dans un milieu). La recherche d'approximations est motivée par la nécessité d'une simplification, et d'une réduction des temps de calcul, des sections efficaces.

Chapitre IV Méthodes approchées: milieu homogène

Nous décrivons dans ce chapitre, plusieurs approximations permettant d'obtenir la section efficace de diffusion pour une particule seule ; il faut remarquer qu'elles ont chacune leur domaine de validité.

A.IV.1. Approximation de Rayleigh

Le domaine de validité de l'approximation de Rayleigh est :

$$\alpha = \frac{2\pi x}{\lambda} \ll 1 \quad (\text{A.93}) \quad \text{et} \quad \left| \frac{n_p}{n_m} \right| \alpha \ll 1 \quad (\text{A.94})$$

Avec (A.93) l'ordre de la série (A.42) se réduit à $n=1$, et avec (A.94) $|a_1| \gg |b_1|$ d'où :

$$Q_{sca} = \frac{8}{3} \alpha^4 \left| \frac{m_r^2 - 1}{m_r^2 + 2} \right|^2 \quad Q_{sca} \text{ est l'efficacité de diffusion}$$

et

$$C_{sca} = Q_{sca} G \quad (G = \pi x^2 \text{ pour une sphère et représente l'aire projetée de la particule})$$

Dans le cas, d'une sphère, il est possible d'obtenir le même résultat en assimilant la sphère à un dipôle.

Une comparaison entre cette approximation et la théorie exacte de Mie montre que le domaine de validité en terme de taille maximale varie en fonction de l'indice relatif de réfraction et de l'angle de diffusion (Mishchenko, Travis et al. 2004).

A.IV.2. Approximation de Rayleigh- Debye-Gans (RDG)

Son domaine de validité est :

$$\alpha |m_r - 1| \ll 1 \text{ et } |m_r - 1| \ll 1$$

Il est supposé que chaque élément de volume est un diffuseur de Rayleigh et se comporte indépendamment des autres éléments de volume de la particule. Les ondes diffusées par tous

ces éléments de volume (de rayon a) interfèrent. On réfère les phases de toutes ces ondes diffusantes dans un repère commun afin de pouvoir manipuler leur amplitude.

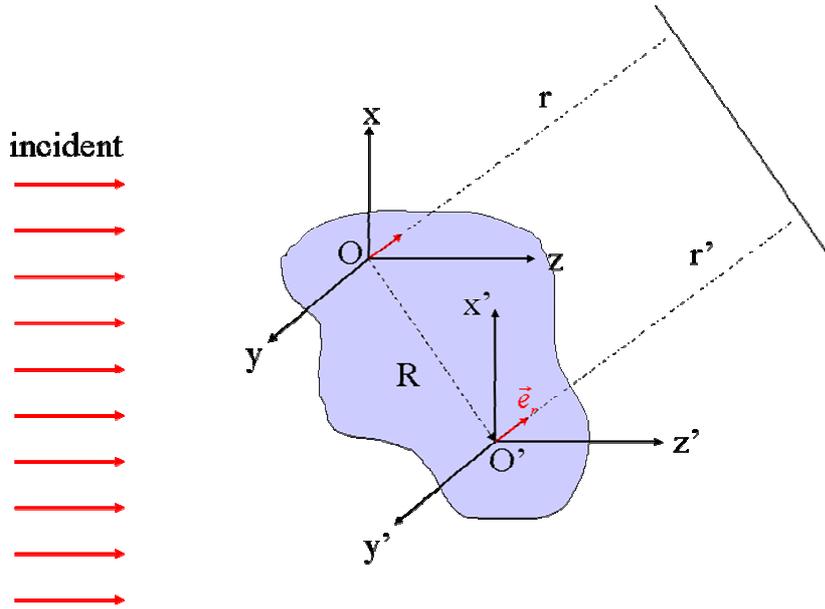


Figure A- IV-1 : Principe de la RDG (Bohren and Huffman 1998)

Avec l'approximation de Rayleigh, et $\frac{m_r^2 - 1}{m_r^2 + 2} \approx \frac{2}{3}(m_r - 1)$ on a :

$$S_1 = \frac{3}{2}a_1 \approx -\frac{ik^3}{2\pi}(m_r - 1) \text{ et } S_2 = \frac{3}{2}a_1 \cos \theta = -\frac{ik^3}{2\pi}(m_r - 1) \cos \theta$$

S_1 et S_2 représentent ici les fonctions d'amplitude par unité de volume.

La Figure A- IV-1 représente une particule de forme quelconque éclairée par une onde plane se propageant suivant z' .

L'expression de la contribution de l'élément de volume ΔV localisé en O au champ diffusé par la particule dans la direction \vec{e}_r est suivant (A.36) :

$$\begin{pmatrix} \Delta E_{\parallel, sca} \\ \Delta E_{\perp, sca} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \cdot \frac{e^{i \cdot k \cdot r - i \cdot k \cdot z}}{-i \cdot k \cdot r} \cdot \Delta V \begin{pmatrix} E_{\parallel, inc} \\ E_{\perp, inc} \end{pmatrix} \quad (\text{A.95})$$

La contribution d'un élément de volume situé en O' sera :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} \Delta E_{\parallel, sca} \\ \Delta E_{\perp, sca} \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \cdot \frac{e^{i \cdot k \cdot (r' - z')}}{-i \cdot k \cdot r'} \cdot \Delta V \begin{pmatrix} E_{\parallel, inc} \\ E_{\perp, inc} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \cdot \frac{e^{i \cdot k \cdot (r - z)}}{-i \cdot k \cdot r} \cdot \Delta V e^{i\delta} \begin{pmatrix} E_{\parallel, inc} \\ E_{\perp, inc} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{A.96})$$

$$\text{avec } \delta = k\vec{R}(\vec{e}_z - \vec{e}_r) \quad (\text{A.97})$$

On intègre (A.96) sur le volume V de la particule, pour obtenir le champ total dans la direction \vec{e}_r

$$\text{Avec } S_1 = -\frac{ik^3}{2\pi}(m-1)Vf \text{ et } S_2 = -\frac{ik^3}{2\pi}(m_r-1)Vf \cos \theta$$

f est le facteur de forme : $f(u) = \frac{3}{u^3}(\sin u - u \cos u)$, $u = 2\alpha \sin \frac{\theta}{2}$ pour une sphère

On peut donc calculer l'intensité I dans le cas de m réel ($I = \langle E_{\parallel, sca} E_{\parallel, sca}^* + E_{\perp, sca} E_{\perp, sca}^* \rangle$) et

sachant que $Q_{sca} = \frac{1}{\alpha^2} \int_0^\pi I \sin \theta d\theta$ dans le cas d'une intensité incidente unitaire et d'une particule sphérique, on aboutit à:

$$Q_{sca} = |m_r - 1|^2 \varphi(\alpha) \quad (\text{A.98})$$

avec

$$\varphi(\alpha) = \frac{4}{9} \alpha^4 \int_0^\pi f^2(2\alpha \sin \frac{\theta}{2})(1 + \cos^2 \theta) \sin \theta d\theta \quad (\text{A.99})$$

A.IV.3. Diffraction Anormale (DA)

Cette approximation porte le nom de diffraction anormale car pour des indices de réfraction faibles, la lumière passant à travers la particule (transmise sans déflexion) interfère avec celle diffractée, produisant une diffraction dite anormale.

Considérons des particules tel que : $\alpha \gg 1$ et $|m_r - 1| \ll 1$ (voir la discussion de G. Videen (Videen and Chylek 1998) et C-L . Liu (Liu 1998) sur ce domaine)

La deuxième condition implique que les rayons soient faiblement déviés lorsqu'ils traversent l'interface particule-milieu et que la réflexion soit négligeable à la même interface, l'extinction est donc due :

- A l'absorption de la lumière passant à travers les particules
- Aux interférences entre la lumière passant au travers de la particule et celle passant autour.

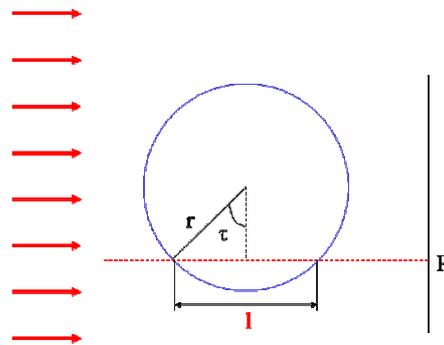


Figure A- IV-2: Rayon passant à travers une sphère (Hulst 1981)

La différence de phase entre un rayon passant par la sphère et un rayon passant à côté :

$$k_0(m_r - 1)l = k_0(m_r - 1)2r \sin \tau$$

On pose : $\rho = 2\alpha(m_r - 1)$

$$Q_{ext} = \frac{4}{\alpha^2} \Re \{S(0)\} \text{ (A.100) avec } S(0) = \frac{k^2}{2\pi} \iint (1 - e^{-i\rho \sin \tau}) dx dy \text{ (Hulst 1981)}$$

L'intégrand représente la soustraction à « la partie d'ombre » (1), les rayons passant à travers la sphère ($e^{-i\rho \sin \tau}$) ; dans le cas d'un corps opaque sphérique $S(0) = \frac{k^2}{2\pi} G$

$$\text{Si } m \text{ est réel } Q_{sca} = Q_{ext} = 2 - \frac{4}{\rho} \sin \rho + \frac{4}{\rho^2} (1 - \cos \rho) \quad \text{(A.101)}$$

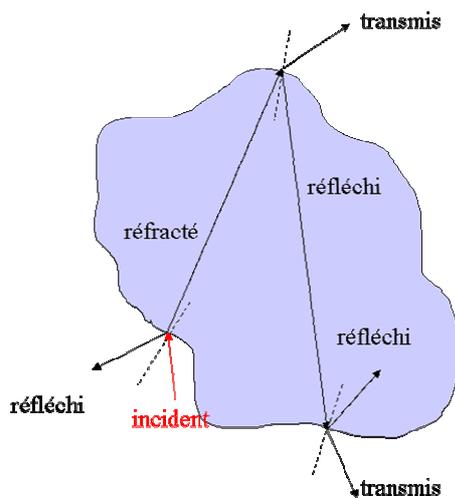
La diffraction anormale a été appliquée à une sphère et un cylindre circulaire infiniment long (Hulst 1981), un prisme colonne (Chylek and Klett 1991), un cristal de glace hexagonal (Sun

and Fu 1999), des ellipsoïdes (G. J. Streekstra, A. G. Hoekstra et al. 1994), un cylindre fini (Liu, Arnott et al. 1998), et différentes formes ((Sun and Fu 2001), (Yang, Zhang et al. 2004)).

Une comparaison entre DA et la théorie exacte (Liu et al, 1998) suggère que DA estime l'extinction plus justement dans le cas d'une orientation aléatoire de particules non sphériques que pour des sphères.

A.IV.4. Approximation des rayons optiques

L'approximation des rayons optiques est utilisable pour n'importe quelle forme ou orientation de particule, sous réserve que celle-ci ait une dimension supérieure à la longueur d'onde. Une onde plane est alors modélisée par un paquet de rayons parallèles.



Un rayon incident va donc être d'une part réfléchi et d'autre part réfracté ; ce dernier rayon étant à l'intérieur de la particule va être à son tour réfléchi ou transmis à l'extérieur et ainsi de suite jusqu'à ce que le rayon interne ait une intensité très faible. On a le même procédé pour tous les rayons du faisceau.

$C_{sca} = \frac{W_s}{I_s}$ avec W_s l'énergie diffusée qui est la somme de l'énergie diffractée, réfléchie et transmise ($W_s = W_{diff} + W_{refl} + W_{tr}$).

A.IV.5. Bilan

Le diagramme ci-dessous modélise le domaine de validité de chaque approximation en fonction du paramètre de taille α et de l'indice optique relatif du matériau au milieu : m_r .

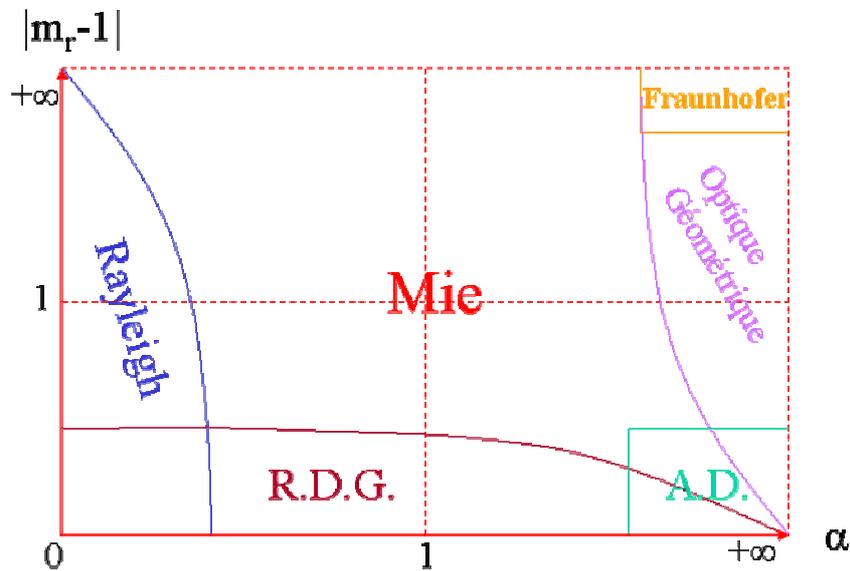


Figure A- IV-3: Domaine de validité des méthodes d'approximation pour une sphère

Les méthodes précédentes ont été appliquées avec succès à des sphères et des objets convexes de géométrie simple constitués de matériau homogène. Nous allons maintenant examiner comment modéliser la diffusion de la lumière par des objets hétérogènes, un agrégat dans un fluide en étant un cas particulier.

Chapitre V Méthodes approchées : milieu hétérogène

Imaginons que nous voulions représenter un agrégat par une sphère l'entourant complètement (approximation que nous verrons en B.IV.2.2) étant donné qu'il est plus aisé d'obtenir les sections efficaces d'une sphère que d'un agrégat.

Quel est l'indice optique de cette sphère fictive ? Est-ce :

- L'indice des particules qui composent l'agrégat ?
- L'indice du milieu ?

Nous verrons donc dans un premier temps la notion d'indice effectif. Puis nous nous interrogerons sur la fraction volumique en solide (dans la sphère ou le sphéroïde) puisque celle-ci est un paramètre de l'indice effectif.

A.V.1. Milieu effectif

A.V.1.1 Mélange composite :

La majeure partie des matériaux composites sont des mélanges comportant, au moins deux phases : une phase hôte et une inclusion. Cette inclusion est dispersée soit de manière aléatoire, soit texturée dans le milieu hôte. De tels composites ont des propriétés diélectriques effectives dues au fait que les phases des constituants ont des caractéristiques électromagnétiques différentes (Priou TI,AF3371).

Pour des inclusions dont la taille est faible par rapport à la longueur d'onde, le composite (inclusion+milieu hôte) est représenté par un matériau fictif homogène caractérisé par un indice effectif (celui du « mélange »).

Dans la majorité des modèles, les hypothèses suivantes doivent être respectées :

- la taille des inclusions est faible par rapport à la longueur d'onde, ainsi l'interaction entre les inclusions et le champ électromagnétique est décrite par le seul terme représentant un dipôle électrique,

- les interactions entre inclusions sont faibles et donc négligeables,

Ainsi, ces méthodes fonctionnent relativement bien dans le domaine de Rayleigh, une fraction volumique d'inclusion faible et lorsque les constantes optiques des inclusions et du milieu hôte sont peu différentes. Toutefois, une réserve doit être émise quant à ces hypothèses car un grand nombre de publications essaient de déterminer leurs domaines d'application sans réellement aboutir à un consensus.

L. Kolokolova et B. A.S. Gustafson (Kolokolova and Gustafson 2001), comparent différentes méthodes classiques (Maxwell-Garnett, Bruggeman, Looyenga entre autres) à la mesure. Ils aboutissent au fait que ces méthodes sont correctes pour $\alpha < 0.1$ et une fraction volumique inférieure à 10% et démontrent également que la dépendance angulaire de l'intensité diffusée n'est pas toujours conforme à l'expérience notamment pour des angles de mesures en diffusion arrière et entre [30-70°].

Nous nous proposons d'examiner les différentes méthodes permettant d'évaluer un indice effectif.

A.V.1.2 Maxwell Garnett

Dans la théorie de MG toutes les inclusions sont modélisées par des sphères (*Figure A- V-1*) et sont ramenées à une inclusion unique. Les inclusions sont donc sans interaction (Berthier 1993).

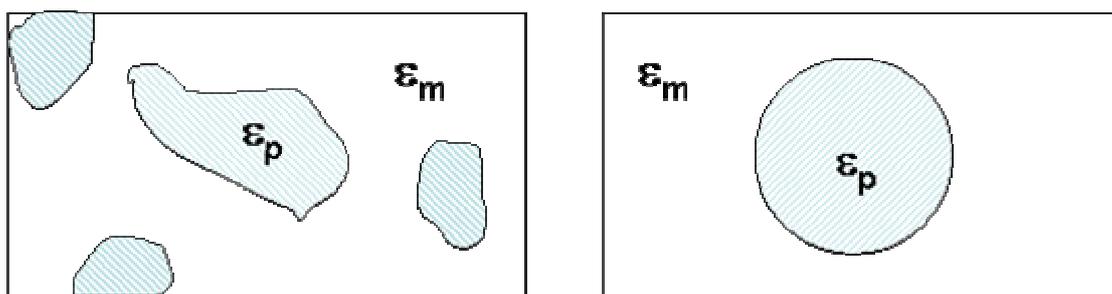


Figure A- V-1: Cellule unité représentative du milieu modélisé par la théorie de MG.

La fonction diélectrique moyenne du volume considéré (ϵ_{eff}) constitué d'inclusions de fonction diélectrique ϵ_p qui baignent dans un diélectrique de constante ϵ_m est déterminée par la théorie de Maxwell Garnett (1904).

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_m \frac{\varepsilon_p(1+2f) + 2\varepsilon_m(1-f)}{\varepsilon_p(1-f) + \varepsilon_m(2+f)} \quad (\text{A.102})$$

avec $\lim_{f \rightarrow 1} \varepsilon_{eff} = \varepsilon_p$ et $\lim_{f \rightarrow 0} \varepsilon_{eff} = \varepsilon_m$

Où f est la fraction volumique occupée par les inclusions.

Les limites de validité de cette théorie communément admises sont:

- La taille des inclusions doit être petite par rapport à la longueur d'onde
- Le fait de négliger les ordres multipolaires d'ordre supérieur ou égal à deux, suppose que les inclusions doivent être éloignées les unes des autres et de petite taille.

La méthode du milieu effectif de Maxwell-Garnett a été testée pour un agrégat constitué de quatre particules (tétraèdre) et ne s'avère pas applicable à de grosses particules (Quinten, Friehmelt et al. 2000). Ceci nous laisse donc espérer que cette technique est applicable à un agrégat constitué de particules primaires de faible taille.

Un article de P. Mallet et al (Mallet, Guérin et al. 2005), où de petites inclusions sont considérées (diamètre $< \lambda$), montre que, si le phénomène de diffusion multiple est non négligeable, l'indice effectif dépend essentiellement de la distribution en taille, en position des inclusions sauf si leur distribution est aléatoire.

Une méthode similaire, intitulée « extension de l'approximation d'indice effectif (EEMA) » nécessite les paramètres de Mie (a_n et b_n). Nous nous sommes intéressés essentiellement à des expressions simples de l'indice effectif, dans ce contexte, voici celles qui ont retenu notre attention.

A.V.1.3 Bruggeman

Il existe d'autres types de formulation, que celle de Maxwell-Garnett. Nous présentons celle de Bruggeman.

Les particules sont supposées encastrées dans un milieu effectif de permittivité égale à la permittivité du mélange ε_{eff} . Les particules sont sans interaction. On a ainsi deux types de particules, les premières ont une permittivité ε_p et les deuxièmes ε_m .

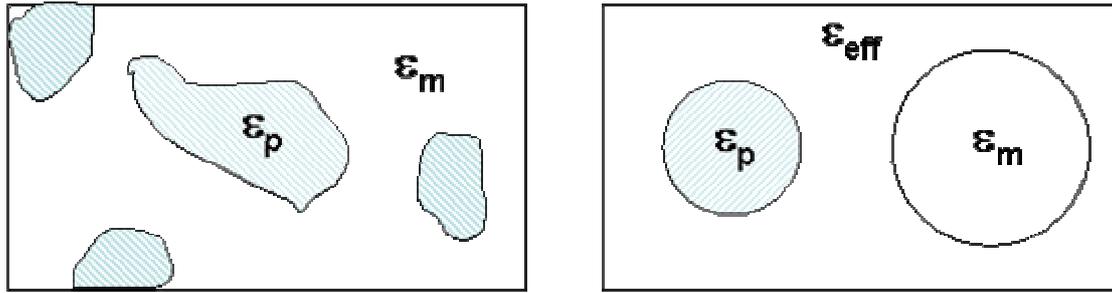


Figure A- V-2: Cellule unité représentative du milieu modélisé par la théorie de Bruggman

Les particules sont supposées sphériques. Cette théorie est intéressante lorsque les inclusions et le milieu hôte sont peu discernables (Berthier 1993).

Avec les mêmes notations :

$$f \frac{\epsilon_p - \epsilon_{eff}}{\epsilon_p + 2\epsilon_{eff}} + (1 - f) \frac{\epsilon_m - \epsilon_{eff}}{\epsilon_m + 2\epsilon_{eff}} = 0 \quad (\text{A.103})$$

A.V.1.4 Looyenga

Une autre équation simple a été développée par Looyenga (Looyenga 1965). Un mélange de deux constituants dont les permittivités sont telles que $\epsilon_p = \epsilon_{eff} - \Delta\epsilon_{eff}$ et $\epsilon_m = \epsilon_{eff} + \Delta\epsilon_{eff}$ (et vice et versa), définissent la permittivité effective par :

$$\epsilon_{eff}^{1/3} = f \epsilon_p^{1/3} + (1 - f) \epsilon_m^{1/3} \quad (\text{A.104})$$

A.V.1.5 Lichtenecker

Dans la loi logarithmique de Lichtenecker (Goncharenko, Lozovski et al. 2000), la forme géométrique des inclusions ne joue pas un rôle important dans la détermination du comportement diélectrique du mélange. Cette particularité nous a particulièrement intéressé, car elle permet de considérer des agrégats de particules non sphériques.

$$\ln(\epsilon_{eff}) = f \ln(\epsilon_p) + (1 - f) \ln(\epsilon_m) \quad (\text{A.105})$$

L'indice effectif est fonction de la fraction volumique quelque soit la méthode utilisée.

A.V.2. Relation entre la diffusion multiple et la fraction volumique

Si le rapport de la distance inter-particule au rayon d'une particule est grand (la fraction volumique est donc faible), la diffusion multiple peut être négligée. Est-il possible d'évaluer la fraction volumique en deçà de laquelle la diffusion multiple est négligeable?

Des tests ont été faits pour un indice relatif de 1.2 par Quirantes et al (Quirantes, Arroyo et al. 2001). La méthode consiste à déterminer la distance, à partir de laquelle la diffusion multiple n'a pas lieu, en comparant pour deux sphères, le rapport entre la section efficace de diffusion exacte et le double de celle d'une sphère seule. Il est montré que ces conditions sont réalisées dans le domaine de Rayleigh pour une distance inter particule $d_1/r \gg 20$, c'est-à-dire une faible

fraction volumique Φ ($\Phi = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{r}{d_1} \right)^3$). Leur étude est en accord avec d'autres valeurs

($m=1.5-0.005i$) calculées par Mishchenko (Mishchenko, Mackowski et al. 1995), où il est montré que la distance doit être 4 fois supérieure au rayon pour qu'il n'y ait pas d'interaction pour un paramètre de taille compris entre 2.5 et 20. Ainsi, leur analyse les conduit à penser que l'effet dominant est l'interaction en champ proche, et que, pour des particules primaires assez grosses (pour lesquelles la diffusion est essentiellement en avant), la moyenne sur l'ensemble des orientations minimise cet effet, ce qui n'est pas le cas pour les plus petites qui ont une diffusion isotrope. Ces résultats sont donc à comparer avec précaution avec des mesures expérimentales, suivant la direction de détection envisagée.

A.V.3. Bilan

Nous reviendrons sur l'effet de la distance inter-particule (B.IV.1.2). Précisons que, dans cette thèse, nous avons également utilisé la notion de fraction volumique, celle-ci étant définie comme la fraction de volume de particule vis-à-vis du volume d'une cellule unité (A.V.1).

Nous avons vu dans ce chapitre la notion d'indice effectif qui permet de déterminer l'indice optique d'un objet équivalent à un groupe de particules primaires. Cette notion d'indice effectif sera utilisée dans la Partie B.Chapitre IV. Si la géométrie de cet objet équivalent est simple, il sera plus aisé d'obtenir les sections efficaces de l'objet que celles d'un agrégat. Néanmoins une question persiste : comment déterminer les dimensions d'un tel objet équivalent ? Nous essayerons de répondre à cette question tout au long de la partie B et plus particulièrement dans les chapitres I et VI.

Bilan de la partie A

Dans cette première partie nous avons présenté toutes les notions phénoménologiques et physiques nécessaires pour traiter le sujet de ce mémoire en suivant la démarche suivante.

Partant du constat que les appareils de mesure granulométrique perçoivent une différence de signal entre une particule primaire et un agrégat, mais ne peuvent utiliser ces mesures pour caractériser ce dernier, il est apparu nécessaire d'essayer de mettre en place une méthode de calcul permettant d'exploiter cette différence de signal entre une particule primaire et un agrégat.

Afin de répondre au sujet, nous avons d'abord rappelé la théorie de Mie permettant de définir les grandeurs (section efficace, paramètre d'asymétrie) caractérisant optiquement une sphère. Par la suite, nous nous sommes intéressés à la façon d'obtenir ces mêmes grandeurs dans le cas d'un agrégat, ce qui nous a conduit à l'extension de la théorie de Mie pour un agrégat, théorie dite exacte et intitulée : GMM.

Enfin, des approximations de la théorie de Mie valables dans le cas d'un milieu homogène (à savoir une seule particule constituée d'un matériau donné) ont été exposées, afin de simplifier le mode de calcul des sections efficaces, et de séparer et comprendre les différents phénomènes physiques pris en considération dans la théorie exacte. Le domaine de validité de chaque approximation en fonction du paramètre de taille α et de l'indice optique relatif du matériau au milieu m_r a été clairement défini.

Finalement, nous nous sommes interrogés s'il était possible de représenter un agrégat par un objet équivalent simple. Avant de définir les dimensions de cet objet équivalent, nous avons examiné la détermination de l'indice optique effectif de ce dernier

Ainsi dans la prochaine partie, nous tacherons tout d'abord de caractériser optiquement un agrégat avec la méthode exacte. Puis nous mettrons en place des méthodes approchées que nous testerons partant des résultats de l'étude précédente.

Partie B. Expériences numériques

Cette partie est découpée en six chapitres. Nous commencerons cette étude par une description géométrique des agrégats. Par la suite, nous expliciterons le cadre de l'étude. Puis nous examinerons les résultats obtenus avec la méthode exacte qui servira de référence aux différentes méthodes approchées décrites au chapitre suivant. Ensuite, dans un chapitre leur étant consacrées, nous présenterons leurs performances et comparerons ces méthodes approchées. Enfin, nous tâcherons dans un dernier chapitre d'améliorer une de ces méthodes approchées pour étendre son domaine de validité.

Chapitre I : Description géométrique des agrégats en 3D

La description géométrique d'un agrégat peut-être envisagée suivant différentes approches. La première approche est celle où la position de chaque particule primaire constituant l'agrégat est connue par l'intermédiaire des coordonnées cartésiennes de ces dernières dans un système de coordonnées choisi arbitrairement (seule leur position relative, les unes par rapport aux autres, a une importance). Les autres méthodes associent à l'agrégat une forme géométrique globale simple que l'on dénomme sous le terme d'objet équivalent. Les méthodes décrites ci-dessous seront les plus pertinentes pour proposer des approximations des propriétés optiques.

B.I.1. Liste des coordonnées cartésiennes

Un agrégat est un groupe de sphères dites primaires collées ensemble par simple contact ponctuel, sans interpénétration.

Nous avons choisi dans un premier temps de construire des agrégats dits réguliers, dans le but de voir l'influence de la forme et du nombre de particules primaires identiques (taille et nature du matériau) sur les propriétés optiques de ceux-ci. De tels arrangements ne répondent pas complètement au comportement d'agrégation parfois trouvé en solution telle que ceux modélisés dans la littérature à partir des mécanismes :BPCA (*Ballistic Particle-Cluster Aggregate*) ou BCCA (*Ballistic Cluster-Cluster Aggregate*). Dans le premier cas (BPCA), une particule est ajoutée aléatoirement à l'agrégat en construction alors que dans le second, un groupe de particules primaires formant déjà un agrégat est adjoint à un autre. Nous testerons ce type d'agrégat sur le modèle approché retenu.

Le tableau ci-contre rassemble les différentes configurations testées dans les prochains chapitres de cette thèse.

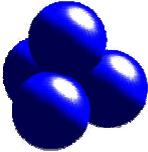
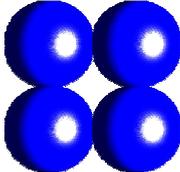
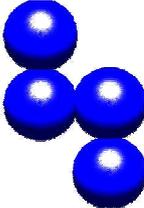
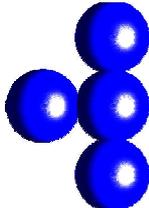
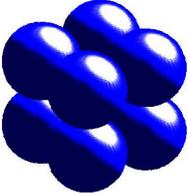
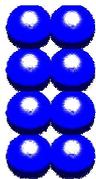
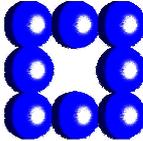
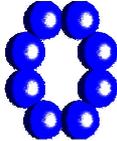
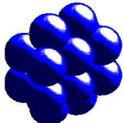
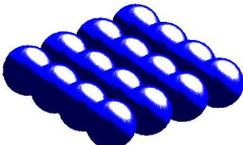
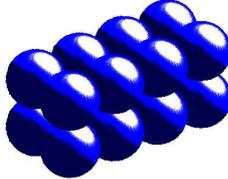
4 sphères				
				
compacte	chaîne	plan	P1	P2
8 sphères				
				
compacte	chaîne	plan	P82	P83
16 sphères				
	idem			
compacte	chaîne	plan	cube	
64 sphères				
	chaîne	plan (8*8)	cube (4*4*4)	
100 sphères				
	chaîne	Plan (10*10)	cube (5*5*4)	

Tableau B- I-1: Configuration des agrégats

Il est donc possible de décrire un agrégat à partir des coordonnées cartésiennes de chaque particule primaire le constituant. On peut également le décrire en essayant d'approcher sa forme générale par une géométrie simple que l'on dénomme sous le terme d'objet équivalent.

B.I.2. Objet équivalent

B.I.2.1 Choix d'un objet équivalent

Un objet équivalent peut être défini suivant :

- un volume, c'est-à-dire, en connaissant le volume des particules primaires (sphériques) constituant l'agrégat, un objet ayant un volume équivalent à l'ensemble.
- une forme respectant grossièrement la disposition des particules primaires.

Les objets équivalents à ceux définis suivant les positions des particules primaires sont décrits dans les paragraphes suivants.

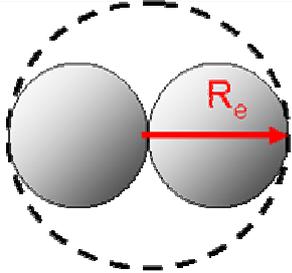
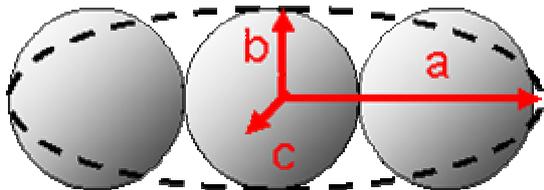
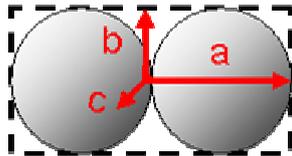
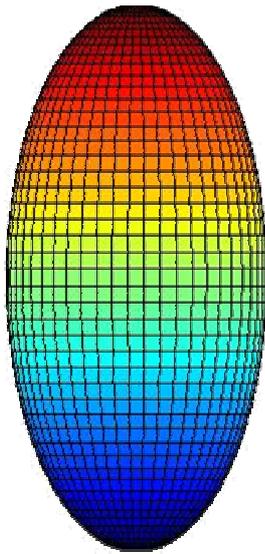
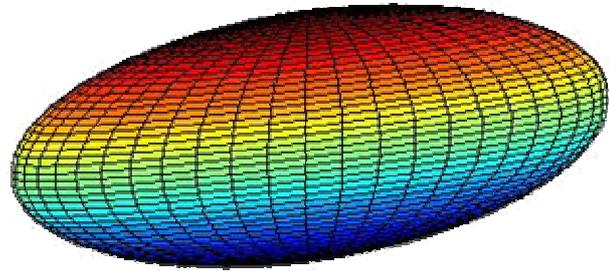
 <p style="text-align: center;">Sphère équivalente</p>	 <p style="text-align: center;">Sphéroïde équivalent</p>	 <p style="text-align: center;">Parallélépipède équivalent</p>
<p>Le diamètre de la sphère équivalente $2R_e$ est déterminé comme étant égal à la plus grande dimension de l'agrégat.</p>	<p>Les dimensions du sphéroïde équivalent (notées a et b) sont déterminées respectivement comme étant égales à la plus grande dimension de l'agrégat (a) et la plus grande dimension (b) obtenue après projection de l'agrégat sur le plan perpendiculaire à la droite portant \vec{a}. (c) est la plus grande dimension de l'agrégat projeté sur un plan perpendiculaire à la droite contenant le vecteur \vec{b}.</p> <p>Si c est plus proche de b, que b ne l'est de a : le sphéroïde est oblong (forme d'un ballon de rugby voir Figure B- I-2)</p> <p>Si b est plus proche de a que de c : le sphéroïde est aplati (forme d'un disque, voir Figure B- I-3)</p> <p>Remarque : si $a=b=c$, nous obtenons une sphère</p>	<p>(a) est défini comme la plus grande dimension, (b) est déterminé comme étant la plus grande dimension de l'agrégat après projection de ce dernier sur un plan perpendiculaire à la droite portant (\vec{a}), enfin (c) est lui aussi la plus grande dimension de l'agrégat projeté sur un plan perpendiculaire à la droite contenant le vecteur \vec{b}</p>

Figure B- I-1: Objets équivalents



*Figure B- I-2 : Sphéroïde du type oblong
(en anglais : prolate)*



*Figure B- I-3 : Sphéroïde du type aplati (en
anglais : oblate)*

Les sphéroïdes sont des ellipsoïdes tels que $b=c$. Les premiers ont été retenus comme objets équivalents, car on disposait (et pour eux seuls) des moyens de calculs des propriétés optiques.

Le contenu en quantité de matière de l'objet équivalent est obtenu à partir du nombre N de particules primaires de volume V_i constituant l'agrégat. Cette quantité de matière est indépendante de l'objet équivalent. La fraction volumique Φ , fonction du volume V_e de l'objet équivalent, est définie comme suit :

$$\Phi = \frac{NV_i}{V_e}$$

Les distributions des surfaces projetées et des cordes sont caractéristiques de la morphologie d'un objet. Dans la prochaine partie, nous allons les déterminer analytiquement pour le cas d'un sphéroïde.

B.I.2.2 Distributions des surfaces projetées et des cordes pour un sphéroïde

On cherche la distribution des surfaces projetées et des cordes. Le calcul procède de la même méthodologie.

B.I.2.2.a) Intersection ellipsoïde/droite

On considère un ellipsoïde oblong ou aplati, dont l'un des axes est confondu avec l'axe des x et de centre confondu avec l'origine :

$$x^2/a^2 + y^2/b^2 + z^2/b^2 = 1 \quad (\text{B.1})$$

On examine la projection de l'ellipsoïde sur un plan quelconque. Cela revient à examiner la projection de l'ellipsoïde incliné (demi-axe a faisant un angle xOy noté $-\alpha$, angle $xOz=0$) sur le plan (x,z) . Cette rotation conduit à l'équation :

$$(x \cos \alpha - y \sin \alpha)^2/a^2 + (x \sin \alpha + y \cos \alpha)^2/b^2 + z^2/b^2 = 1 \quad (\text{B.2})$$

Considérons l'intersection entre cet ellipsoïde et une droite parallèle à l'axe des y, et donc d'équation :

$$x = x_0 \quad z = z_0 \quad (\text{B.3})$$

Cette intersection est telle que :

$$y^2 (\sin^2 \alpha/a^2 + \cos^2 \alpha/b^2) + 2y(b^{-2} - a^{-2})x_0 \sin \alpha \cos \alpha + z_0^2/b^2 + x_0^2 (\cos^2 \alpha/a^2 + \sin^2 \alpha/b^2) - 1 = 0 \quad (\text{B.4})$$

Ce trinôme a un nombre de racines qui caractérise une situation géométrique :

- 0 racine, pas d'intersection
- 1 racine (double), un seul point d'intersection qui définit la limite de la projection
- 2 racines (y^+ , y^-), 2 points d'intersection, la différence $l = y^+ - y^-$ est la longueur de corde.

Le trinôme a pour discriminant réduit :

$$\Delta' = -abx_0^2 - (\sin^2 \alpha/a^2 + \cos^2 \alpha/b^2)/b^2 z_0^2 + (\sin^2 \alpha/a^2 + \cos^2 \alpha/b^2) \quad (\text{B.5})$$

On notera : $A = ab$, $C = \sin^2 \alpha/a^2 + \cos^2 \alpha/b^2$, $B = b/C^{1/2}$

d'où : $\Delta' = -x_0^2/A^2 - z_0^2/B^2 + C$

B.I.2.2.b) Distribution des surfaces projetées

Elle est obtenue à partir de la racine double. Celle-ci vérifie :

$$\Delta' = 0$$

L'intersection est donc une ellipse. La surface projetée est l'aire de cette ellipse :

$$S_p(\alpha) = \pi ABC = \pi ab^2 \left(b^{-2} + (a^{-2} - b^{-2})x^2 \right)^{1/2} \quad (\text{B.6})$$

Avec $x = \sin \alpha$

La surface projetée dépend de α . Une variation de l'angle solide $d\Omega = 2\pi \sin \beta d\beta$ (avec $\beta = \pi/2 - \alpha$) correspond à une variation de surface projetée dS_p . La surface projetée moyenne est donc :

$$\langle S_p \rangle = (1/2\pi) \int_{(2\pi)} S_p(\alpha) d\Omega = \int_0^{\pi/2} S_p(\alpha) \cos \alpha d\alpha$$

On en déduit:

$$\left. \begin{array}{l} b > a \quad \langle S_p \rangle = \pi ab U^{-1} \int_0^U (1 + X^2)^{1/2} dX \\ \text{avec } U = \left((b^2/a^2) - 1 \right)^{1/2} \end{array} \right\} \text{d'où } \boxed{\langle S_p \rangle = (\pi/2) ab (b/a + U^{-1} \ln(b/a + U))} \quad (\text{B.7})$$

$$\left. \begin{array}{l} b < a \quad \langle S_p \rangle = \pi ab V^{-1} \int_0^V (1 - X^2)^{1/2} dX \\ \text{avec } V = \left(1 - (b^2/a^2) \right)^{1/2} \end{array} \right\} \text{d'où } \boxed{\langle S_p \rangle = (\pi/2) ab (b/a + V^{-1} \arcsin(V))} \quad (\text{B.8})$$

La densité de surface projetée est proportionnelle à $d\Omega / dS_p$: $D(S_p) = d\Omega / (4\pi dS_p)$.

$$\text{avec } \int_{S_{\min}}^{S_{\max}} D(S_p) dS_p = \int_0^{(4\pi)} d\Omega / 4\pi = 1$$

Finalement :

$$D(S_p) = (\cos \alpha) / 2 d\alpha / dS_p \quad (\text{B.9})$$

On en déduit :

$$\boxed{b > a \quad D(S_p) = 1 / (2(\pi ab)^2) U^{-1} \frac{S_p}{\sqrt{(S_p / \pi ab)^2 - 1}}} \quad (\text{B.10})$$

$$\boxed{b < a \quad D(S_p) = 1 / (2(\pi ab)^2) V^{-1} \frac{S_p}{\sqrt{1 - (S_p / \pi ab)^2}}} \quad (\text{B.11})$$

Avec $U = ((b^2 / a^2) - 1)^{1/2}$ et $V = (1 - (b^2 / a^2))^{1/2}$

B.I.2.2.c) Distribution de cordes

On considère une orientation donnée α . Pour cette orientation, on a une distribution de cordes. La longueur de corde est obtenue à partir des 2 racines du trinôme en y ((B.4)).

$$l = 2\sqrt{\Delta'} / (\sin^2 \alpha / a^2 + \cos^2 \alpha / b^2)$$

Le lieu des points à l constante est donc $\Delta' = (l(\sin^2 \alpha / a^2 + \cos^2 \alpha / b^2) / 2)^2$

Il s'agit d'une ellipse de surface S_c . En utilisant l'équation (B.5), on obtient :

$$S_c = \pi ABC (1 - Cl^2 / 4) \quad (\text{B.12})$$

Le rapport entre S_c et la surface projetée S_p représente la fraction de cordes dont la longueur est supérieure à l .

$$S_c / S_p = (1 - Cl^2 / 4) \quad (\text{B.13})$$

La densité de longueur de corde (à α donné) est donc :

$$D(l, \alpha) = |dS_c / S_p / dl| = Cl / 2 \quad (\text{B.14})$$

$$\text{avec } \int_0^{2/\sqrt{C}} D(l) dl = 1$$

On en déduit la densité de longueur de corde (moyennée sur α) $D(l)$:

On suppose par la suite $a < b$; C est donc une fonction croissante de α .

La probabilité P que la longueur de corde (notée x) soit supérieure à une valeur donnée (notée l) est égale à :

$$P(x > l) = \frac{\sum_{i=1}^N S_c(x > l, \alpha_i) \Delta\Omega}{\sum_{i=1}^M S_p(\alpha_i) \Delta\Omega} = \frac{\sum_{i=1}^N S_c(x > l, \alpha_i) \cos \alpha_i \Delta\alpha}{\sum_{i=1}^M S_p(\alpha_i) \cos \alpha_i \Delta\alpha} \quad (\text{B.15})$$

l'intervalle $\alpha [0, \pi/2]$ est découpé en segments de longueur $\Delta\alpha$. $i = 1$ correspond à l'angle le plus petit, c'est-à-dire $\alpha = 0$. $i = M$ correspond à l'angle le plus grand, c'est-à-dire $\alpha = \pi/2$. $i = N$ correspond à l'angle α_N tel que $S_c(l, \alpha_N) = 0$ ou $C(\alpha_N) = 4/l^2$.

La formulation continue de l'équation (B.15) s'écrit :

$$P(x > l) = \frac{\int_0^{\alpha_N(l)} S_c(x > l, \alpha) \cos \alpha d\alpha}{\int_0^{\pi/2} S_p(\alpha) \cos \alpha d\alpha} \quad (\text{B.16})$$

On en déduit $D(l)$ qui est la dérivée de $P(x > l)$ par rapport à l :

$$D(l) = \frac{l \int_0^{\alpha_N(l)} S_p(\alpha) C \cos \alpha d\alpha}{2 \int_0^{\pi/2} S_p(\alpha) \cos \alpha d\alpha} \quad (\text{B.17})$$

Si $a > b$, il suffit de changer dans le numérateur de (B.16) et (B.17) la borne inférieure de l'intégrale. Elle était égale à 0, elle est remplacée par $\pi/2$.

On en déduit (avec $x_N = \sin \alpha_N$) :

- **Si a < b** $D(l) = (\pi a) / (2b < S_p >) l \int_0^{x_N} (1 + U^2 x^2)^{3/2} dx$ D'où :

- si $l > 2a$

$$D(l) = (\pi a) / (16b < S_p > U) l \left[\begin{aligned} & \left((2b/l)^2 - 1 \right)^{1/2} 2b/l (3 + 8b^2/l^2) \\ & + 4 \ln \left(2b/l + \left((2b/l)^2 - 1 \right)^{1/2} \right) + \ln \left(2b/l - \left((2b/l)^2 - 1 \right)^{1/2} \right) \end{aligned} \right] \quad (\text{B.18})$$

- si $l < 2a$

$$D(l) = (\pi a) / (16b < S_p > U) l \left[U(U^2 + 1)^{1/2} (5 + 2U^2) + 4 \ln(U + (U^2 + 1)^{1/2}) + \ln((U^2 + 1)^{1/2} - U) \right] \quad (\text{B.19})$$

- **Si a > b** $D(l) = (\pi a) / (2b < S_p >) l \int_{x_N}^1 (1 - V^2 x^2)^{3/2} dx$ D'où :

-si $l > 2b$

$$D(l) = (\pi a) / (16b < S_p > V) l \left[\begin{aligned} & \left(1 - (2b/l)^2 \right)^{1/2} 2b/l (3 + 8b^2/l^2) + 3 \arcsin \left(1 - (2b/l)^2 \right)^{1/2} \\ & - (3 + 2b^2/a^2) (1 - b^2/a^2)^{1/2} b/a - 3 \arcsin \left(1 - b^2/a^2 \right)^{1/2} \end{aligned} \right] \quad (\text{B.20})$$

- si $l < 2b$

$$D(l) = (\pi a) / (16b < S_p > V) l \left[(3 + 2b^2/a^2) (1 - b^2/a^2)^{1/2} b/a + 3 \arcsin(1 - b^2/a^2)^{1/2} \right] \quad (\text{B.21})$$

Nous disposons donc de la distribution des cordes et des surfaces projetées de façon analytique pour un sphéroïde. Dans un premier temps nous vérifierons l'accord entre les distributions obtenues analytiquement et celles issues des simulations pour des sphéroïdes, avant d'étudier les distributions des cordes et des surfaces projetées des agrégats, obtenues par simulation (les distributions analytiques n'étant pas accessibles).

B.I.3. Surface projetée : S_p

Pour définir un objet équivalent propre à chaque agrégat, il peut être envisagé d'utiliser la surface projetée moyenne de ce dernier. La surface projetée moyenne est obtenue en moyennant les différentes surfaces projetées obtenues pour différents plans de projection.

B.I.3.1 Algorithme pour obtenir la surface projetée moyenne et $D(S_p)$

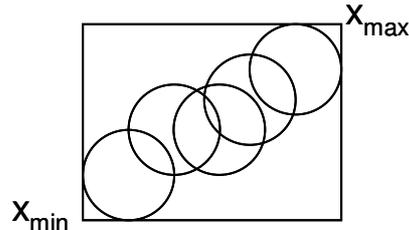


Figure B- I-4: Agrégat projeté

```

Entrer le nombre de sphères, leurs coordonnées et rayons, le nombre de plans de projection:
N,  $x_{p1}$ , R, Pl
pas=min(R)/100
Sp=0
Pour  $N_p=1,2,\dots, Pl$ 
    Calculer les coordonnées de chaque sphère dans le  $N_p^{i\grave{e}me}$  plan de projection:  $x_{p2}$ 
    Déterminer les coordonnées des 2 sommets appartenant à la 2ième diagonale d'un
    rectangle contenant l'agrégat projeté:  $x_{max}$ ,  $x_{min}$ 

    Pour  $l=1,2$   $n(l)=entier((x_{max}(l)-x_{min}(l))/pas)$  ;
    Pour  $g_1=1,\dots,n(1)$ 
        Pour  $g_2=1,\dots,n(2)$ 
            P=0
            Pour  $k=1,\dots, N$ 
                Si  $(g_1 pas - x_{p2}(k,1))^2 + (g_2 pas - x_{p2}(k,2))^2 < R(k)^2$ 
                    Si P=0  $S_p=S_p+1$  P=1
            Fin
        Fin
    Fin
     $S_p = S_p pas^2$ 
Fin
 $S_{pr}=S_{pr}+S_p$ 
Fin
 $S_{pr}=S_{pr}/Pl$  ;
    
```

Cet algorithme permet d'obtenir la surface projetée moyenne, mais également la distribution des surfaces projetées $D(S_p)$ c'est-à-dire le nombre de plans de projection conduisant à une surface projetée comprise entre S_p et $S_p+\Delta S_p$. Le paragraphe suivant présente cette distribution pour différents objets.

B.I.3.2 Distribution pour une sphère, des sphéroïdes et des agrégats de sphères

B.I.3.2.a) Sphéroïdes:

La distribution des surfaces projetées $D(S_p)$ est obtenue à partir d'un ensemble de 1500 valeurs de S_p qui correspondent aux 1500 plans de projections choisis aléatoirement. Pour faciliter la lecture, $D(S_p)$ est exprimée comme le rapport d'un nombre de plans sur un nombre total, et est donc compris entre 0 et 1.

Dans ce paragraphe, on suit l'évolution de cette distribution en fonction du rapport des axes ts du sphéroïde. Ce rapport est toujours inférieur à l'unité, c'est-à-dire que $ts = b/a$ pour un sphéroïde du type oblong et $ts = a/b$ pour un sphéroïde du type aplati.

Rapport des axes	Méthode	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1
Oblong (b/a) < S_p >	Longueur de l'axe principal constant	0,250	0,506	0,771	1,052	1,349	1,654	1,995	2,358	2,738	3,141
	Volume constant	5,269	4,261	3,836	3,527	3,375	3,268	3,205	3,166	3,147	3,141
Aplati (a/b) < S_p >	Longueur de l'axe principal constant	1,671	1,748	1,861	2,023	2,196	2,357	2,524	2,736	2,934	3,141
	Volume constant	34,283	14,430	8,997	6,669	5,443	4,626	4,068	3,674	3,376	3,141

Tableau B- I-2: Surface projetée moyenne < S_p > en fonction du rapport des axes pour des sphéroïdes du type oblong et aplati.

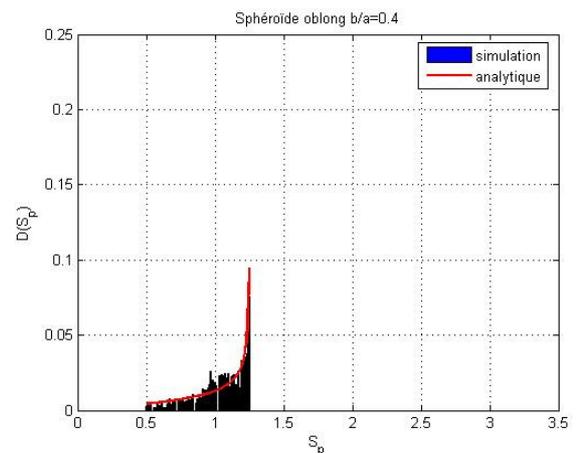
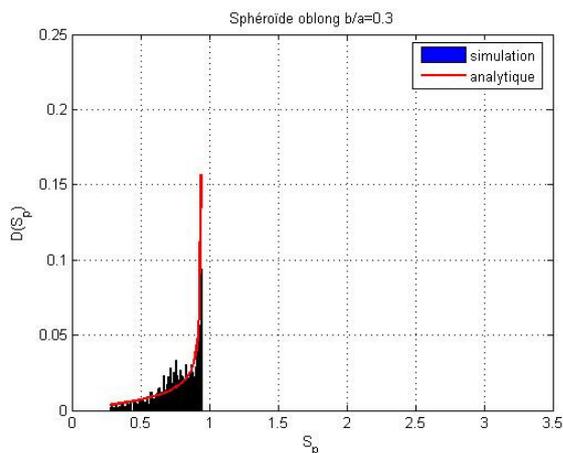
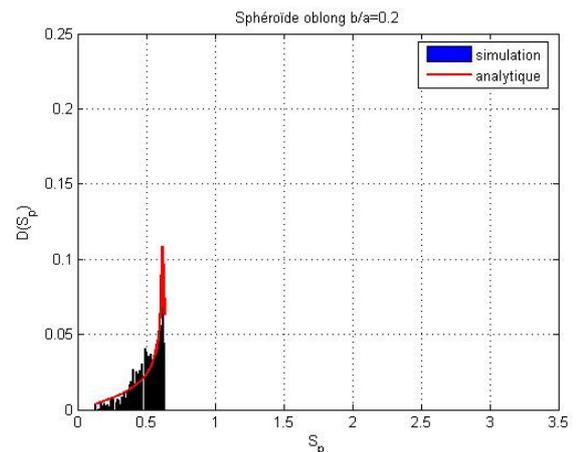
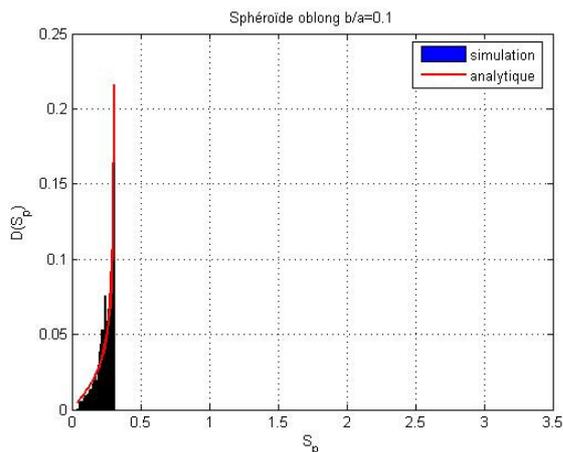
Le *Tableau B- I-2* représente la surface projetée moyenne en fonction de b/a , soit en maintenant la longueur de l'axe principal constant (égale à l'unité), soit en considérant le volume du sphéroïde constant. Ce dernier ensemble de valeurs est obtenu en multipliant le premier par $(ts)^{-4/3}$. La surface projetée moyenne obtenue en maintenant l'axe principal constant est une fonction croissante du rapport des axes, tandis que la surface projetée calculée pour des sphéroïdes de volume identique est une fonction décroissante du rapport des axes.

Dans les deux cas, les courbes, obtenues en faisant varier le rapport des axes, ont le même aspect ; nous limiterons donc notre discussion aux cas des sphéroïdes dont l'axe principal a une longueur constante.

La Figure B- I-5 représente $D(S_p)$ pour des objets oblongs $0 \leq S_p \leq \pi$.

La distribution des surfaces projetées $D(S_p)$ issue de la simulation est représentée sous forme d'histogramme, tandis que celle issue de l'étude analytique ((B.10) et (B.11)) est représentée par une ligne rouge.

Quel que soit le type de sphéroïde (oblong ou aplati), les résultats des simulations sont en accord avec la théorie.



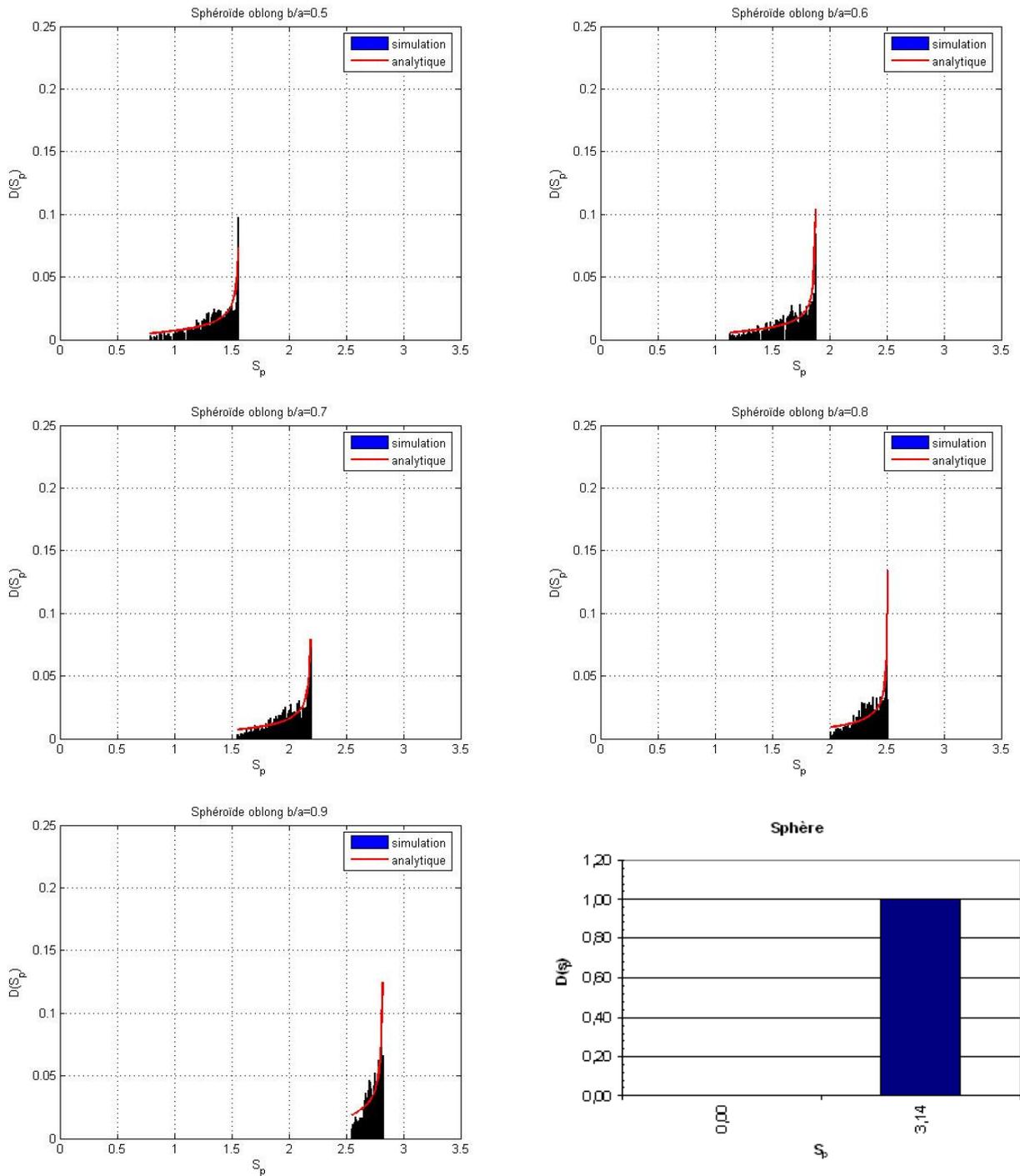
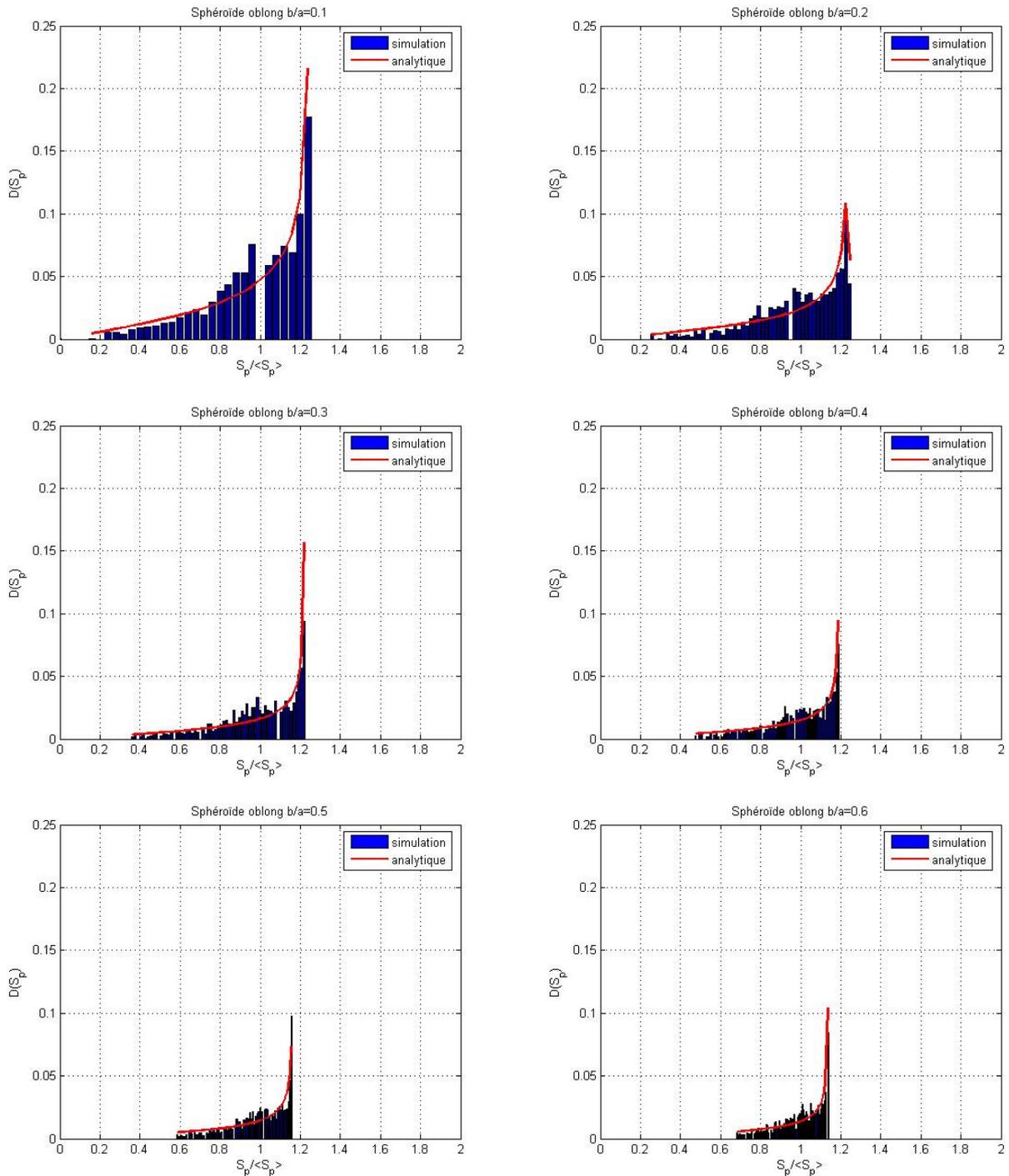


Figure B- I-5: Distribution des surfaces projetées S_p pour un sphéroïde de type oblong

Sur la Figure B- I-5 on peut noter que, quelque soit le rapport b/a , la distribution des surfaces projetées a une allure montrant que les plans de projections les plus probables sont ceux parallèles (ou quasi-parallèles) à la droite portant (a).

Sur la Figure B- I-6 est représentée la distribution des surfaces projetées en fonction de la surface projetée normalisée par la moyenne des surfaces projetées ($S_p/\langle S_p \rangle$). On constate que

plus ts tend vers 1, plus la distribution se concentre autour de la valeur moyenne. La distribution n'est pas symétrique de part et d'autre de cette valeur moyenne $\langle S_p \rangle$.



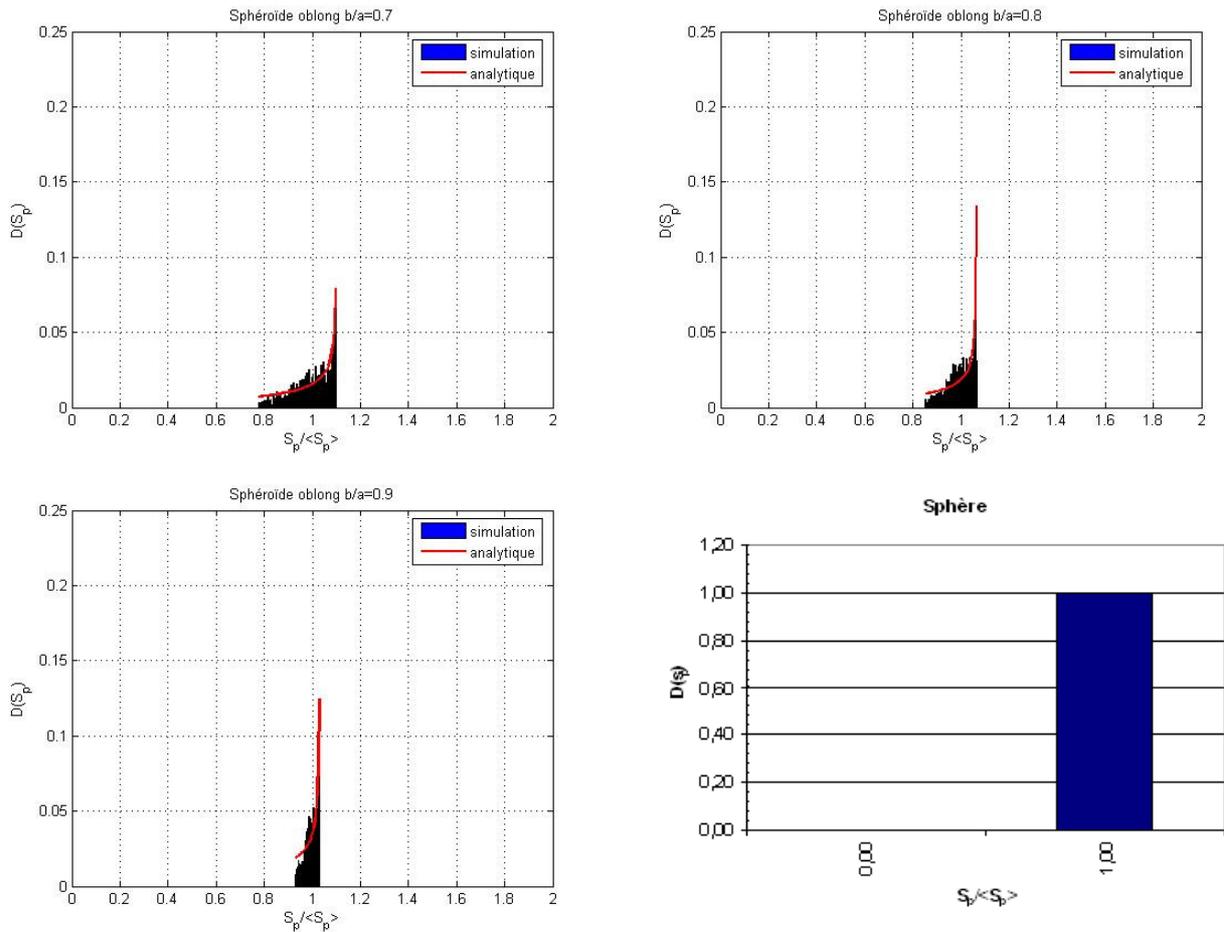
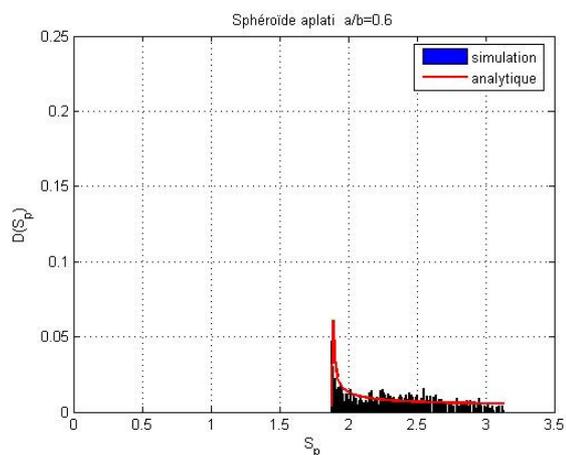
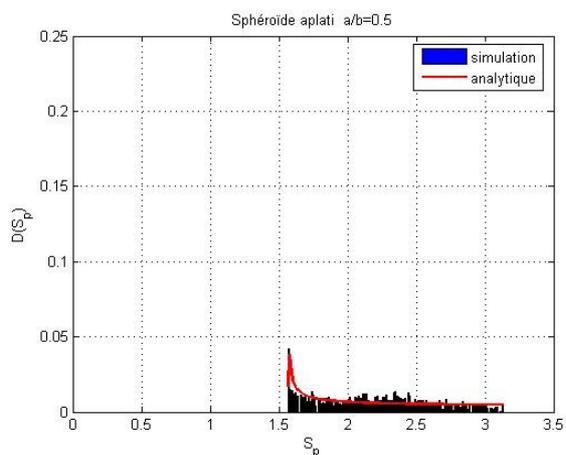
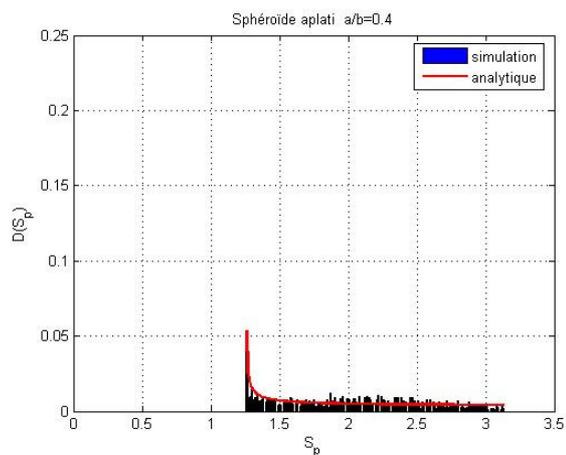
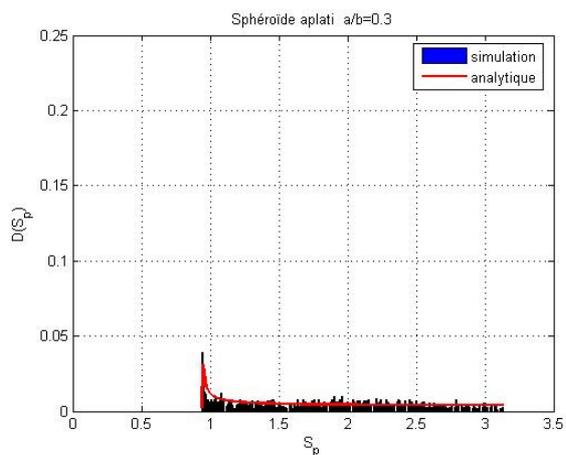
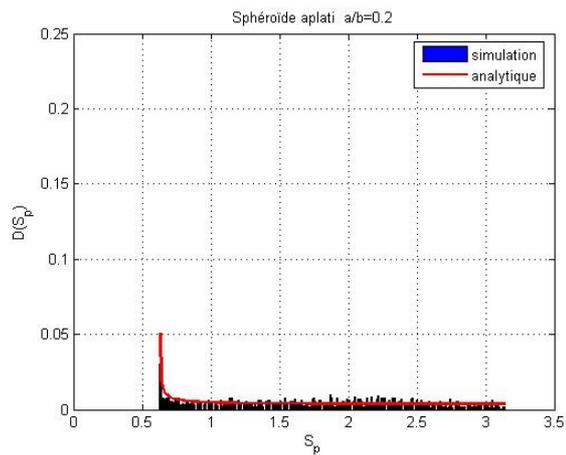
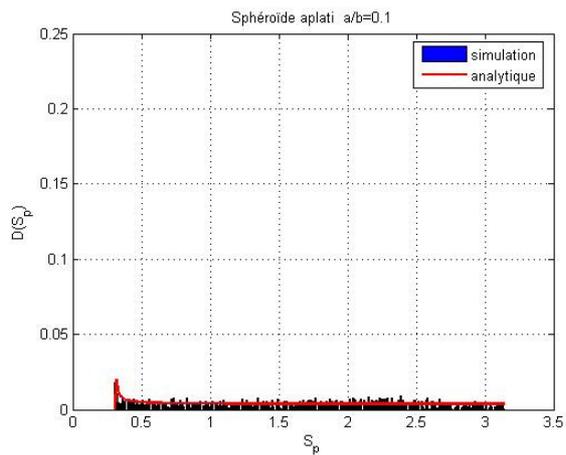


Figure B- I-6: Distribution des surfaces projetées S_p normalisées ($S_p / \langle S_p \rangle$) pour un sphéroïde de type oblong

Pour un sphéroïde de type aplati (Figure B- I-7), nous aboutissons à la même remarque : quelque soit le rapport b/a , il semblerait que la direction la plus probable, pour l'évaluation de la surface projetée, soit celle correspondant à un plan de projection parallèle ou (quasi-parallèle) à la droite portant (b) donc de façon générale à la droite portant la plus grande dimension du sphéroïde.



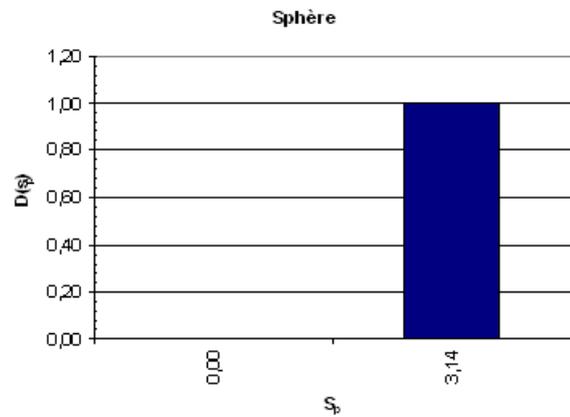
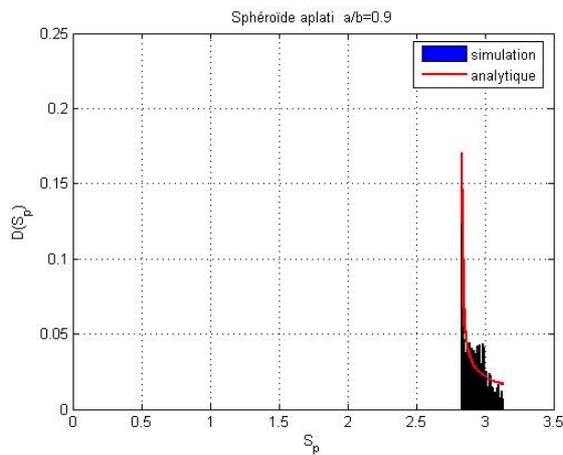
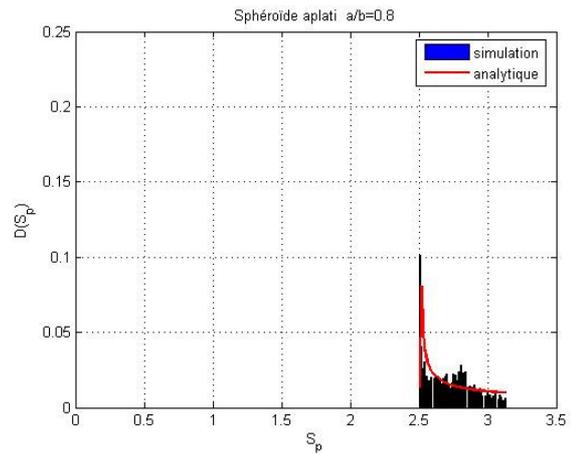
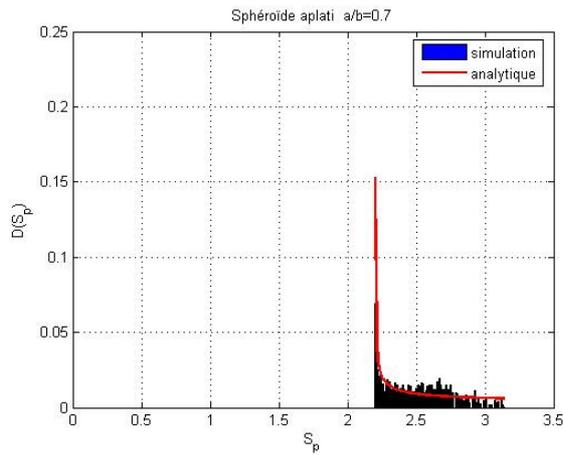
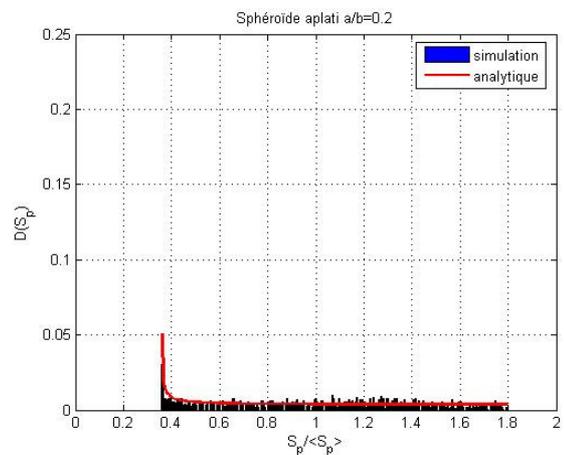
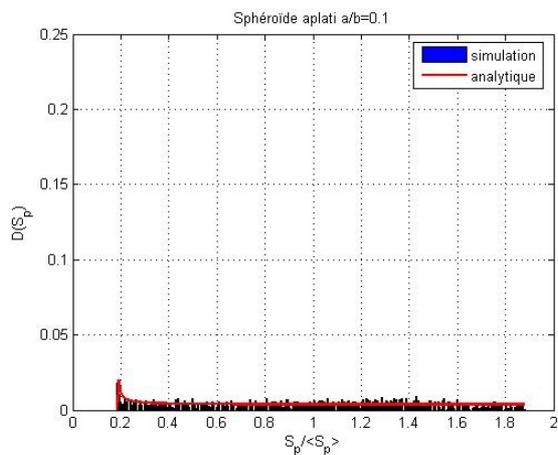
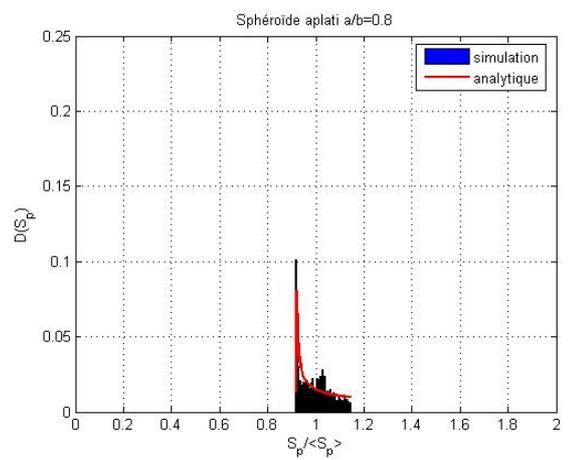
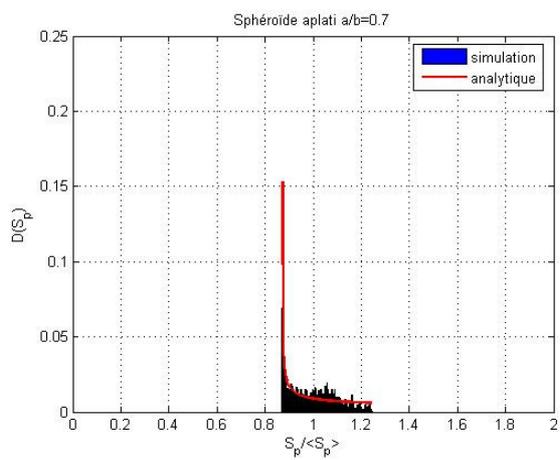
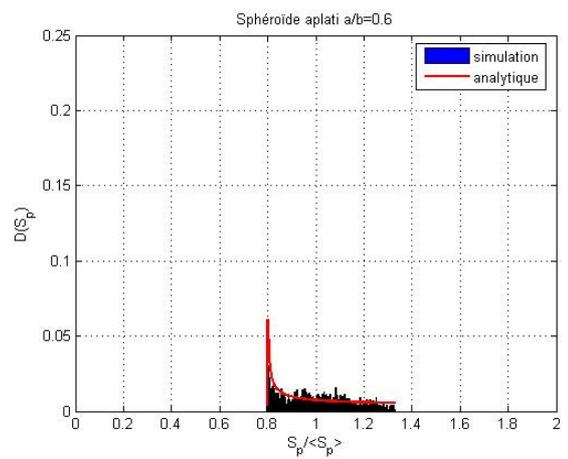
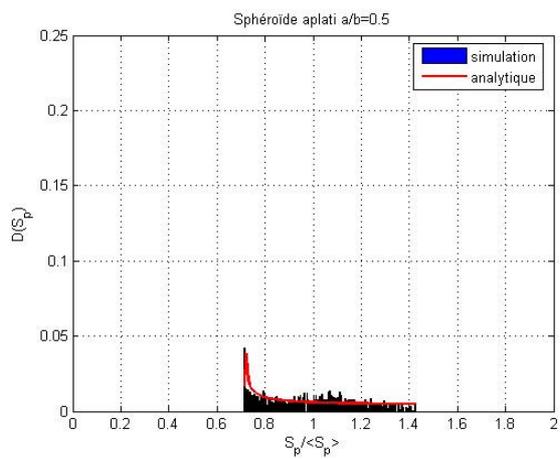
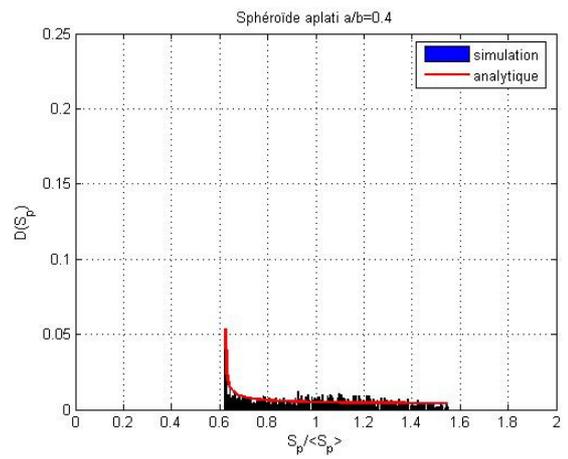
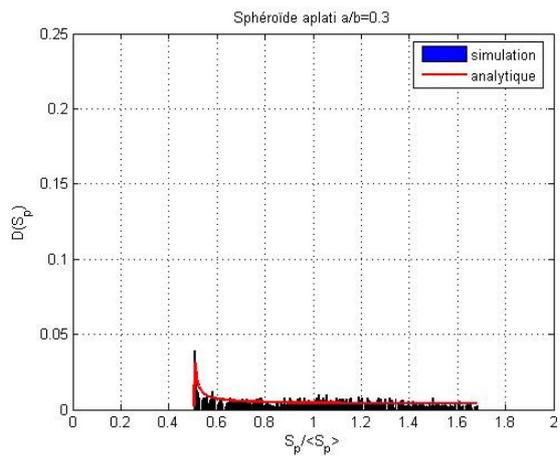


Figure B- I-7: Distribution des surfaces projetées S_p pour un sphéroïde de type aplati

La Figure B- I-8, représentant la distribution des surfaces projetées $D(S_p)$ en fonction de la surface projetée normalisée par la moyenne des surfaces projetées ($S_p/\langle S_p \rangle$), confirme le constat fait précédemment, à savoir que si ts tend vers 1, la répartition de la distribution est plus étroite et se concentre autour de la valeur moyenne.





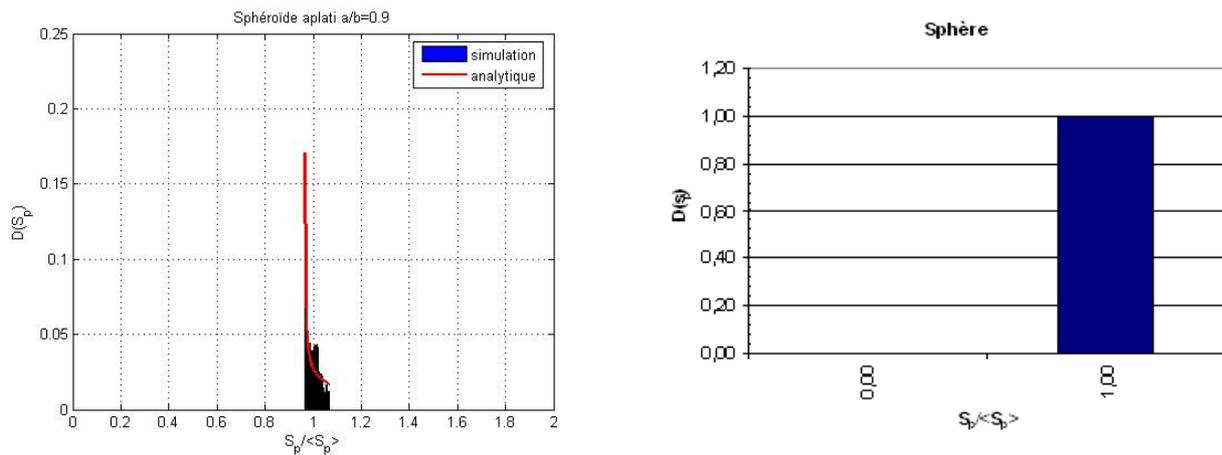
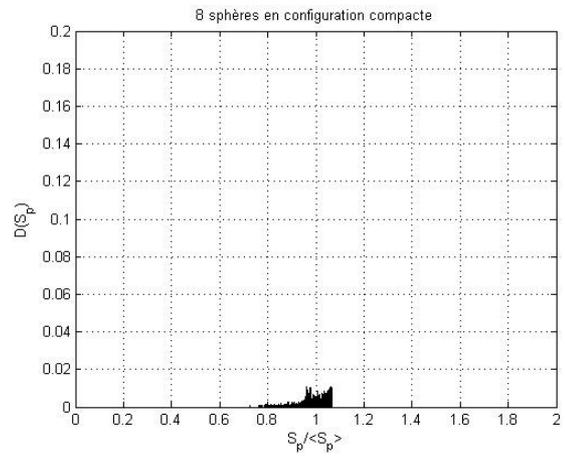
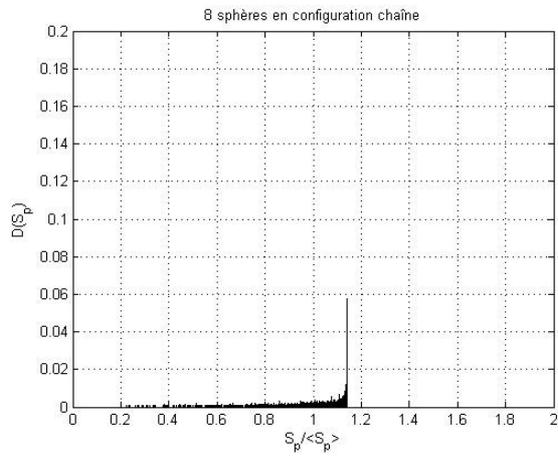
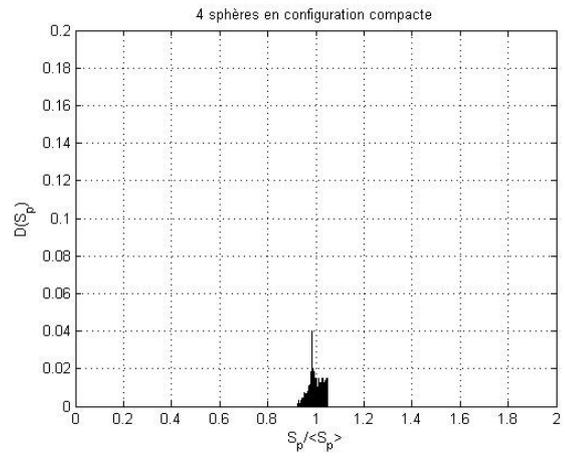
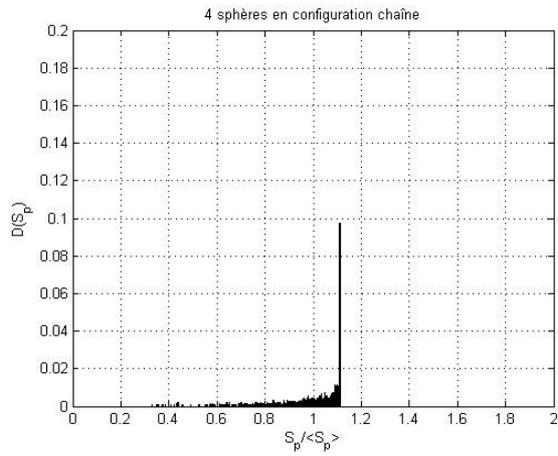
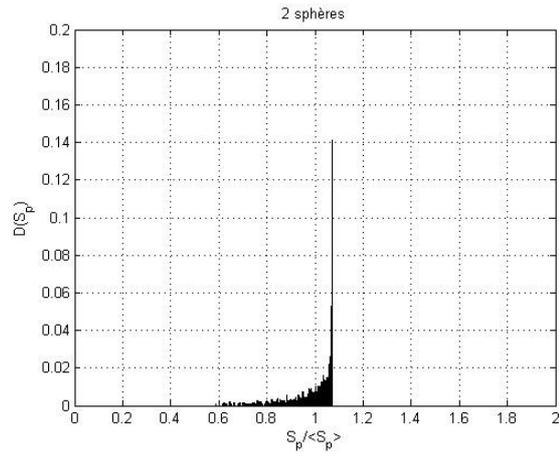


Figure B- I-8: Distribution des surfaces projetées $S_p / \langle S_p \rangle$ normalisées pour un sphéroïde de type aplati

En conclusion, la distribution des surfaces projetées pour un sphéroïde du type oblong ou aplati dépend du rapport de leurs axes. Le type de sphéroïde est facilement identifiable à partir de la forme de $D(S_p)$. En effet, un sphéroïde oblong a son pic maximal pour une surface projetée supérieure à la surface projetée moyenne, tandis qu'un sphéroïde aplati atteint ce maximum pour une valeur de surface projetée inférieure à la valeur moyenne.

B.I.3.2.b) Agrégats de sphères :

Suivant la même démarche que précédemment, nous présentons la distribution des surfaces projetées pour des agrégats constitués de 2, 4, 8, 16 particules primaires (sphériques, *Tableau B- I-1*) pour des configurations en chaîne et compactes . Cette distribution est réalisée à partir de 1500 valeurs de S_p et exprimée comme le rapport d'un nombre de plans sur un nombre total, donc, comprise entre 0 et 1. La *Figure B- I-9* représente ces distributions des surfaces projetées, celles-ci étant normalisées.



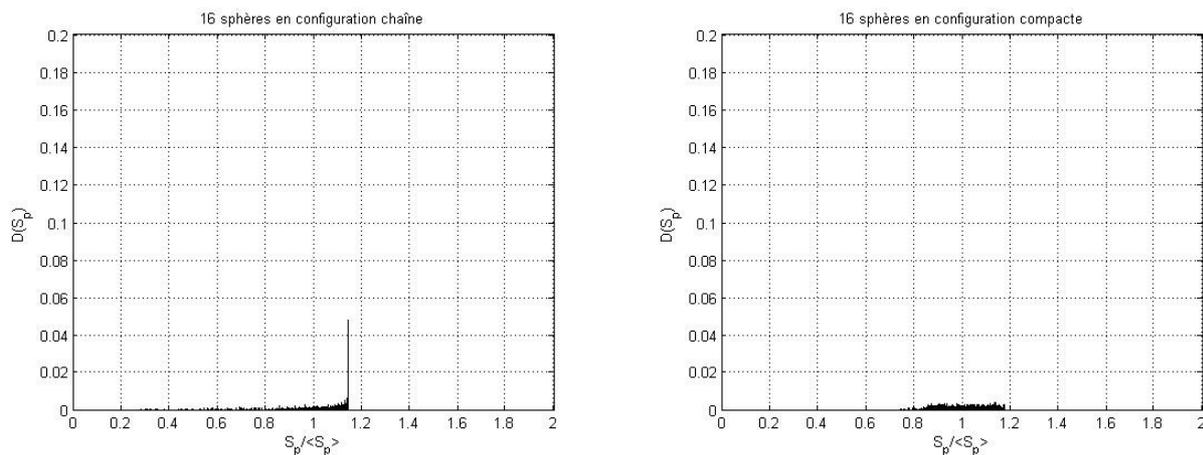


Figure B- I-9: Exemple de distribution des surfaces projetées normalisées pour des agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires en configuration compacte et chaîne.

Configuration en chaîne :

Il est possible de déterminer un sphéroïde du type oblong pour représenter une chaîne de N sphères, ayant une longueur d'axe secondaire (b) égale au rayon de la sphère primaire et une longueur principale (a) égale à N fois ce rayon. Comparons les distributions des surfaces projetées normalisées obtenues pour ces agrégats et les sphéroïdes du type oblong : nous observons, pour des rapports b/a équivalents (pour un agrégat de N sphères ; $b/a=N^{-1}$), que les allures de ces distributions sont qualitativement équivalentes mais pas leurs amplitudes. Ces différences quantitatives sont dûes à la non prise en considération de la sous-structure plus complexe (rugosité, porosité) des agrégats.

Configuration compacte :

Il est attendu que leur distribution des surfaces projetées soit proche de celle de la sphère. En effet, pour 4 sphères, la distribution est proche de celles dont le rapport des axes est de l'ordre de 0.9. Pour des agrégats de 8 et 16 particules primaires, la position du pic maximal et la forme nous laissent supposer que ces deux types d'agrégats se comportent principalement comme une sphère avec des ressemblances respectives à un sphéroïde oblong et aplati.

Configuration en plan :

En revanche, les configurations plans (Figure B- I-10) ont une distribution des surfaces projetées qui correspond bien qualitativement à celle obtenue avec un sphéroïde aplati ayant un rapport d'axe faible. On constate cependant que les distributions relatives aux agrégats plan sont tronquées pour les grandes valeurs de $S_p / \langle S_p \rangle$.

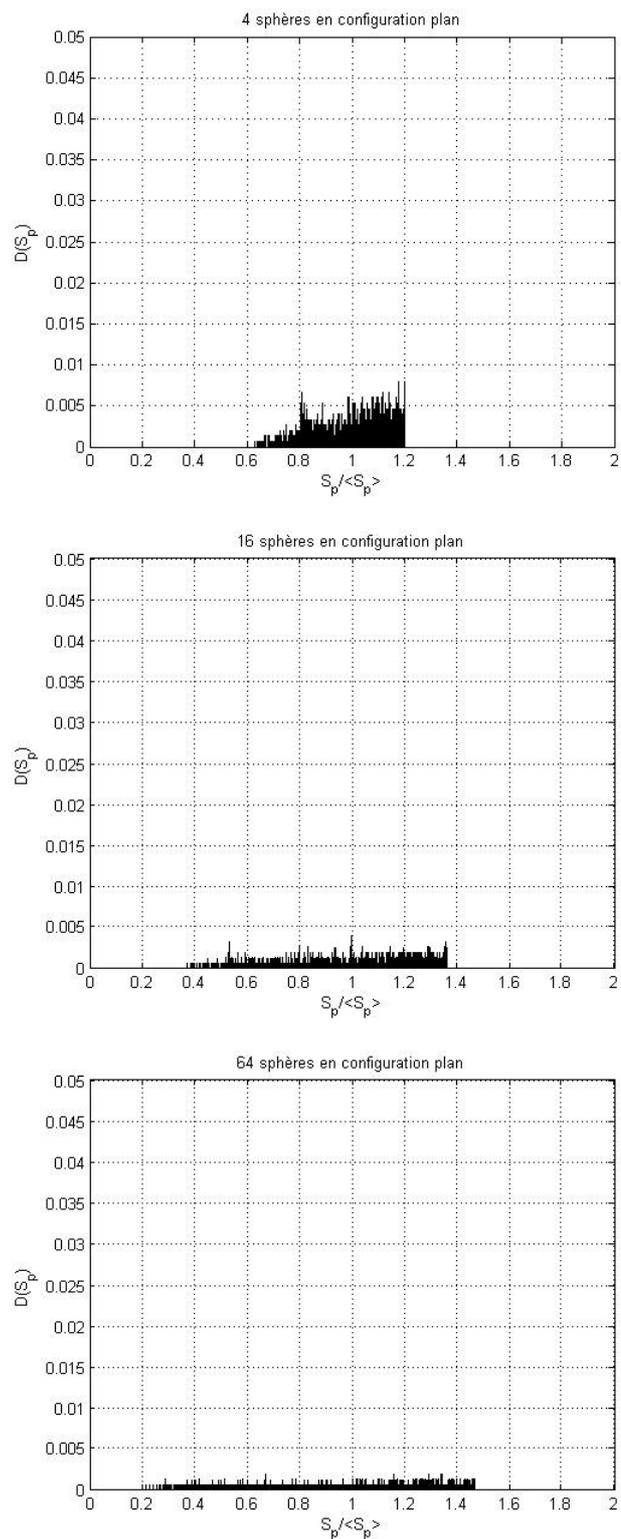


Figure B- I-10: Exemple de distribution de la surface projetée normalisée pour des agrégats de 4, 16, 64 particules primaires en configuration plan.

Ayant étudié la surface projetée des agrégats et d'un objet équivalent possible, les résultats correspondants seront exploités dans le but de déterminer un objet équivalent aux agrégats.

B.I.3.3 Sphère et Sphéroïde équivalents :

Le sphéroïde équivalent le plus simple étant la sphère, nous traiterons le cas de la sphère équivalente avant celui du sphéroïde équivalent.

B.I.3.3.a) Sphère équivalente:

B.I.3.3.a) i) Rayon projeté:

Le rayon projeté d'un agrégat est déterminé à partir de la surface projetée moyenne, qui est considérée comme étant celle d'une sphère de rayon :

$$R_p = \sqrt{\frac{\langle S_p \rangle}{\pi}}$$

Dans les tableaux ci-dessous (*Tableau B- I-3, Tableau B- I-4 et Tableau B- I-5*) sont rassemblés les rayons projetés de quelques agrégats en fonction du nombre de particules primaires qui les constituent et des configurations envisagées. Ces valeurs sont normalisées par celle du rayon d'une particule primaire.

N (Nombre de particules primaires)	2	4	8	16	64	100
Configuration en chaîne : R_p	1.365	1.891	2.635	3.721	7.455	9.511
Configuration compacte : R_p	1.365	1.767	2.358	2.995	5.143	6.022

Tableau B- I-3: Rayon projeté R_p , pour des configurations en chaîne et compactes en fonction du nombre de particules primaires.

N (Nombre de particules primaires)	4	16	64	100
Configuration en plan : R_p	1.826	3.444	6.672	8.074

Tableau B- I-4: Rayon projeté R_p , pour des configurations en plan dans le cas d'agrégats ayant 4, 16, 64, 100 particules primaires

Configuration	compacte	plan	P2	P1	chaîne
R_p	1.767	1.826	1.872	1.857	1.891

Tableau B- I-5: Rayon projeté R_p pour différentes configurations dans le cas d'un agrégat de 4 particules primaires

Le rayon projeté (fonction du nombre de particules primaires au sein d'un agrégat et de leur agencement), est donc une variable permettant de rendre compte des caractéristiques géométriques de ces agrégats.

B.I.3.3.a ii) Détermination du rayon projeté :

Afin de diminuer les temps de calculs avec la méthode IRE (B.IV.2.3) qui est une méthode approchée que nous détaillerons au Chapitre IV, il apparaît intéressant de déterminer le rayon projeté, sans avoir à le calculer par simulation à partir de la moyenne des surfaces projetées (sur toutes les orientations de l'agrégat).

Quels paramètres influencent R_p ?

Le nombre de particules primaires au sein de l'agrégat semble être la première bonne réponse à la question précédente. En effet, comme l'illustre la *Figure B- I-11* le nombre de particules primaires pour une même configuration va fortement influencer R_p .

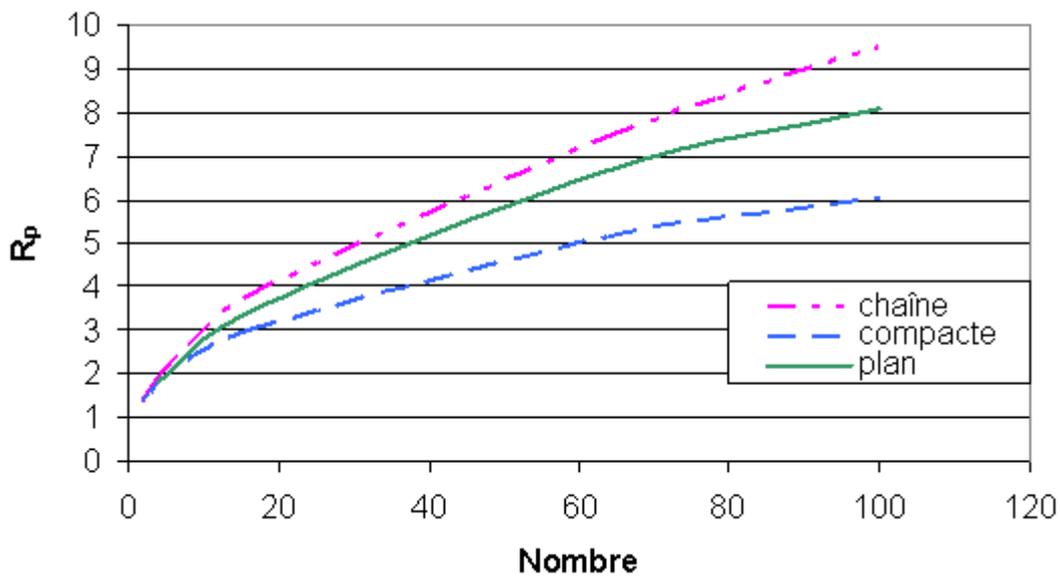


Figure B- I-11: Rayon projeté R_p en fonction du nombre de particules primaires pour les configurations en chaîne, compacte et plan

Cependant, nous ne pouvons pas envisager une expression de R_p en fonction uniquement du nombre de particules primaires N pour chaque configuration possible. R_p doit donc être défini suivant N et un paramètre pouvant rendre compte de la forme de l'agrégat.

La distance inter-particule moyenne d_1 , facile à calculer, répond à ce critère. Elle est définie comme suit :

$$d_1 = \frac{1}{N(N-1)} \sum_{i \neq j} d_{i,j} \quad (\text{B.22})$$

$d_{i,j}$ est la distance séparant les centres des particules primaires i et j .

Ce paramètre simple tient compte à la fois de la morphologie (configuration en chaîne ou compacte) et du nombre de particules primaires. Pour une chaîne de N particules primaires de

rayon r_1 : $d_1 = 2r_1 \sum_{p=1}^{N-1} p(N-p)$

La Figure B- I-12 représente l'évolution de R_p en fonction de cette distance.

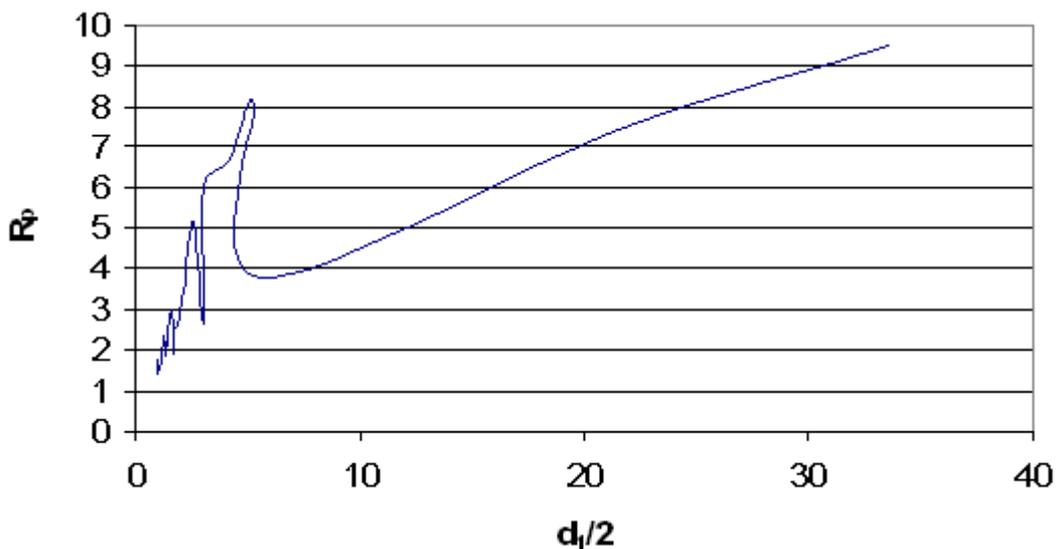


Figure B- I-12: Rayon projeté R_p en fonction de la distance inter-particule moyenne pour toutes les configurations d'agrégat étudiées jusqu'à présent (Tableau B- I-1).

Il ne semble pas évident de relier R_p à ce seul paramètre d_1 , mais il apparaît plus judicieux d'exprimer R_p en fonction de d_1 et N .

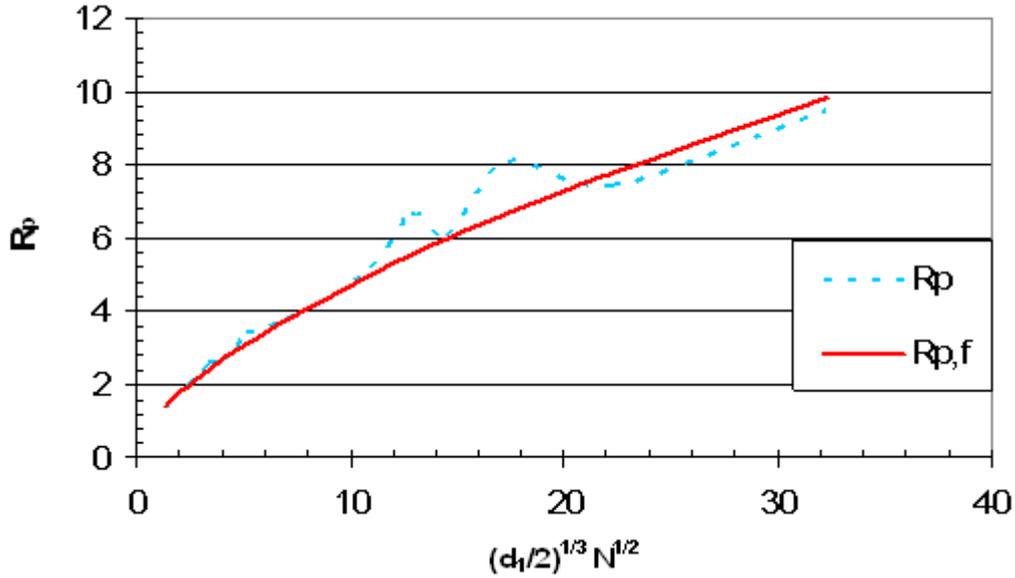


Figure B- I-13: Rayon projeté R_p en fonction du nombre de particules primaires N et de la distance inter-particule moyenne d_1 .

La Figure B- I-13 représente R_p obtenu pour l'ensemble des agrégats étudiés en pointillé; et $R_{p,f}$ calculé à partir de l'expression suivante (obtenue par interpolation) avec une ligne continue:

$$R_{p,f} = \sqrt{1.25 \left(\left(\frac{d_1}{2} \right)^{1/3} N^{1/2} \right)^{1.25}} \quad (\text{B.23}).$$

L'erreur moyenne relative à cette expression est de 5% (cette erreur est calculée à partir des valeurs obtenues pour tous les agrégats figurant dans le *Tableau B- I-1*). L'utilisation de $R_{p,f}$ va nous permettre d'effectuer le calcul des propriétés optiques plus rapidement.

B.I.3.3.b) Sphéroïde équivalent:

La détermination d'un sphéroïde équivalent aux agrégats étudiés dans ce chapitre, sera réalisée en deux étapes. La première consiste à définir le type du sphéroïde équivalent correspondant à chaque agrégat et son rapport d'axe ; la deuxième permet de définir les valeurs de chaque demi-axe.

Pour déterminer le rapport d'axe de chaque agrégat, la méthode suivante a été mise en place.

- i. La largeur de la distribution des surfaces projetées normalisées $\left(\frac{S_{p \max} - S_{p \min}}{\langle Sp \rangle} \right)$ pour chaque type de sphéroïde a été déterminée à partir des résultats des simulations numériques (*Tableau B- I-6*).

Rapport des axes	$\frac{S_{p \max} - S_{p \min}}{\langle Sp \rangle}$	
	Oblong	Aplati
0,1	1,466	3,492
0,2	1,473	3,094
0,3	1,340	2,575
0,4	1,188	2,014
0,5	0,998	1,523
0,6	0,817	1,128
0,7	0,608	0,788
0,8	0,406	0,468
0,9	0,200	0,213
1	0	0

Tableau B- I-6: Largeur de la distribution des surfaces projetées normalisées pour chaque type de sphéroïde suivant le rapport de leurs axes.

- ii. L'étude des distributions pour les sphéroïdes, a montré que la position de la surface la plus probable par rapport à la surface moyenne, permettait d'identifier le type de sphéroïde (oblong ou aplati) à l'exception des sphéroïdes types aplatis avec un rapport d'axe très faible (0.1) pour lesquels la variation d'amplitude est insuffisante. C'est, à partir de ce constat, que le type de sphéroïde pouvant modéliser un agrégat sera choisi. Ainsi, dans la 4^{ème} colonne du *Tableau B- I-7*, le type de sphéroïde est défini à partir de la position du maximum de la distribution de surface projetée relativement à la surface projetée moyenne de chaque agrégat (*Figure B- I-9* et *Figure B- I-10*).
- iii. Ensuite, la largeur de la distribution des surfaces projetées normalisées de chaque agrégat a permis (connaissant le type de sphéroïde) de déterminer par interpolation le rapport d'axe correspondant (5^{ème} colonne du *Tableau B- I-7*)

Le *Tableau B- I-7* rassemble donc les informations relatives à chaque agrégat : le type du sphéroïde équivalent lui étant associé et la valeur du rapport d'axes de ce sphéroïde.

Agrégat			Sphéroïde équivalent	
Configuration	Nombre de particules primaires	$\frac{S_{pa \max} - S_{pa \min}}{\langle Spa \rangle}$	Type	Rapport des axes
Chaîne	2	0,800	oblong	0,59
	4	1,124	oblong	0,38
	8	1,250	oblong	0,42
	16	1,276	oblong	0,28
Compacte	4	0,238	aplatis	1
	8	0,611	oblong	0,7
	16	0,923	aplatis	0,81
Plan	4	1,046	aplatis	0,79
	16	1,704	aplatis	0,56
	64	2,100	aplatis	0,41

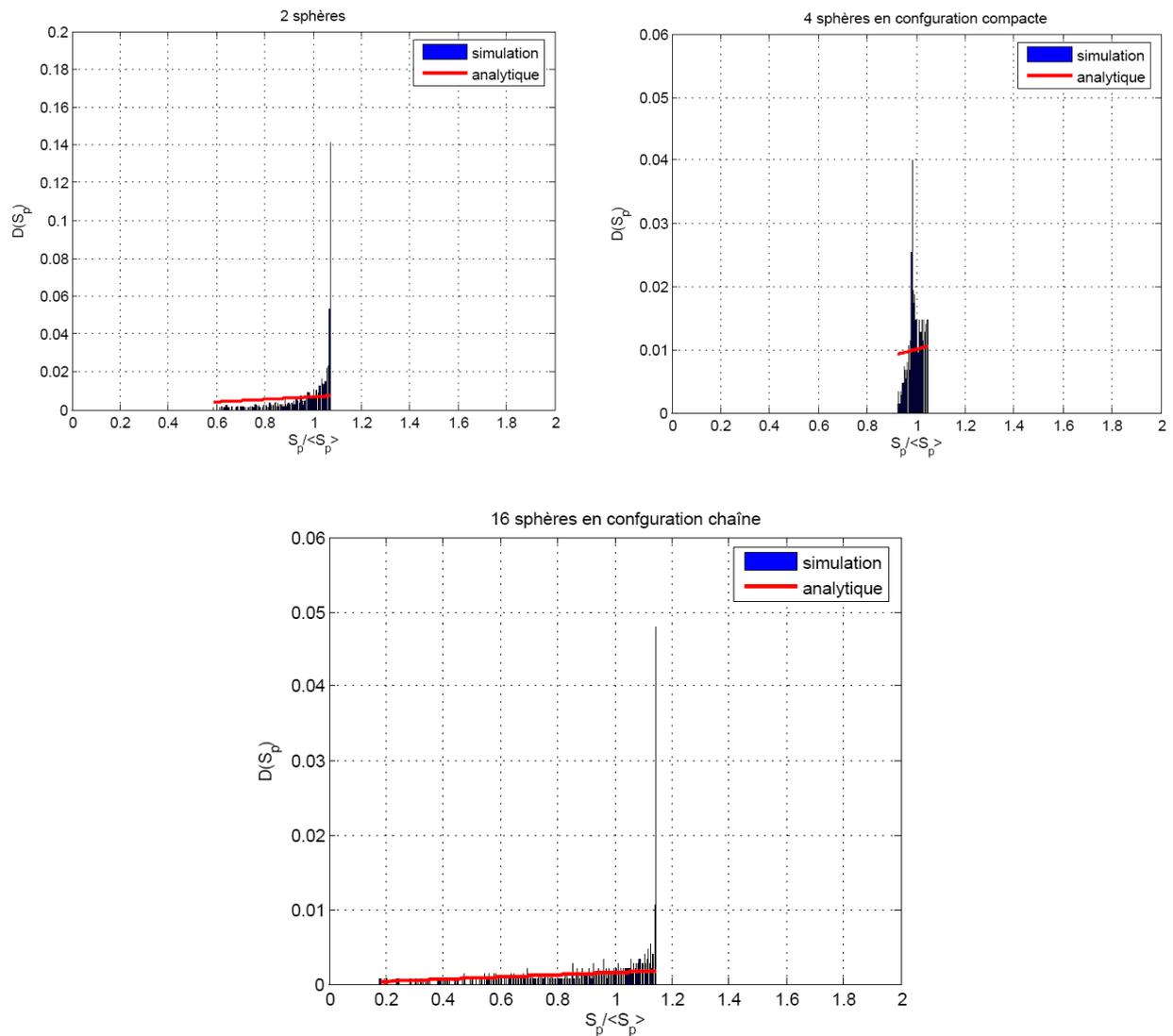
Tableau B- I-7: Détermination du rapport des axes pour chaque agrégat.

- iv. Détermination de la valeur des demi-axes a et b : Connaissant la surface projetée moyenne de chaque agrégat et le rapport d'axe lui étant associé, avec ((B.7) et (B.8) ,page - 66 -), a et b sont calculés. Dans le *Tableau B- I-8* sont répertoriées les valeurs des demi-axes du sphéroïde équivalent à chaque agrégat.

configuration	agrégat			
	Nombre de particules primaires	Type	a	b
Chaîne	2	oblong	1,90	1,12
	4	oblong	3,38	1,28
	8	oblong	4,47	1,88
	16	oblong	7,85	2,20
compacte	4	aplatis	1,77	1,77
	8	oblong	2,96	2,07
	16	aplatis	2,60	3,21
Plan	4	aplatis	1,55	1,96
	16	aplatis	2,26	4,04
	64	aplatis	3,38	8,25

Tableau B- I-8: Valeurs des longueurs des demi-axes du sphéroïde équivalent pour chaque agrégat.

Afin d'illustrer les résultats obtenus avec cette technique, la distribution des surfaces projetées normalisées de l'agrégat et celle du sphéroïde équivalent sont représentées sur la *Figure B-I-14*, conformément aux résultats du *Tableau B- I-8*. Les distributions des surfaces projetées du sphéroïde équivalent (analytique) ne sont pas exactement identiques à celles des agrégats.



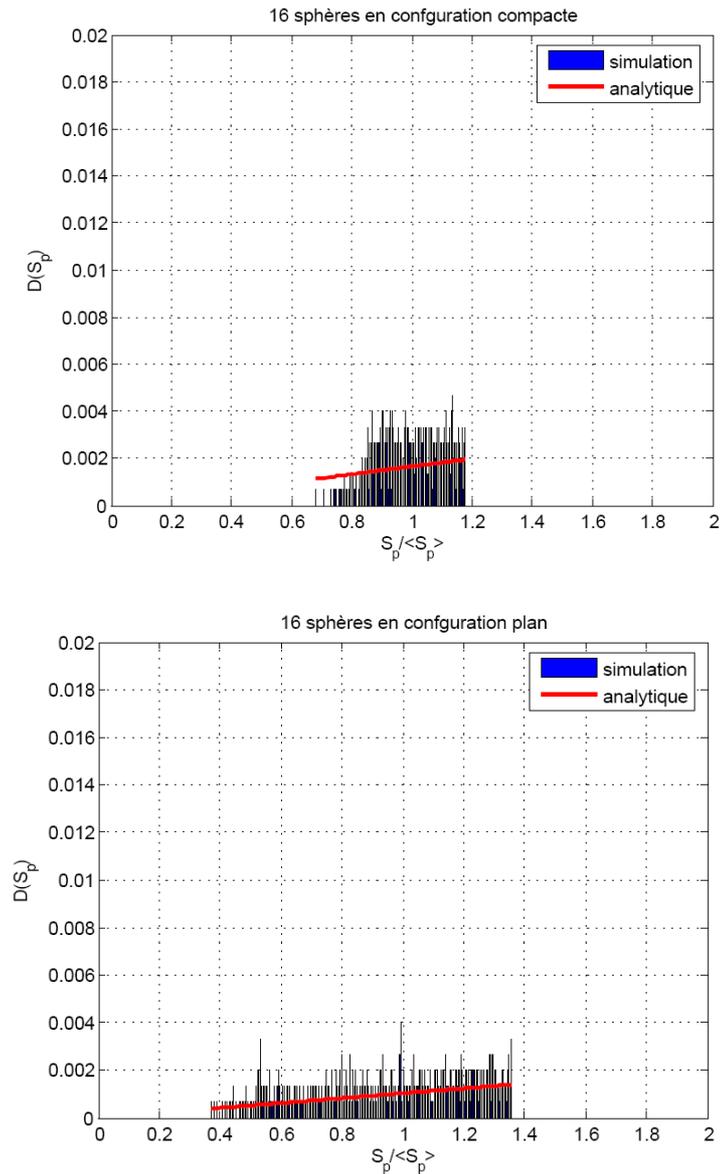


Figure B- I-14: Approximation de la distribution des surfaces projetées d'un agrégat par celle d'un sphéroïde.

La distribution des surfaces projetées et la surface projetée moyenne sont caractéristiques de chaque agrégat. La distribution des surfaces projetées d'un agrégat est plus proche de la distribution d'un sphéroïde équivalent que de celle d'une sphère équivalente. Les dimensions du sphéroïde équivalent ainsi déterminées ne nous conduisent pas à une distribution de surface projetée identique à celle de l'agrégat correspondant. Néanmoins, ces dimensions seront utilisées dans le Chapitre VI (B.VI.2.2.a) pour déterminer les propriétés optiques des agrégats, car elle représente plus la réalité qu'un rayon de sphère équivalente.

En conclusion :

- Quelque soit le type de sphéroïde (oblong ou aplati), les résultats des simulations sont en accord avec la théorie, l'algorithme de calcul permettant d'accéder à la distribution des surfaces projetées peut être utilisé dans le cas des agrégats où cette distribution n'est pas analytiquement accessible.
- La surface projetée moyenne peut être calculée analytiquement grâce à l'expression de $R_{p,f}$ déterminée dans ce paragraphe B.I.3. $R_{p,f}$ représente le rayon d'une sphère équivalente ayant la même surface projetée que l'agrégat considéré.
- Un agrégat peut être remplacé par le sphéroïde ayant la distribution des surfaces projetées la plus proche de la sienne et la même surface projetée moyenne. La technique de détermination des dimensions de ce sphéroïde reste cependant à affiner. Nous examinerons une autre méthode permettant de rendre compte de la morphologie de l'agrégat dans le paragraphe suivant.

B.I.4. Corde :1

La méthode d'intercept (ou longueur de corde) est utilisée dans le modèle optique approché de la diffraction anormale (B.IV.2.7). La longueur de corde au même titre que la surface projetée peut rendre compte de la forme de l'objet.

L'intérêt de l'étude présentée ici est de comparer la distribution des cordes obtenue pour un agrégat et celle d'un objet dit équivalent. Nous avons donc utilisé l'algorithme suivant, permettant de calculer la distribution des cordes de particules agrégées.

B.I.4.1 Algorithme pour obtenir la corde moyenne et $D(1)$

La projection de l'objet sur un plan est utilisée pour évaluer la longueur de corde. Cette projection joue le rôle de masque ou pupille. A travers ce masque, un « jeté de rayon » perpendiculairement au plan contenant ce dernier (voir la *Figure A- IV-2*) est effectué. On évalue alors la distance parcourue par ce rayon dans l'objet. Le rayon ainsi utilisé n'est pas un rayon optique; il traverse l'objet de part en part en ligne droite et ne subit aucune modification de trajectoire due à la présence de l'objet. Toute la surface projetée est balayée de façon à calculer la distribution des cordes.

Entrer le nombre de sphères, leurs coordonnées et rayons, le nombre de plans de projection:

N, x_{p1}, R, Pl

$pas = \min(R)/100$

Pour $N_p = 1, 2, \dots, Pl$

Calculer les coordonnées de chaque sphère dans le $N^{i\text{ème}}$ plan de projection: x_{p2}

Déterminer les coordonnées des 2 sommets appartenant à la $2^{i\text{ème}}$ diagonale d'un rectangle contenant l'agrégat projeté: x_{\max}, x_{\min}

Pour $l = 1, 2$ $n(l) = \text{entier}((x_{\max}(l) - x_{\min}(l))/pas)$;

Pour $g_1 = 1, \dots, n(1)$

 Pour $g_2 = 1, \dots, n(2)$

 corde = 0

 Pour $k = 1, \dots, N$

$$dist = R(k)^2 - (g_1 pas - x_{p2}(k,1))^2 - (g_2 pas - x_{p2}(k,2))^2$$

 Si $dist > 0$ corde = corde + $2\sqrt{dist}$

 Fin

 Fin

Fin

Fin

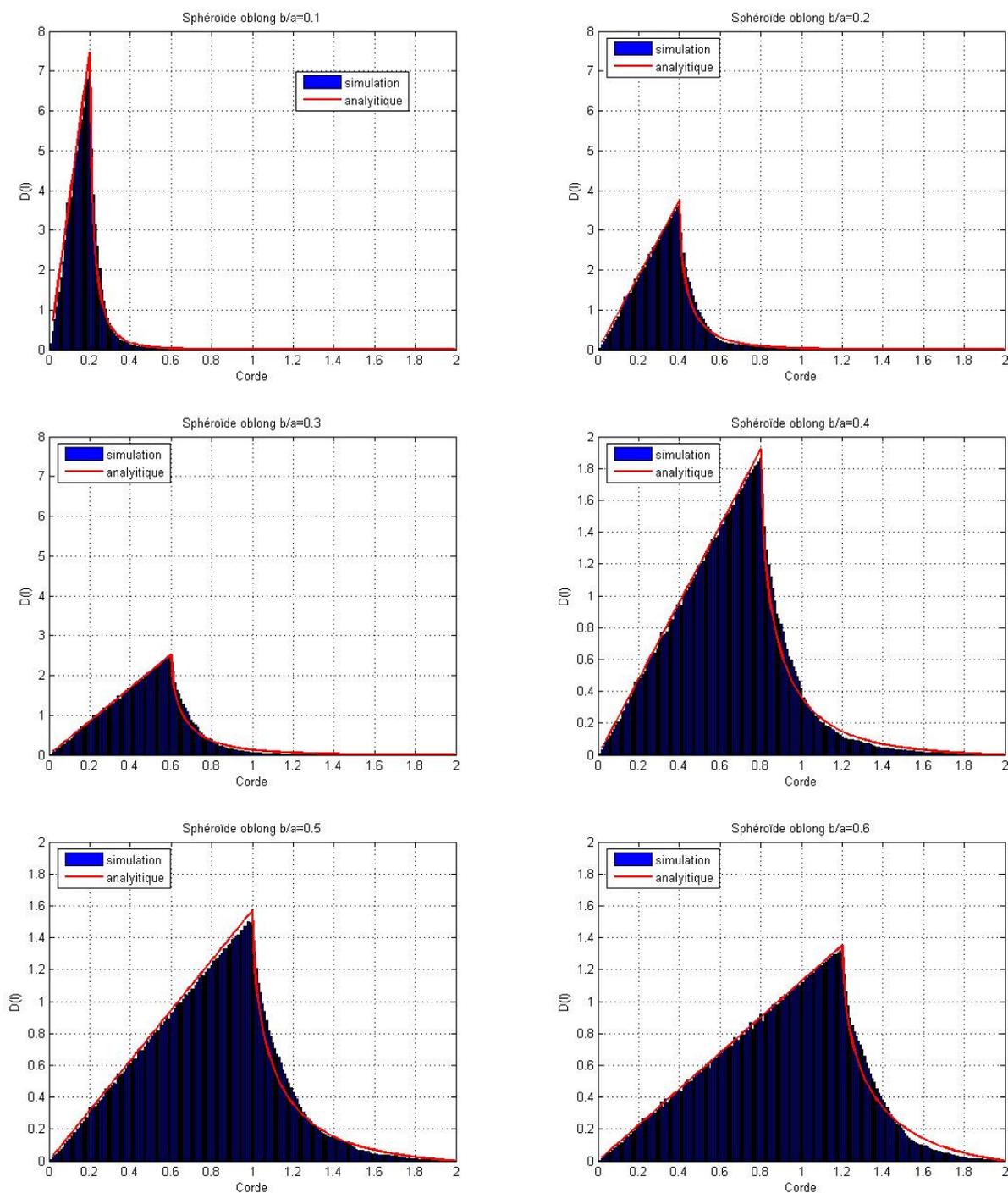
B.I.4.2 Distribution pour une sphère, des sphéroïdes et des agrégats de sphères

L'évaluation de la distribution des cordes $D(l)$ a été réalisée numériquement pour différents objets : sphère, sphéroïdes et agrégats.

B.I.4.2.a) Sphère et sphéroïdes :

La distribution des cordes pour des sphéroïdes du type oblong (*Figure B- I-15*) et aplati (*Figure B- I-16*) est présentée ci-après. Elle montre l'influence du rapport des longueurs des deux axes du sphéroïde sur la distribution des cordes. La longueur du demi-axe principal étant prise égale à 1, la longueur de corde varie entre 0 et 2. Sur ces courbes, on constate une bonne similitude entre les distributions des cordes issues de l'analyse et des simulations.

Les histogrammes représentent la distribution numérique des cordes obtenue sur un ensemble de 10^6 cordes possibles, tandis que la distribution des cordes issue de l'analyse (paragraphe B.I.2.2.c) à l'aide des équations ((B.18)-(B.21)) est représentée par une ligne continue rouge, ces deux distributions sont en accord.



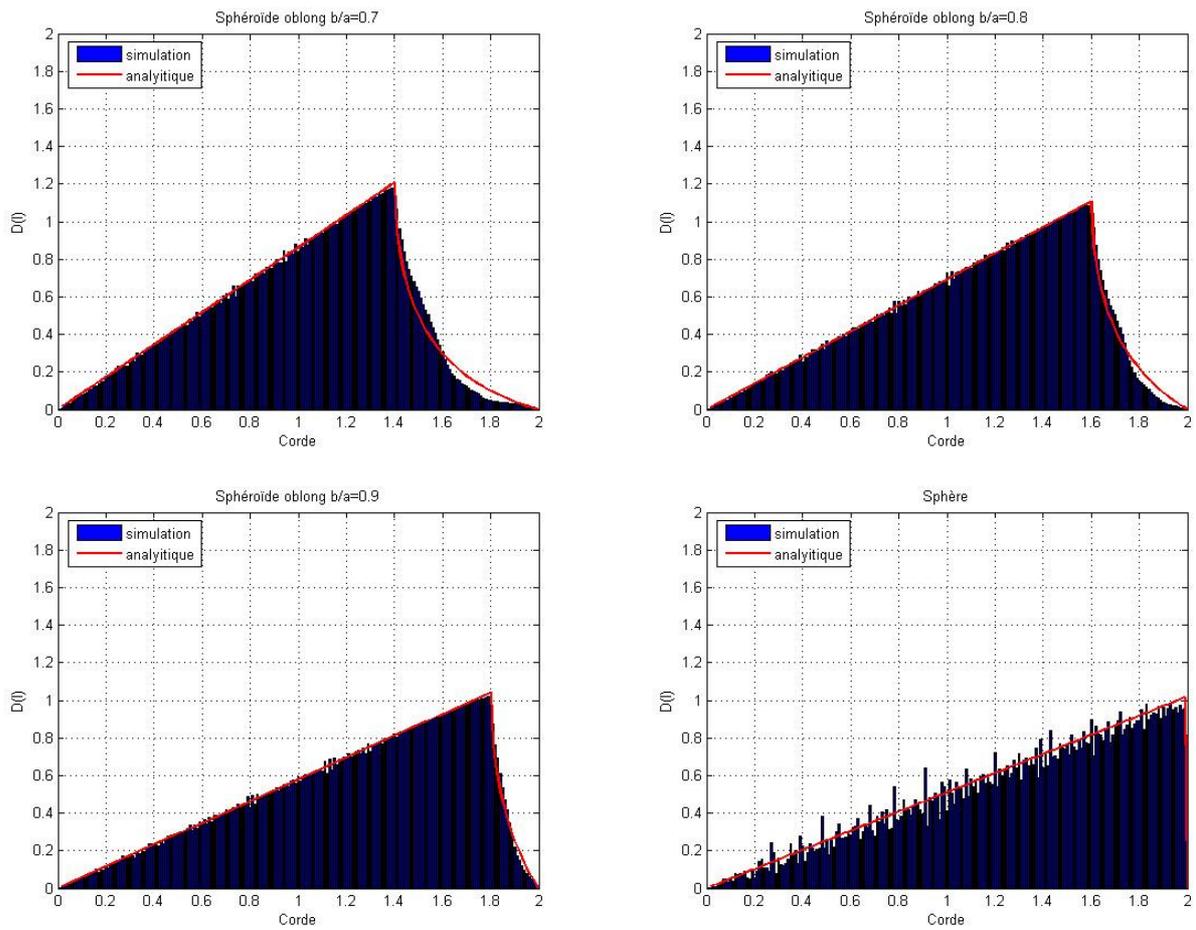
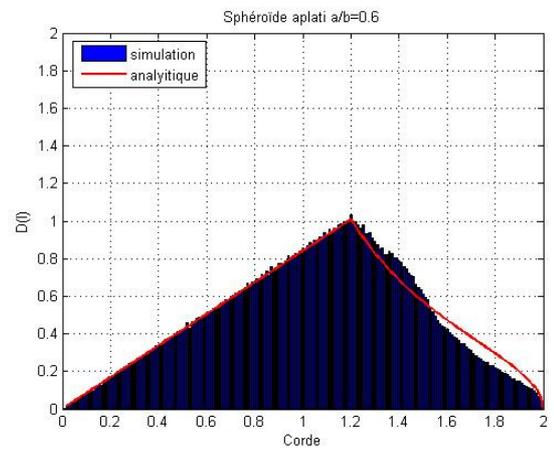
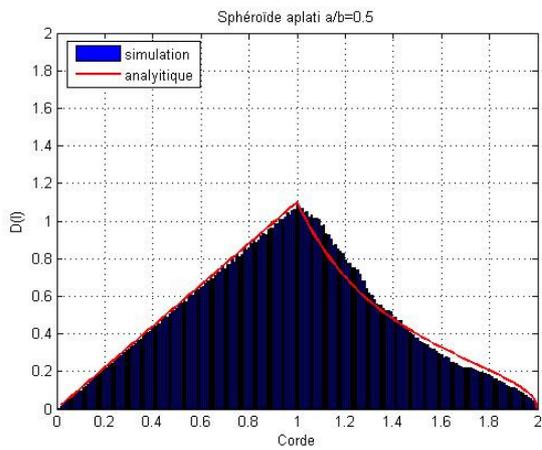
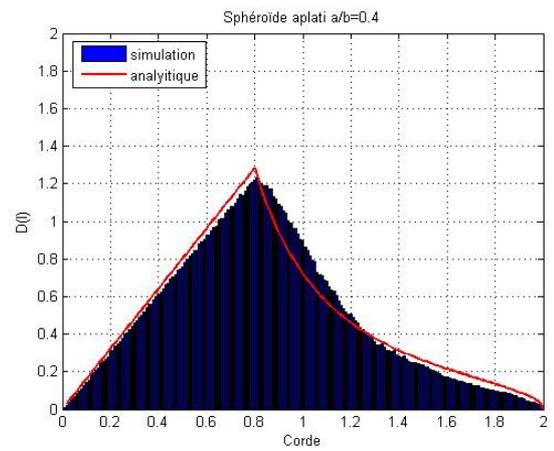
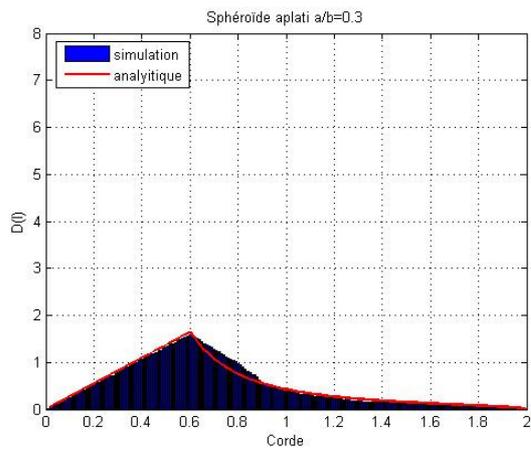
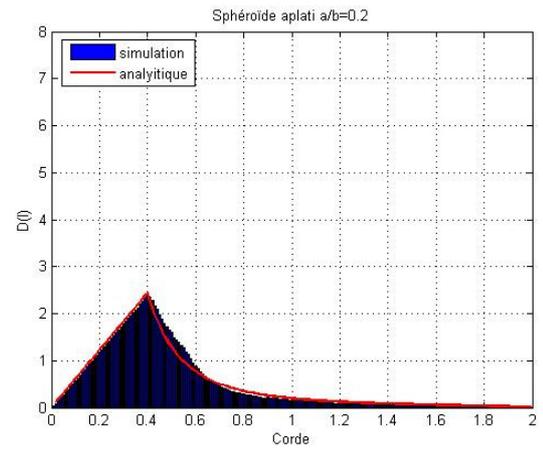
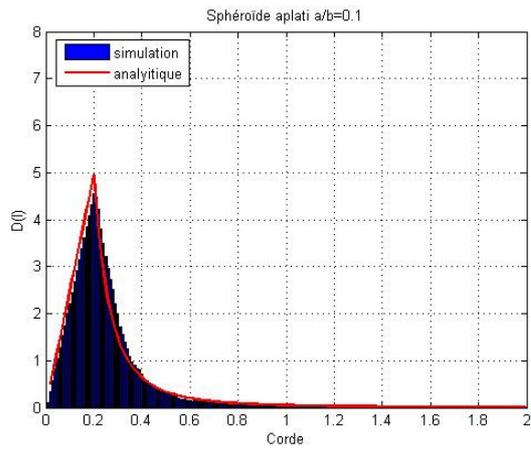


Figure B- I-15: Distribution des cordes pour un sphéroïde pour différents rapports des axes a et b (oblong)

On observe que la probabilité d'obtention des plus grandes cordes est faible d'autant plus que le rapport des axes est petit, et que la position du maximum de la distribution des cordes est fonction du rapport des axes. Ce maximum a lieu pour des longueurs de cordes correspondant à deux fois la longueur de l'axe secondaire (b pour un sphéroïde oblong et a pour un sphéroïde aplati).



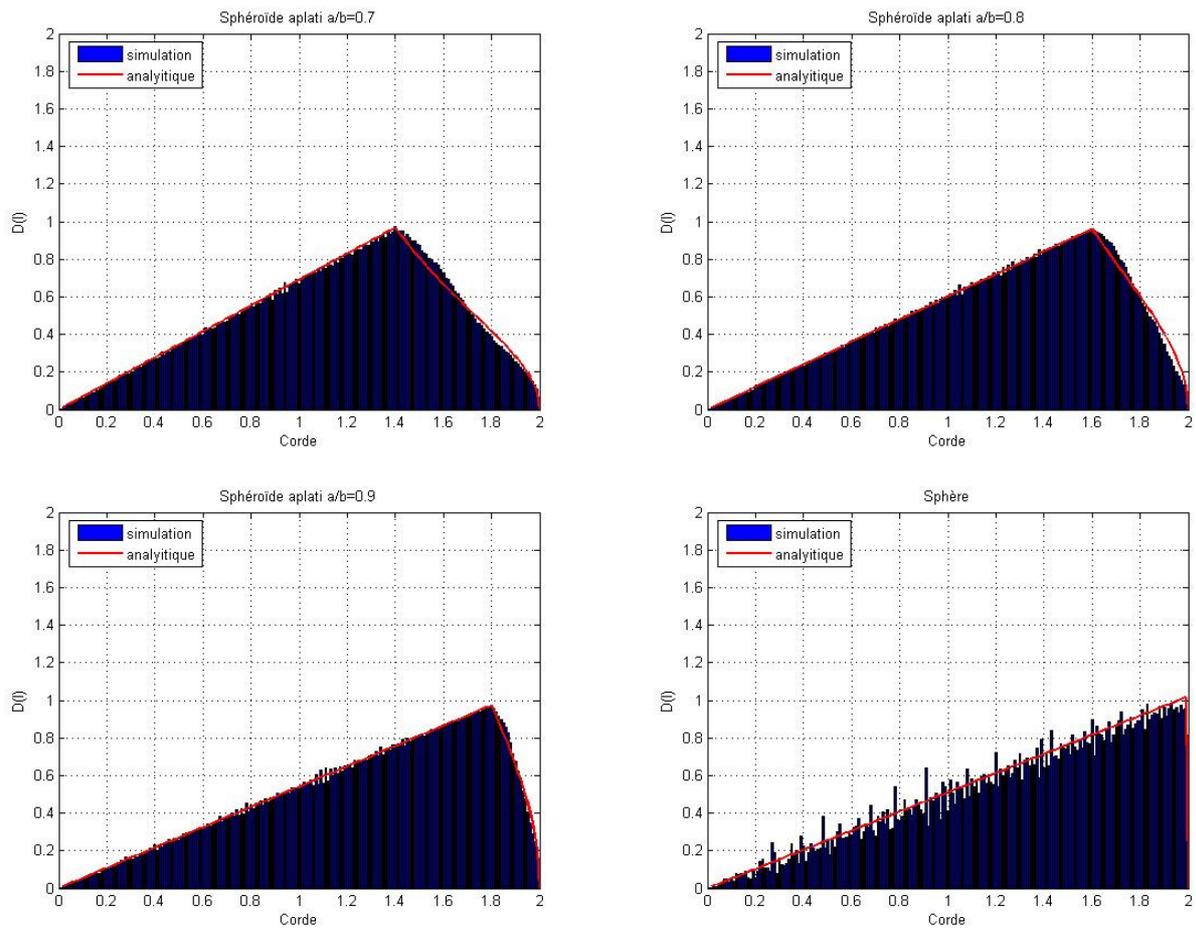


Figure B- I-16: Distribution des cordes pour un sphéroïde pour différents rapports des axes a et b (aplatis).

Remarque :

Nous avons voulu voir l'influence de la forme générale de l'objet équivalent. En comparant des géométries simples telles que la sphère et le cube, nous constatons que les distributions des cordes sont complètement différentes (au-delà du fait que le pas de la distribution des cordes pour le cube est de 0.02). La distribution des cordes d'un cube est décroissante et n'est pas régulière.

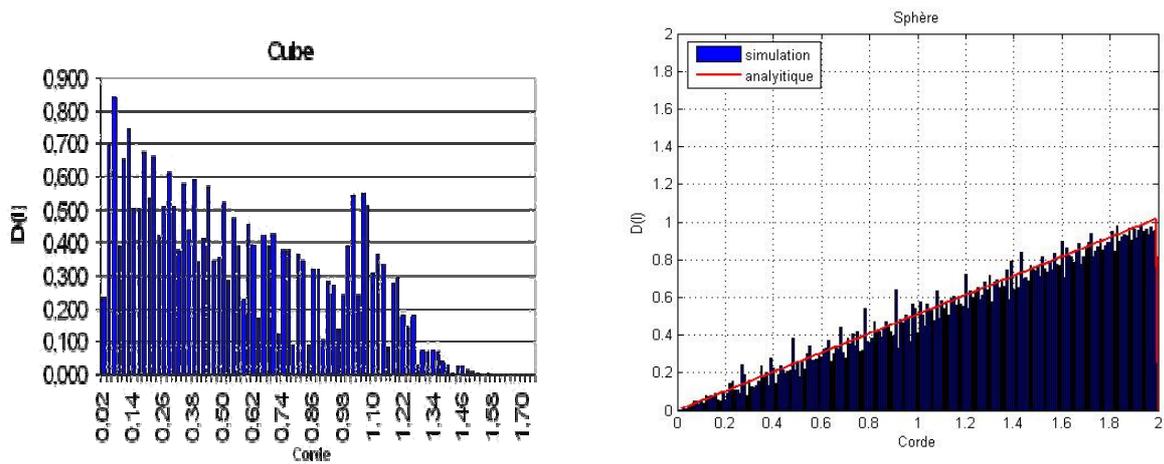


Figure B- I-17: Distribution des cordes pour un cube et une sphère.

En conclusion, le rapport des axes peut être un bon indicateur pour suivre l'évolution de la distribution mais il est important de rappeler que l'influence de la forme géométrique générale est non négligeable.

Peut-on déterminer un sphéroïde équivalent possédant la même distribution des cordes qu'un agrégat ?

B.I.4.2.b) Agrégats :

B.I.4.2.b) i) Distribution des cordes :

L'évaluation de longueurs des cordes suivant le type d'agrégat est à la base de la méthode DA laquelle peut être une bonne méthode approchée pour des paramètres de tailles (des particules primaires) importants.

Comparons la distribution des cordes d'un sphéroïde à celle d'un agrégat. Nous avons évalué la distribution des cordes des mêmes agrégats étudiés dans le paragraphe B.I.3 ; celle-ci est réalisée pour un jeu total de plus de 30 000 cordes.

On constate que celle-ci est différente de celle obtenue pour un sphéroïde (*Figure B- I-18, Figure B- I-19 et Figure B- I-20*). Ces figures représentent respectivement la distribution des cordes d'agrégats en configuration chaîne et compacte (avec 4, 8 et 16 particules primaires),

en configuration plan (avec 4, 16 et 64 particules primaires) et en configuration cube (avec 64 et 100 particules primaires).

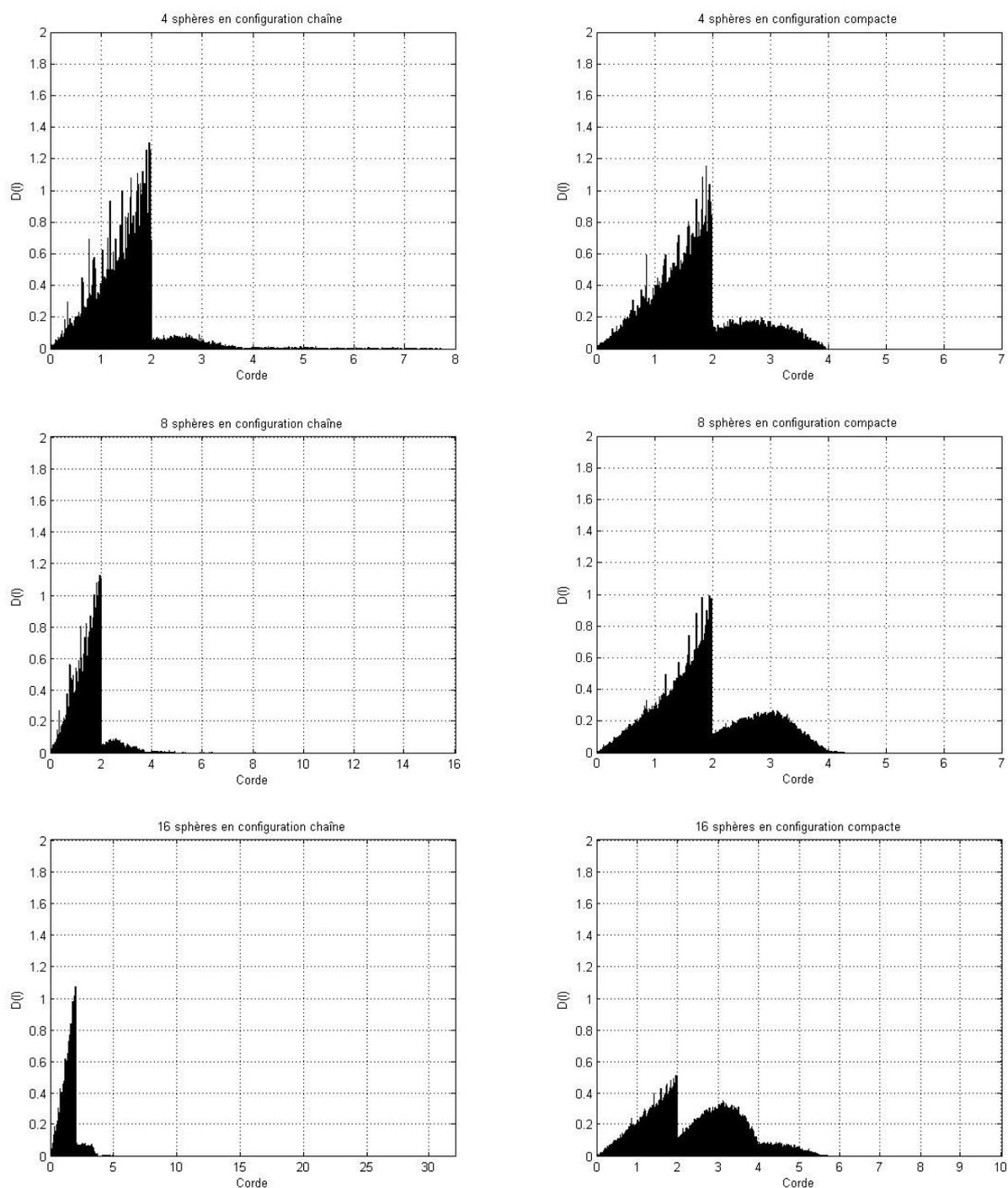


Figure B- I-18: Exemple de distribution des cordes pour des agrégats de 4, 8, 16 particules primaires en configuration chaîne et compacte

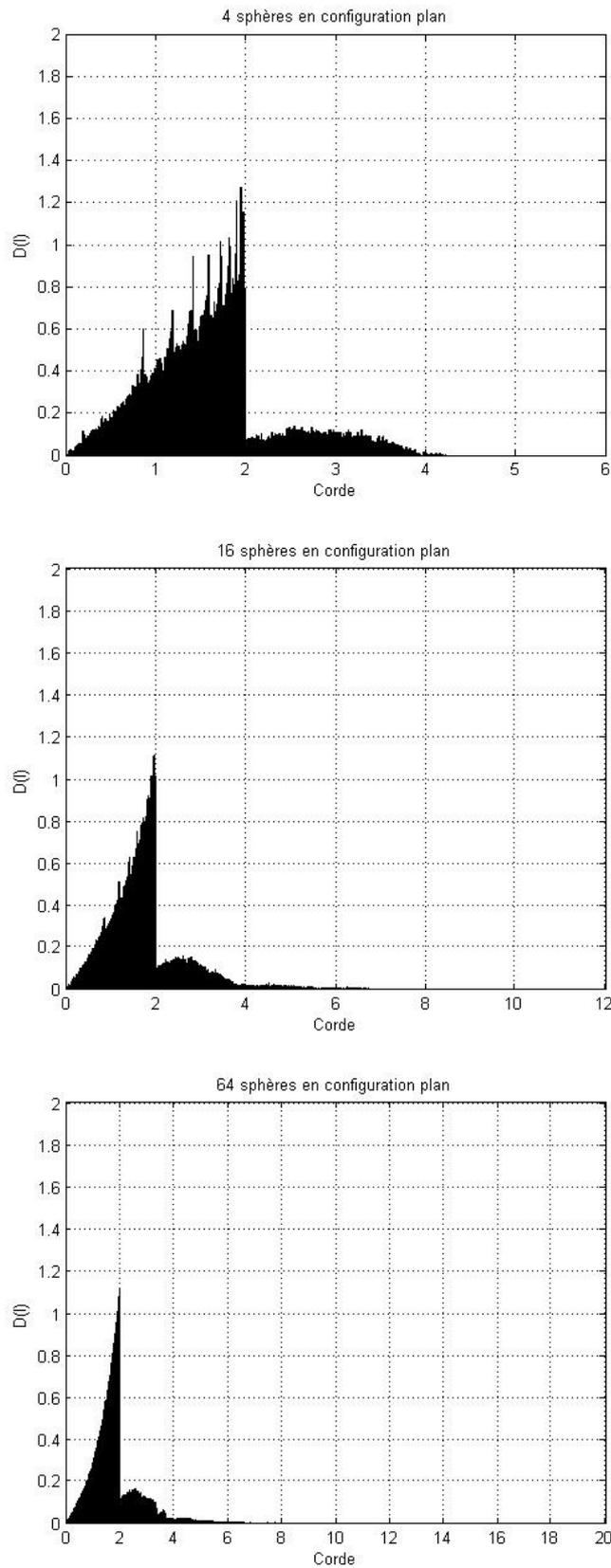


Figure B- I-19: Exemple de distribution des cordes pour des agrégats de 4, 16, 64 particules primaires en configuration plan.

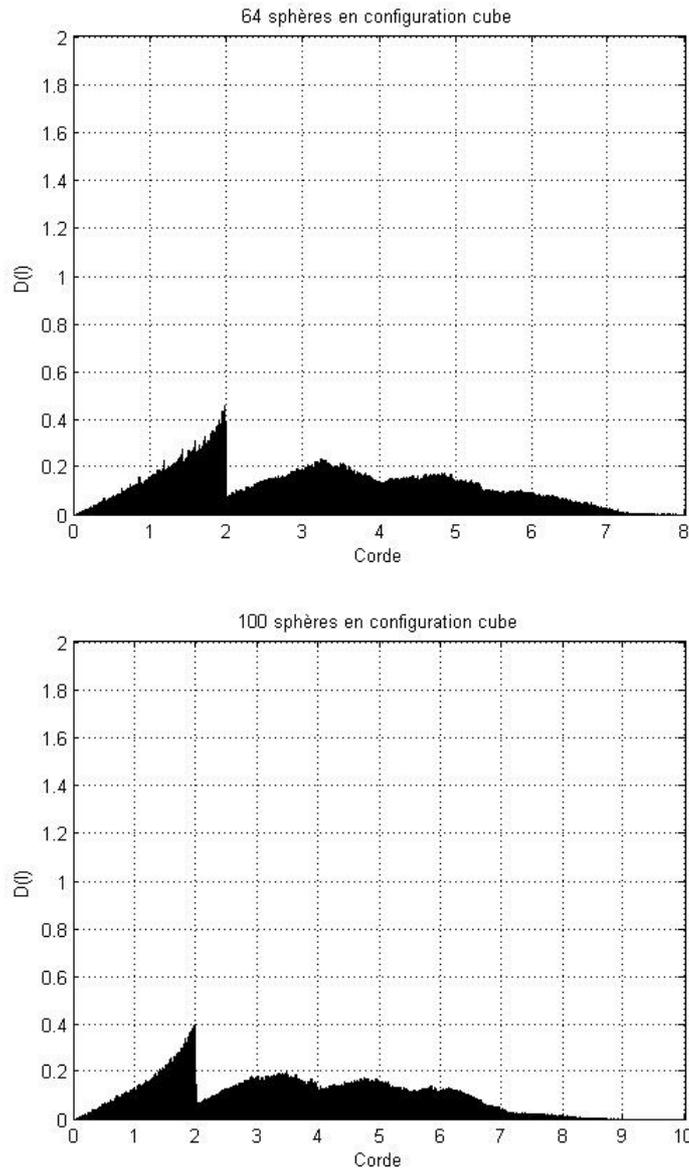


Figure B- I-20: Exemple de distribution des cordes pour des agrégats de 64 et 100 particules primaires en configuration cube.

On remarque que la distribution des cordes prend en considération la structure fine de l'agrégat (*Figure B- I-18* et *Figure B- I-19*) de façon notable. En effet, quelque soit le type d'agrégat, il apparaît dans la première partie de la distribution des cordes, une (sous) distribution analogue à celle d'une sphère (*Figure B- I-21a*), qui est la structure élémentaire constituant les agrégats traités. La seconde partie de la distribution est fonction de l'agencement général de cet agrégat. Cette deuxième partie de la distribution ne possède pas une amplitude supérieure à la première. Il est important de noter que la probabilité d'obtenir une corde égale à la plus grande dimension de l'agrégat est quasiment nulle.

Il apparaît donc difficile de représenter la distribution des cordes d'un agrégat par celle d'un sphéroïde.

Il est suggéré d'évaluer la distribution des cordes d'un agrégat à l'aide de distributions dites élémentaires, comme celle d'une sphère (*Figure B- I-21a*) ou d'un doublet (*Figure B- I-21b*).

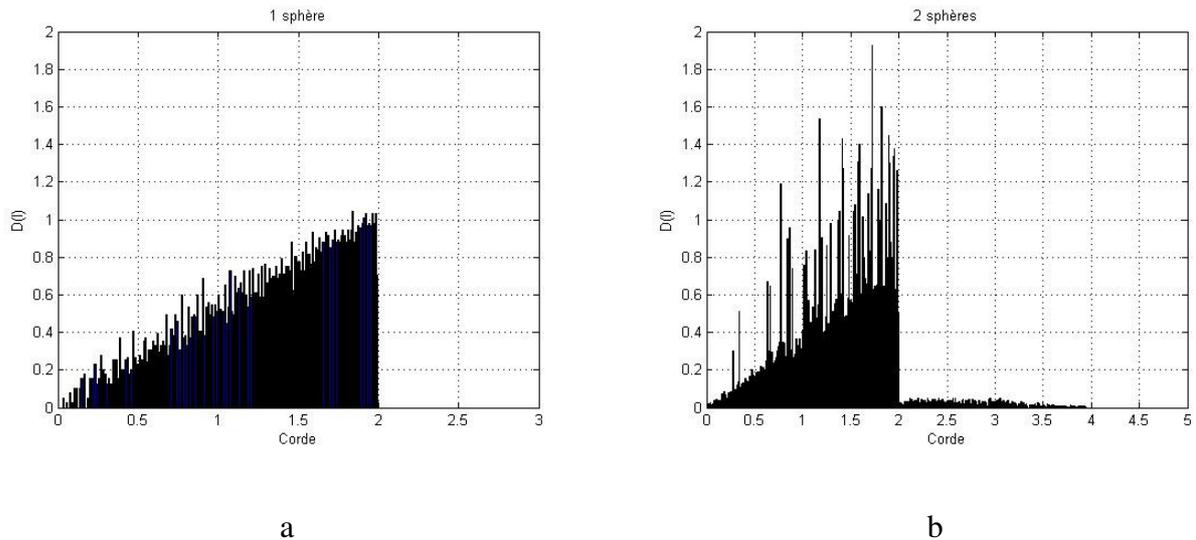


Figure B- I-21: Exemple de distribution des cordes pour une sphère (a) et un agrégat de 2 particules primaires (b).

B.I.4.2.b) ii) Approximation pour la distribution des cordes

- Démarche

La distribution des cordes d'un agrégat a été décomposée en trois sous-distributions. La première, correspondant à la structure élémentaire (une sphère), est dans l'intervalle de longueur de corde $[0 ; 2]$. La deuxième sous-distribution, semblant correspondre à la structure d'un doublet, a été définie entre 2 et 4. La dernière, correspondant à la partie restante, est comprise entre 4 et la longueur de corde maximale propre à chaque agrégat. Chacune de ces sous-distributions de cordes représente une partie de la distribution de cordes globale, leur proportion est propre à chaque agrégat. Le *Tableau B- I-9* contient la valeur (x_1, x_2, x_3) de l'intégrale de chaque sous-distribution de cordes pour chaque agrégat. L'intégrale de la distribution des cordes de l'agrégat est égale à 1 : $x_1 + x_2 + x_3 = 1$

Configuration	Nombre de particules primaires	x_1	x_2	x_3
Chaîne	2	0,959	0,0413	0
	4	0,915	0,0758	0,0092
	8	0,894	0,0897	0,0163
	16	0,891	0,102	0,007
Compacte	4	0,769	0,231	0
	8	0,672	0,327	0,001
	16	0,443	0,47	0,087
Plan	4	0,846	0,154	0
	16	0,786	0,182	0,032
	64	0,739	0,202	0,059
Cube	64	0,337	0,329	0,334
	100	0,293	0,297	0,41

Tableau B- I-9: x_1 , x_2 et x_3 sont les pourcentages alloués à chaque sous-distribution d'un agrégat avec $x_1+x_2+x_3=1$.

Les deux premières sous-distributions ont été clairement identifiées, mais la dernière distribution correspondant à la morphologie globale de l'agrégat est plus difficile à modéliser.

La première idée serait d'identifier cette sous-distribution comme étant celle de la sphère équivalente (en quantité de matière) à l'agrégat. Or la distribution de cordes d'une sphère est une fonction croissante de la longueur de corde. Assimiler la troisième sous-distribution de cordes à celle d'une sphère conduit à une distribution de cordes globale erronée d'autant plus que x_3 est non négligeable (*Figure B- I-20*) car cette troisième sous-distribution suit globalement une loi décroissante.

La deuxième idée est d'assimiler cette troisième sous-distribution de cordes, à celle de la forme géométrique équivalente. Prenons un exemple : dans le cas d'un agrégat de 64 particules primaires en configuration cube, la forme géométrique équivalente serait un cube. Les particules primaires utilisées ici sont des sphères de rayon 1 ; le cube aurait donc une longueur de côté 8 et la distribution de cordes de ce cube correspondrait qualitativement à celle de la *Figure B- I-17*. Ceci permettrait de retrouver le schéma de distribution de la *Figure B- I-24*. Un tel raisonnement implique de trouver pour chaque agrégat : un objet équivalent approchant sa forme générale, mais surtout, de connaître la distribution de cordes d'un tel objet. Cette idée n'est donc pas viable en pratique.

La solution simple permettant de reproduire la troisième sous-distribution est de considérer la sphère équivalente en volume mais en lui rattachant une distribution de cordes inversée, c'est-à-dire

$D(l) = \frac{2}{l_{\max}^2} (l_{\max} - l)$ au lieu de $D(l) = \frac{2l}{l_{\max}^2}$. Cet artifice permet de construire la

distribution de cordes des agrégats de la façon la plus simple et automatique qu'il soit.

La distribution de cordes d'un agrégat s'écrira : $Dg(l) = Da(l) + Db(l) + Dc(l)$

- Avec $Da(l)$ la sous-distribution de cordes rattachée à celle d'une sphère primaire $D_1(l)$:

$Da(l) = x_1 D_1(l)$. La distribution de cordes d'une sphère (primaire) obéit à l'équation :

$D(l) = pl$ avec p la pente de la droite ($p=1/2$).

- $Db(l)$ est la sous-distribution de cordes correspondant à la deuxième partie du doublet $D_2(l \in [2, 4])$. Afin d'améliorer la qualité de la distribution de cordes finale, nous avons choisi d'utiliser la deuxième partie de la distribution de cordes d'un agrégat de 4 sphères en

configuration tétraèdre soit $D_4(l \in [2, 4])$. On obtient : $Db(l) = x_2 \frac{D_4(l \in [2, 4])}{\int_2^4 D_4(l) dl}$.

- $Dc(l)$ correspond à la distribution de cordes inversée de la sphère équivalente en volume. La longueur de corde maximale d'une telle sphère est proportionnelle à la longueur de corde maximale d'une sphère primaire (qui est de 2), soit $l_{\max} = 2N^{1/3}$ avec N le nombre de particules primaires au sein de l'agrégat considéré. La distribution de la sphère équivalente

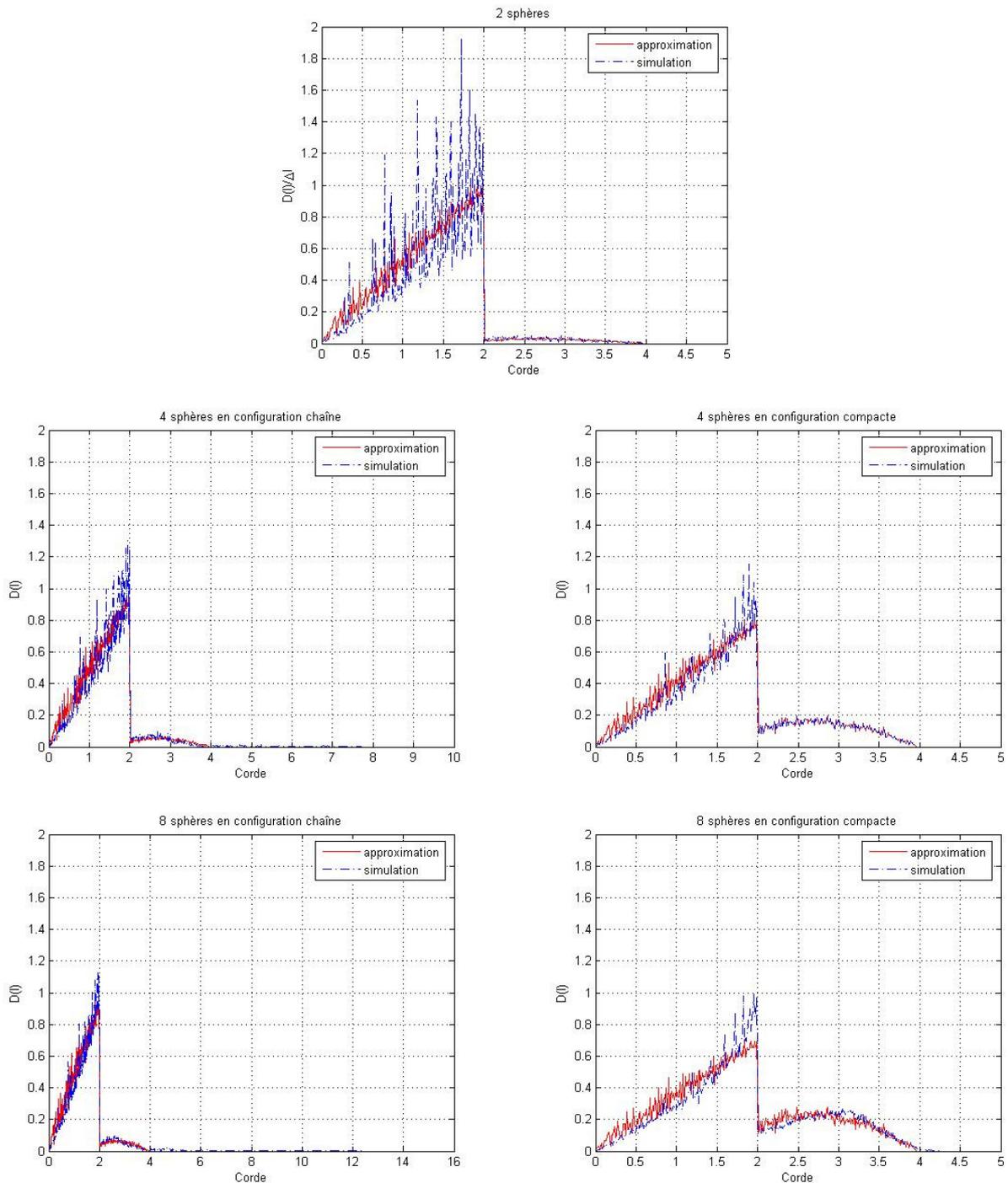
$D_{se}(l)$ est telle que : $\int_0^{l_{\max}} D_{se}(l) dl = \int_0^{l_{\max}} pl dl = 1$, soit $D_{se}(l) = \frac{l}{2N^{2/3}}$. La distribution de cordes

inversée de la sphère équivalente $D_{ise}(l)$ est : $D_{ise}(l) = \left(N^{-1/3} - \frac{l}{2N^{2/3}} \right)$. On aboutit ainsi

à : $Dc(l) = x_3 \frac{D_{ise}(l \in [4, l_{\max}])}{\int_4^{l_{\max}} D_{ise}(l) dl}$

- Résultats

Les Figures (B-I-22, B-I-23, B-I-24) comparent les distributions issues des simulations pour les agrégats étudiés et celles obtenues à l'aide des sous-distributions telles que nous les avons définies.



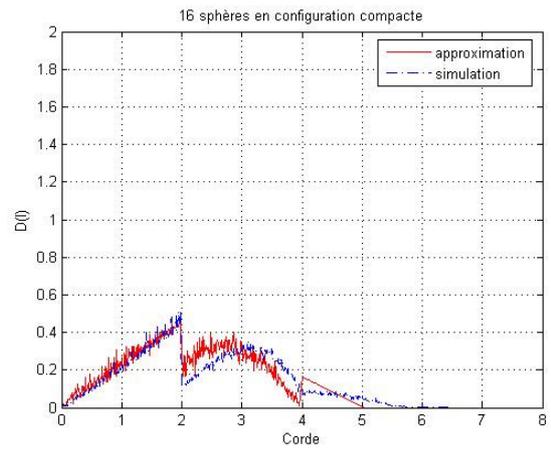
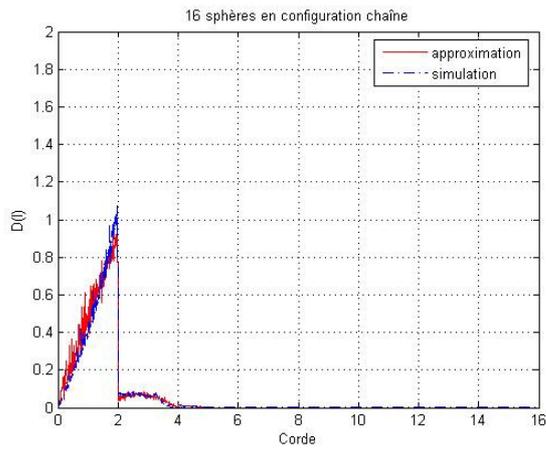
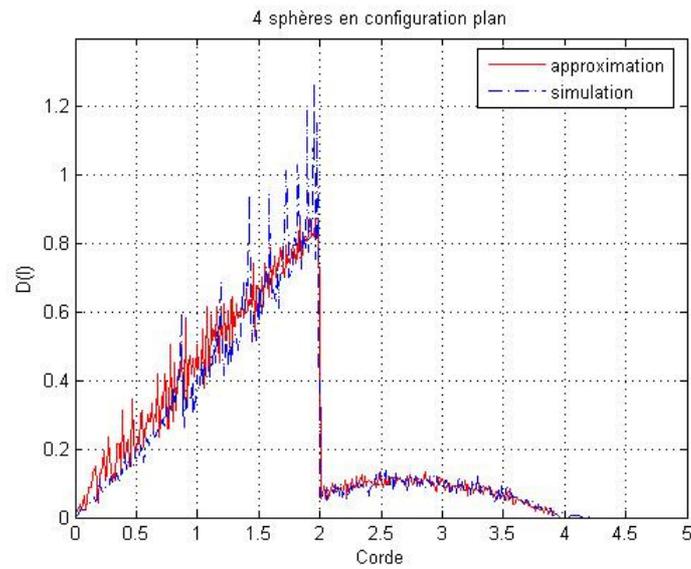


Figure B- I-22: Comparaison entre les distributions de cordes issues des simulations et celles reconstruites avec les sous-distributions de cordes (approximation), pour des agrégats de 2, 4, 8 et 16 particules primaires en configuration chaîne et compacte.



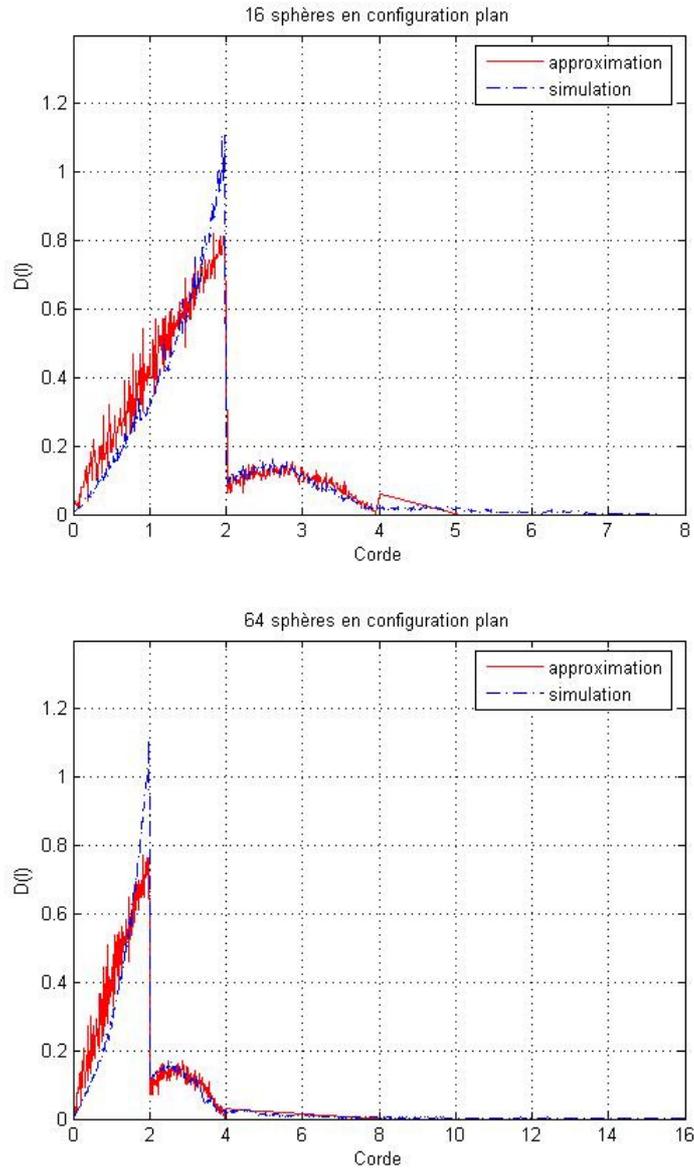


Figure B- I-23: Comparaison entre les distributions de cordes issues des simulations et celles reconstruites avec les sous-distributions de cordes (approximation), pour des agrégats de 4, 16 et 64 particules primaires configuration plan.

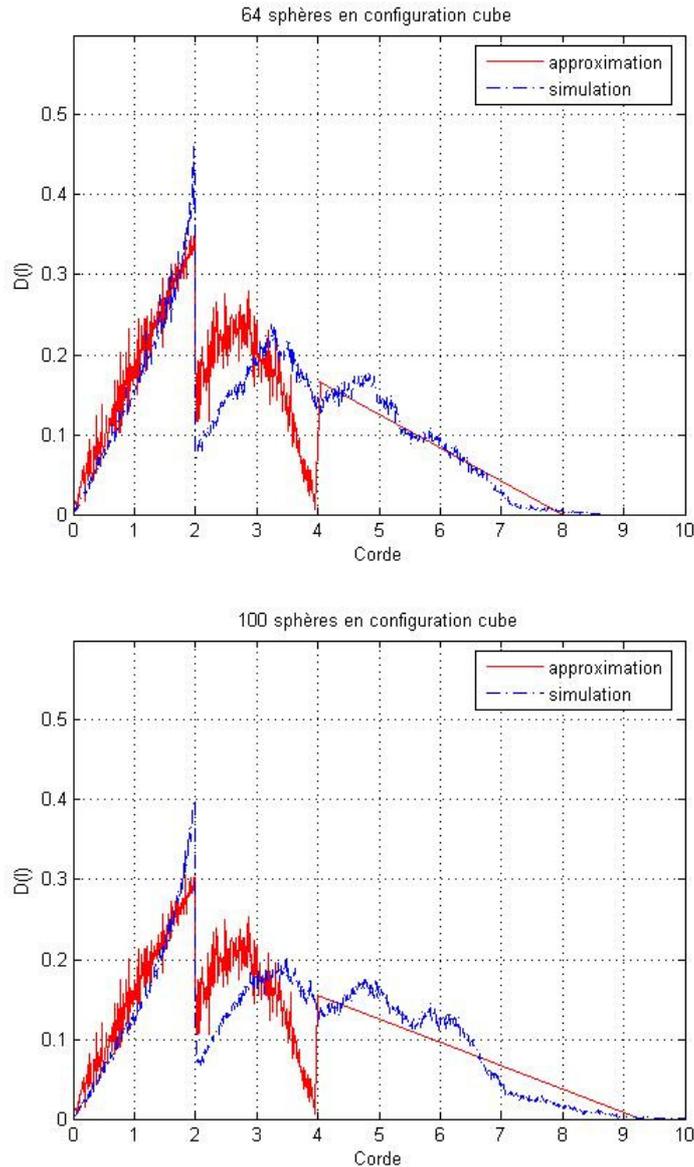


Figure B- I-24: Comparaison entre les distributions de cordes issues des simulations et celles reconstruites avec les sous-distributions de cordes (approximation), pour des agrégats de 64 et 100 particules primaires configuration cube.

Pour rendre plus aisée l'utilisation de cette approximation, nous avons déterminé x_1 , x_2 , x_3 en fonction de paramètres permettant de rendre compte de la morphologie de l'agrégat. Pour cela, nous proposons d'exprimer x_1 et x_3 en fonction du nombre N de particules primaires au sein de l'agrégat et de la distance inter-particule moyenne d_1 .

Sur la *Figure B- I-25* est représentée l'évolution de x_1 en fonction de N et d_1 pour 12 agrégats.

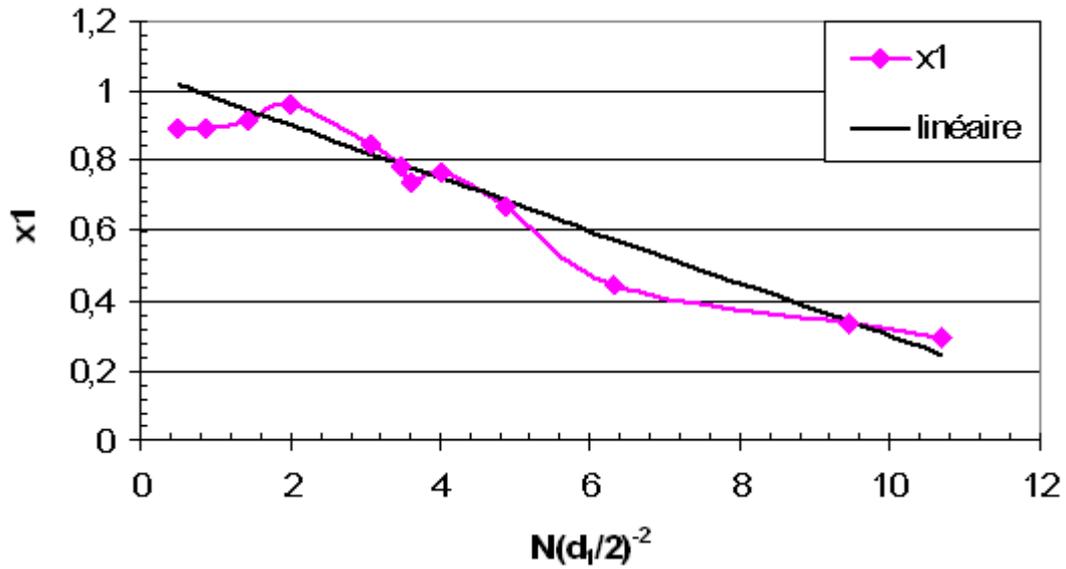


Figure B- I-25: x_1 en fonction du nombre de particules primaires N et de la distance inter particule moyenne d_1 .

A la suite de cette représentation, x_1 est défini comme suit :

Si $N\left(\frac{d_1}{2}\right)^{-2} < 2$ $x_1 = 0.95$ sinon $x_1 = 1.05 - 0.076N\left(\frac{d_1}{2}\right)^{-2}$. x_1 est ainsi évalué avec une erreur moyenne de 7%

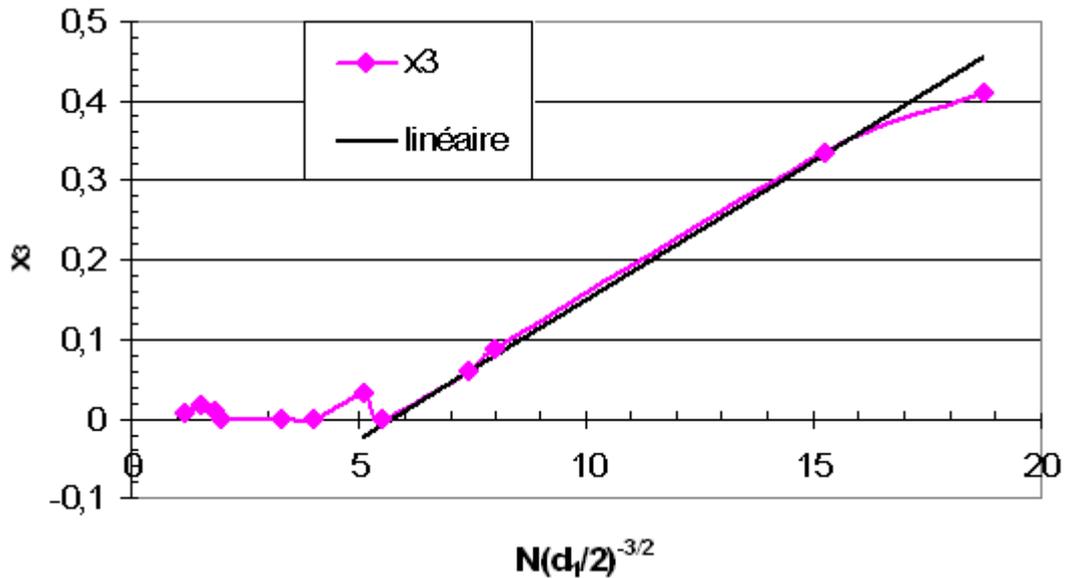


Figure B- I-26: Evaluation de x_3 en fonction du nombre de particules primaires N et de la distance inter particule moyenne d_1 .

De même, la *Figure B- I-26* représente l'évolution de x_3 en fonction de N et d_1 .

Si $N\left(\frac{d_1}{2}\right)^{-3/2} < 5.6$ $x_3 = 0$ sinon $x_3 = 0.035N\left(\frac{d_1}{2}\right)^{-3/2} - 0.2$. L'erreur moyenne commise sur x_3 est alors de 5%

Connaissant x_1 et x_3 il est alors possible de calculer x_2 :

$x_2 = 1 - x_1 - x_3$ avec une erreur moyenne de 12%

En conclusion :

- Quelque soit le type de sphéroïde (oblong ou aplati), les résultats des simulations sont en accord avec la théorie, l'algorithme de calcul permettant d'accéder à la distribution des cordes peut être utilisé dans le cas des agrégats où cette distribution n'est pas analytiquement accessible.
- La distribution des cordes prend en considération la structure fine de l'agrégat de façon notable. Il est donc difficile de représenter la distribution des cordes d'un agrégat par celle d'un sphéroïde.
- La distribution des cordes d'un agrégat a été décomposée en trois sous-distributions. Chacune de ces sous-distributions de cordes représente une partie de la distribution de cordes globale, leur proportion est propre à chaque agrégat.
- La proportion de ces sous-distributions a été exprimée en fonction de paramètres permettant de rendre compte de la morphologie de l'agrégat (du nombre N de particules primaires au sein de l'agrégat et de la distance inter-particule moyenne d_1).

Ainsi nous avons mis en place une méthode de calcul de la distribution de cordes pour un agrégat. Cette méthode sera employée ultérieurement pour améliorer les temps de calcul de la méthode approchée DA.

B.I.5. Bilan

Dans ce chapitre, nous avons décrit géométriquement un agrégat en cherchant plus particulièrement les dimensions d'un objet équivalent à cet agrégat en utilisant les distributions des surfaces projetées et des cordes.

Tout d'abord, nous avons vérifié sur des géométries sphéroïdales que les algorithmes de calculs de ces distributions étaient en accord avec les distributions obtenues de façon analytiques. Une fois ces algorithmes validés, ils ont été utilisés au cas des agrégats pour lesquels les distributions analytiques étaient inconnues.

L'étude de ces distributions nous a conduit aux résultats suivants :

- un agrégat peut être remplacé par le sphéroïde ayant la distribution des surfaces projetées la plus proche de la sienne et la même surface projetée moyenne.
- la distribution des cordes d'un agrégat est complètement différente de celle d'un sphéroïde ; il n'est donc pas possible à l'aide de la distribution des cordes de définir les dimensions d'un sphéroïde équivalent. Néanmoins, à la suite de cette étude, la distribution de cordes pour un agrégat a été formulée de façon quasi-analytique. Cette expression sera employée ultérieurement pour améliorer les temps de calcul de la méthode approchée DA.

La description géométrique des agrégats en 3D étant réalisée, et ayant à notre disposition de nouveaux outils permettant de rendre compte de cette géométrie, nous allons dans le prochain chapitre expliciter les conditions de l'étude des propriétés optiques.

Chapitre II Conditions de l'étude des propriétés optiques

Dans un premier temps nous avons résumé les difficultés afférentes à la programmation de la méthode exacte. Par la suite, nous définirons les types d'agrégats utilisés.

B.II.1. Programmation de la méthode exacte

Nous avons au début de cette thèse repris le code de calcul, intitulé Scataggl, développé par Uwe Kätzel au laboratoire (Kätzel 2003) sous Delphi 6. Il reposait sur les articles de Xu . Bien qu'un très bon travail de programmation fut fait, il s'est avéré que la convergence vers une solution, dans le cas d'indice de réfraction fort (2.7), conduisait à des valeurs erronées (paramètre d'asymétrie négatif et valeur absolue de ce dernier largement supérieure à 1). Nous avons donc essayé, dans un premier temps, de corriger cette erreur (Annexe B.II):

- en mettant en défaut la méthode de résolution du système linéaire,
- en utilisant des pré-conditionneurs (Saad 2000),
- en changeant l'algorithme de calcul pour les fonctions de Bessel et de Legendre ;
- En remettant en question le critère de Wiscombe,

malheureusement sans succès.

Partant du principe que le logiciel MATLAB était le plus adapté à la programmation de ce type de problème, nous avons entièrement, réécrit le code de calcul, donnant naissance à MeGMM. En ayant cette fois-ci éliminé le « bug » dans le cas d'indice fort, nous avons réalisé les mêmes vérifications que celles utilisées par U. Kätzel :

- Les coefficients de Gaunt ($a(m, n, \mu, \nu, p)$) utilisés dans (B.36) et (B.37) avec (Xu 1997) et (Xu 1998),
- Les coefficients de translation de vecteur (VTC : $A_{m\mu\nu}^{lj}, B_{m\mu\nu}^{lj}$) des équations : (B.36) et (B.37) avec (Xu 1998),

- Les valeurs des propriétés diffusantes obtenues par Xu lors d'articles où il compare théorie et expérience : (Xu and Gustafson 2001) et (Xu 2003).

Nous avons également comparé les valeurs des propriétés diffusantes obtenues à partir du programme de Xu (gmm01s écrit en Fortran et disponible sur le web) avec MeGMM, qui nous ont donné pleine satisfaction, contrairement à celles obtenues avec Scataggl (exemple d'un doublet Annexe B.II.).

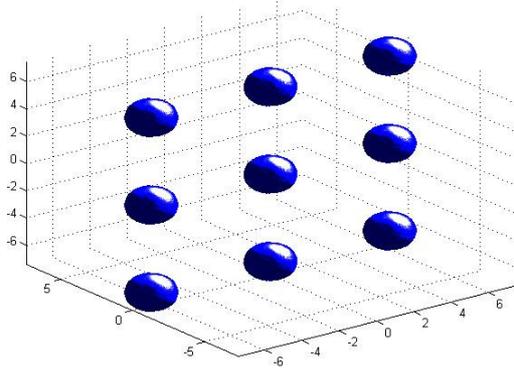


Figure B- II-1: Configuration C1, extraite de (Auger and Stout 2003)

Finalement, nous avons comparé nos valeurs (Annexe B.I.) à celles obtenues par Auger et Xu (Auger and Stout 2003) pour des configurations de sphères en plan (*Figure B- II-1*) comme nous l'avons annoncé plus haut ; malheureusement, dans ce cas, notre programme semble avoir une nouvelle faille (Annexe B.II.). Sachant que Xu et Auger parviennent au même résultat avec deux méthodes de calcul différentes, il apparaît évident que notre programme comporte encore une erreur, qu'il n'a pas été possible à l'heure actuelle de détecter.

Il a donc été décidé d'utiliser le programme de Xu, disponible sûr le web, pour être sûr de comparer les méthodes approchées évoquées plus haut (et but de cette thèse) avec un programme « parfait » de la méthode exacte.

B.II.2. Type d'agrégat

La morphologie des agrégats étudiés a été décrite dans le paragraphe B.I.1.

Les particules primaires sphériques constituant l'agrégat ont toutes le même rayon. Nous avons fait varier ce dernier pour que notre étude porte sur une large gamme de paramètres de taille (entre 0.01 et 10). La limite supérieure est déterminée par la capacité mémoire de nos ordinateurs mais également pour avoir un temps de calcul raisonnable lors de l'utilisation de la méthode exacte.

Nous avons choisi trois matériaux possédant des indices de réfraction très différents tels que la silice SiO₂, l'alumine Al₂O₃ et le dioxyde de titane TiO₂. Les suspensions aqueuses correspondantes sont fréquemment utilisées au laboratoire et dans l'industrie. Ces matériaux

sont considérés comme non absorbants. Avec une lumière incidente du type laser HeNe ($\lambda=632.8$ nm), leurs indices optiques sont respectivement 1.45, 1.77, 2.58. Les agrégats sont considérés en suspension dans l'eau dont l'indice optique est pris égal à 1.332.

B.II.3. Condition de comparaison :

B.II.3.1 Moyenne sur les orientations

Quelque soit la forme de l'agrégat celui-ci est mobile en solution ; son orientation vis à vis de l'onde incidente est donc à priori aléatoire. Or dans certain cas, l'hydrodynamique de la solution peut favoriser l'orientation de certaine géométrie, comme par exemple un agrégat en configuration chaîne dans un écoulement laminaire. Il est donc possible d'envisager que sous certaines conditions expérimentales, l'orientation des agrégats peut être pressenti, ou imposé par un autre dispositif. Ce cas d'étude est particulier et demanderait un approfondissement au cas par cas. Nous resterons dans ce mémoire de thèse dans le domaine général et simplifié où l'orientation est aléatoire. Il est donc nécessaire d'effectuer une moyenne des propriétés optiques sur l'ensemble des orientations possibles. Ceci a été réalisé à l'aide du programme gmm02TrA ((Xu 2003) et (Xu and Khlebtsov 2003)).

B.II.3.2 Temps de calcul

L'ensemble des valeurs présentées dans ce texte ont été réalisées avec trois ordinateurs dont les caractéristiques sont les suivantes :

N°1	N°2	N°3
AMD Duron™ Processor	AMD Athlon™	Pentium ®
1.01GHz ,1Go de Ram	1.25GHz ,2Go de Ram	2.99GHz, 504Mo de Ram

La mémoire vive nécessaire et le temps de calcul pour obtenir les propriétés optiques avec la méthode exacte sont fonction du nombre de particules primaires au sein de l'agrégat et de leur paramètre de taille. A titre indicatif pour un agrégat de 16 particules primaires de rayon 0.2 μm le CPU est de plusieurs minutes avec l'ordinateur n°3. Dans le cas d'une étude

commerciale, il serait intéressant à l'aide de la loi de Moore, d'évaluer le temps nécessaire à l'apparition de matériels informatiques grand public permettant d'utiliser une méthode exacte. Cette étude n'a pas été réalisée ici car la recherche de méthode approchée se situe dans le cas d'une recherche active à un problème immédiat (attendre l'évolution des systèmes informatiques serait une attitude de recherche passive). De plus la démarche effectuée au cours de cette étude contribue à la compréhension de phénomènes physiques généraux.

B.II.4. Bilan

Les conditions de l'étude et les moyens mis en œuvre étant définis :

- type d'agrégat : forme, matériaux, gamme de paramètres de taille,
- moyenne des propriétés optiques sur l'ensemble des orientations,

Nous allons maintenant présenter dans les chapitres suivants, les résultats, en commençant par l'étude des propriétés optiques d'un agrégat.

Chapitre III Caractérisation avec la méthode exacte

Ce chapitre est décomposé en deux sous-parties. Dans la première, nous traiterons la section efficace de diffusion, utilisée en turbidimétrie des suspensions diluées. Puis dans la seconde, nous examinerons la section efficace de pression de radiation utilisée lorsque la suspension est concentrée. Les sections efficaces sont obtenues avec la méthode exacte GMM (Xu) dans le cas d'un agrégat et la théorie de Mie dans le cas d'une sphère seule.

B.III.1. La section efficace de diffusion

Dans cette partie nous allons étudier l'évolution de la section efficace de diffusion en fonction du paramètre de taille, pour les différents types d'agrégats présentés dans le *Tableau B- I-1*. Nous commencerons par la section efficace de diffusion C_{sca} pour une sphère de rayon x .

B.III.1.1 Une sphère

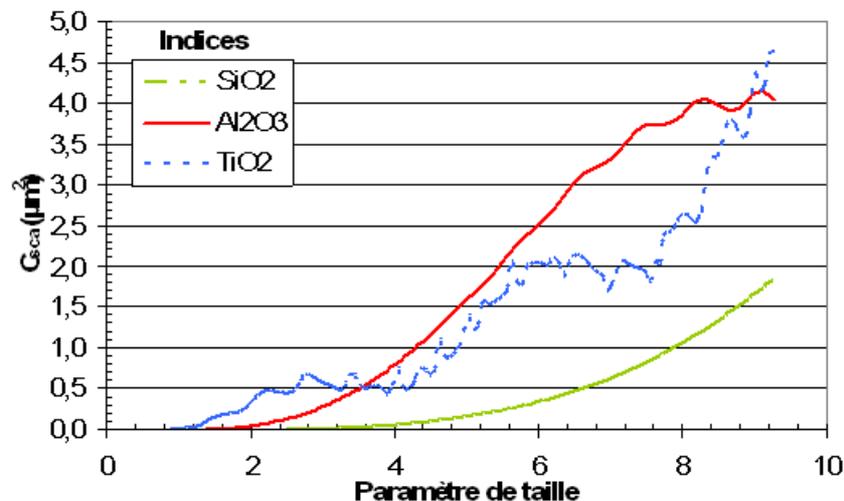


Figure B- III-1: Section efficace de diffusion pour trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) en fonction du paramètre de taille.

Cette figure illustre l'utilité de contrôler la taille des particules. En effet, on voit que la section efficace de diffusion augmente avec le paramètre de taille ($\alpha = 2 \cdot \pi \cdot x / \lambda$) mais qu'un indice fort ne garantit pas nécessairement un C_{sca} supérieur. Par exemple dans l'intervalle de α compris entre environ 4 et 8, les particules d'alumine diffusent plus que celles de dioxyde de titane.

On peut également remarquer que la courbe relative au TiO_2 ondule légèrement. La première explication est que les coefficients de Mie (a_n et b_n) dans l'équation (A.42) sont à la résonance. On explique ce phénomène par le fait, qu'un rayon arrivant sur la sphère suivant un angle limite, entre dans la sphère et s'y retrouve piégé, en se réfléchissant indéfiniment sur la surface intérieure. Ainsi cette énergie perdue à l'intérieur de la sphère contribue à augmenter l'extinction.

Des ondulations de faibles périodes et amplitudes sont visibles pour Al_2O_3 et TiO_2 ; ceci est dû au fait qu'un rayon passant à travers une particule subit un déphasage entraînant des interférences constructives ou destructives avec les autres rayons.

Nous allons maintenant regarder successivement l'influence: du nombre de particules primaires au sein d'un agrégat et de la forme de ce dernier pour un même nombre de particules primaires, sur la section efficace de diffusion. Pour cela, nous avons défini un nombre sans dimension R_{Xu} comme étant le rapport entre le C_{sca} d'un agrégat ($C_{Xu,N}$) et le C_{sca} de ces N particules considérées indépendantes $NC_{Mie,1}$:

$$R_{Xu} = \frac{C_{Xu,N}}{NC_{Mie,1}} \quad (\text{B.24})$$

B.III.1.2 Effet du nombre de particules primaires

Nous avons testé deux types de configuration, d'une part la configuration en chaîne (1^{ière} colonne) et d'autre part la configuration compacte (2^{ième} colonne) pour chaque type d'indice de réfraction (une ligne par indice), suivant un paramètre de taille (des particules primaires) allant de 0.01 à 10 . Nous examinerons l'influence du nombre de particules constituant l'agrégat.

Tout d'abord, sur la *Figure B- III-2* on remarque qu'il existe effectivement deux domaines de α (rejoignant ainsi les remarques de (Auger, Barrera et al. 2002)) quelque soit l'indice ou la configuration. Dans l'un, R_{Xu} est largement supérieur à 1, et dans l'autre R_{Xu} est compris entre 0 et 2. Malheureusement la limite entre les deux domaines dépend non seulement de l'indice du matériau mais également du nombre de particules primaires et de la configuration ; un travail afférant à la recherche de ce paramètre de taille limite est résumé en Annexe B.III. Néanmoins, cette transition est pour un paramètre de taille avoisinant les 2 (*Figure B- III-4*)

excepté pour le cas d'un grand nombre de sphères, dans une configuration compacte, avec un indice faible (SiO_2). Examinons ce premier domaine ($\alpha \in [0,2]$).

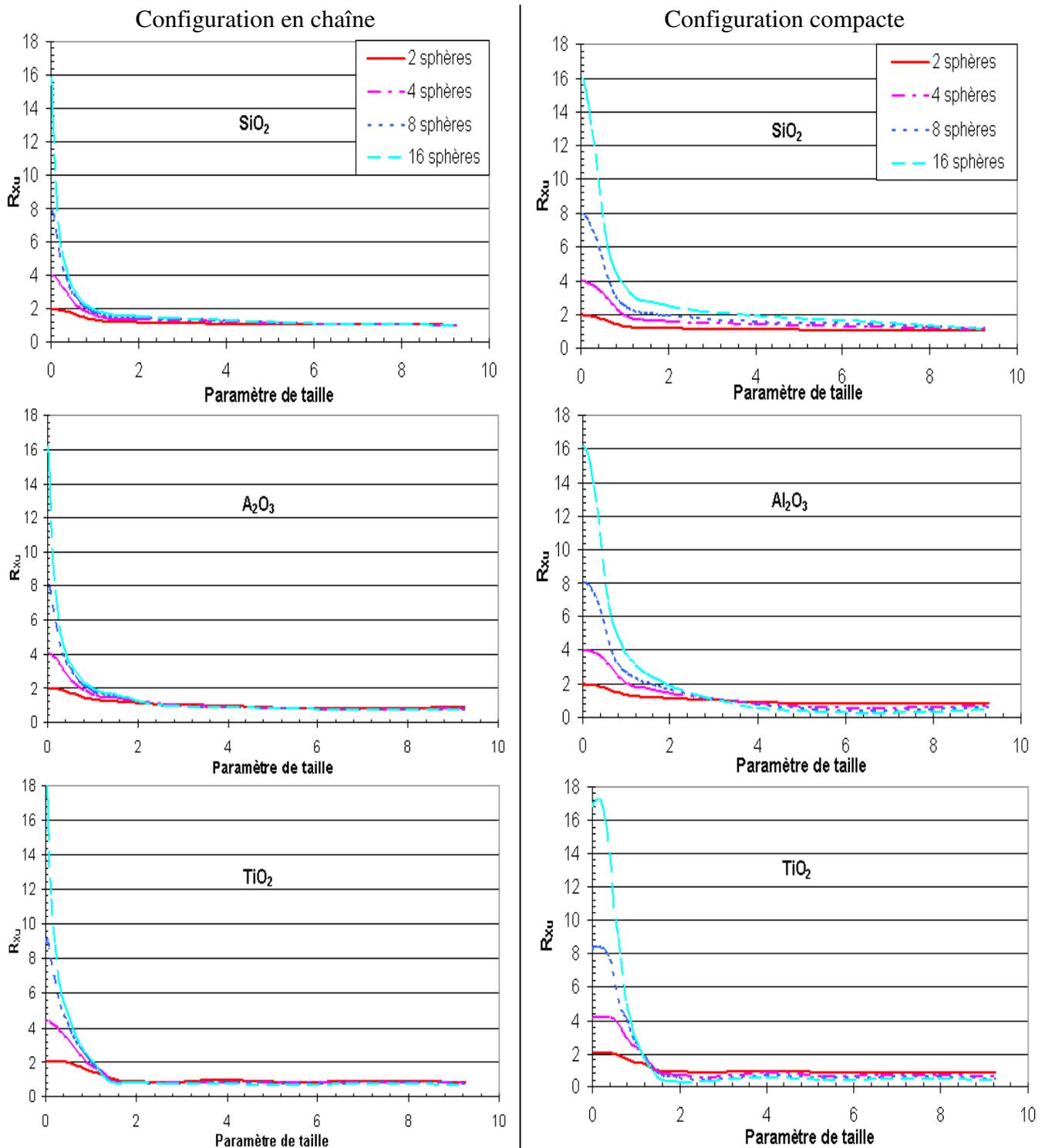


Figure B- III-2: Allure générale des courbes obtenues pour une configuration en chaîne (colonne de gauche), et une configuration compacte (colonne de droite)

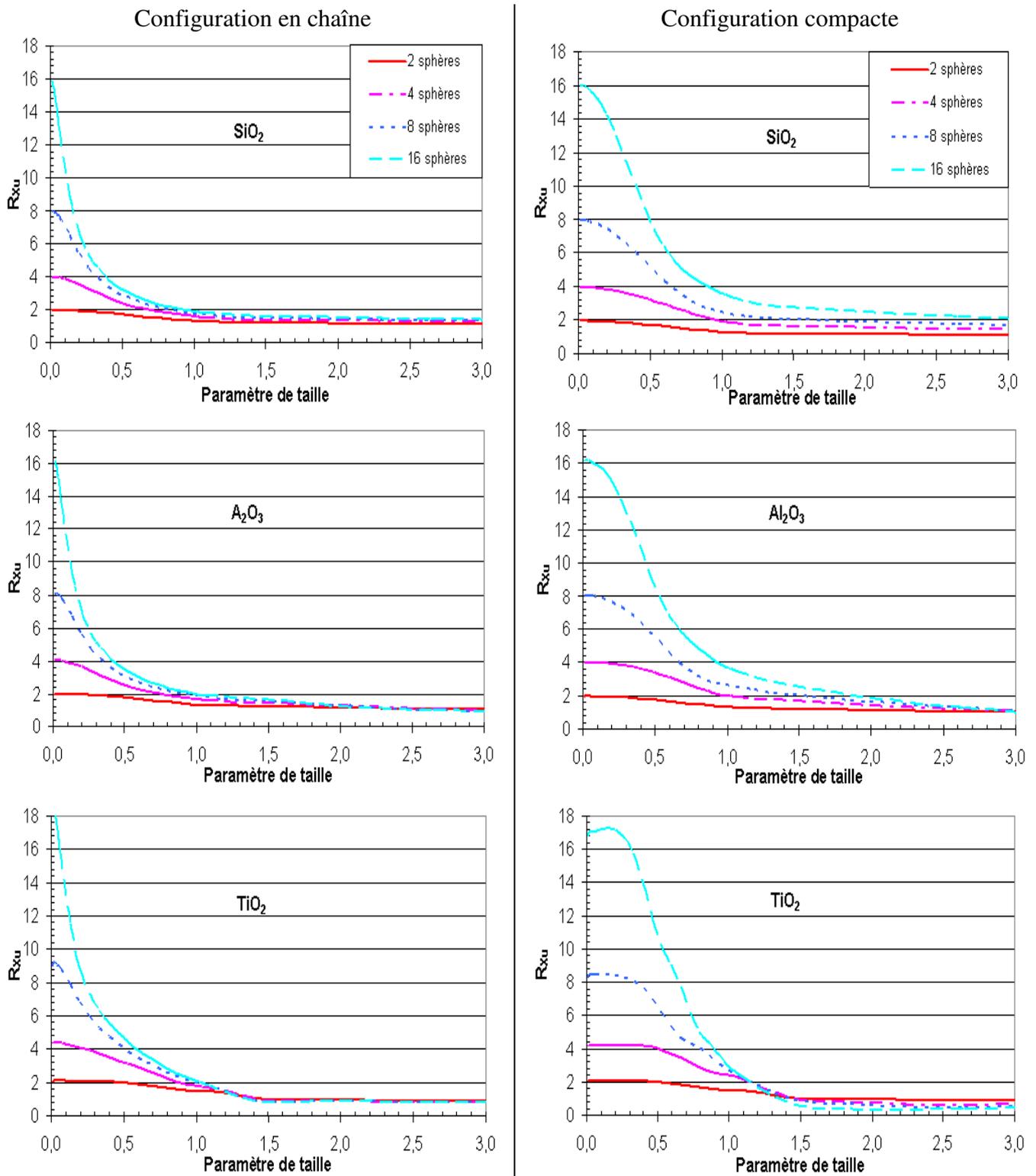


Figure B- III-3: idem que Figure B- III-2 mais pour un paramètre de taille maximal de 3

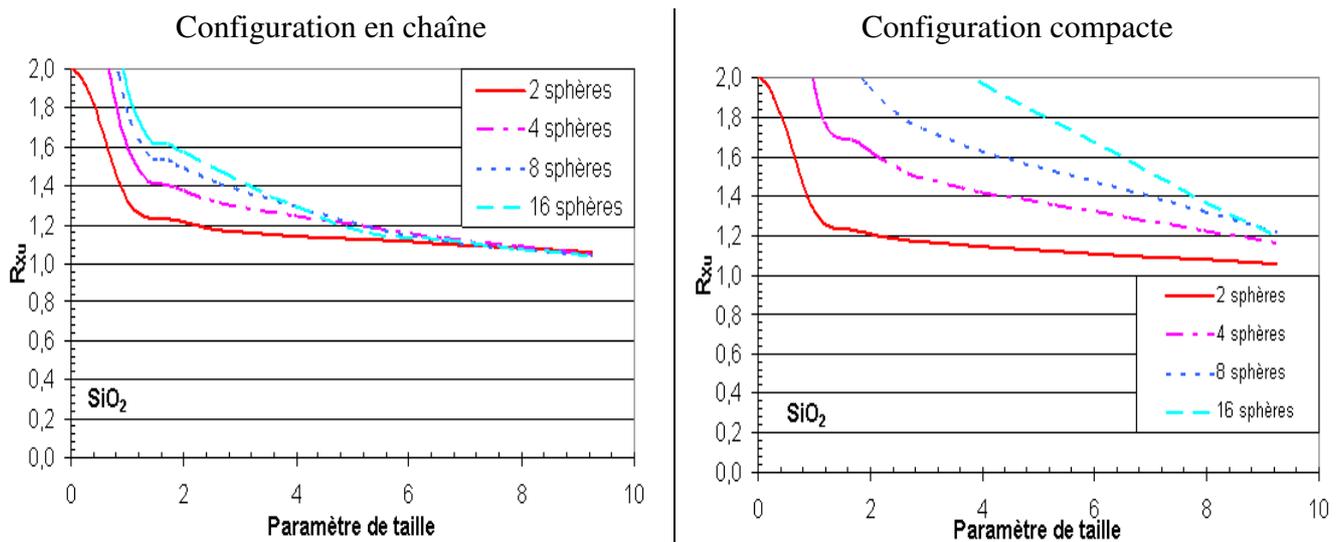
- Domaine 1 : $\alpha \in [0;2]$

Sur la Figure B- III-3, deux remarques sont possibles. D'une part, plus le nombre de particules primaires est important, plus la section efficace de diffusion est importante et ce

quelque soit la configuration. En effet, pour les deux premiers indices de réfraction (SiO_2 et Al_2O_3), dans le cas de très faibles paramètres de taille : la section efficace de diffusion d'un agrégat est proportionnelle au produit du carré du nombre de particules qui le compose et à la section efficace de diffusion de la particule primaire. $C_{Xu,N} \propto N^2 C_{Mie,1}$. Cette relation est vérifiée à une moindre échelle par des agrégats de TiO_2 . D'autre part la forme du pic semble dépendre de la configuration.

- Domaine 2 : $\alpha \in [2;10]$

Tout d'abord nous n'obtenons pas un palier pour des paramètres de taille élevés exactement égal à 1, comme si la section efficace de diffusion de l'agrégat était la somme de celle de chaque particule primaire. De plus, si on regarde la première colonne de la *Figure B- III-4*, le nombre de particules primaires présentes dans l'agrégat ne joue pas un rôle prédominant contrairement à la deuxième colonne.



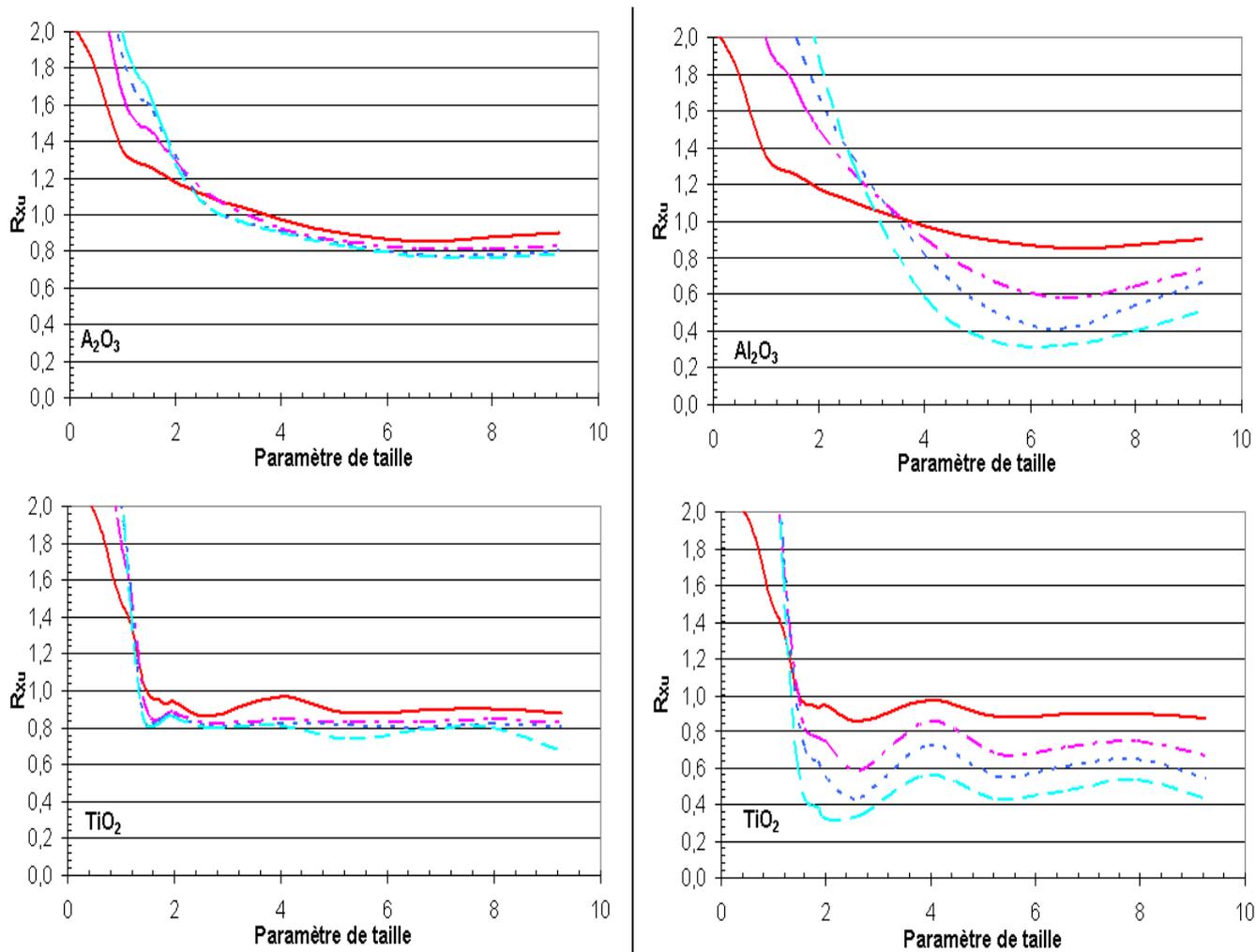


Figure B- III-4: idem que la Figure B- III-2 mais avec R_{xu} entre 0 et 2

En conclusion, la section efficace de diffusion de l'agrégat semble proportionnelle au nombre de particules primaires, le facteur de proportionnalité est lui-même fonction de la configuration de l'agrégat considéré.

Il est donc important d'examiner l'influence de la forme de l'agrégat en fixant le nombre de particules primaires en son sein.

B.III.1.3 Effet de la morphologie

L'ensemble des figures de cette section est présenté pour les deux domaines définis dans l'étude précédente. La première colonne est utilisée pour étudier le premier domaine, tandis que la dernière nous renseigne sur le deuxième. Nous avons également gardé la même présentation, à savoir que chaque ligne du panel représente un même indice de réfraction. De plus, pour avoir toujours un point de repère d'une série de courbe à une autre, nous avons conservé, sur toutes les figures, le cas du doublet. Il est notre fil rouge.

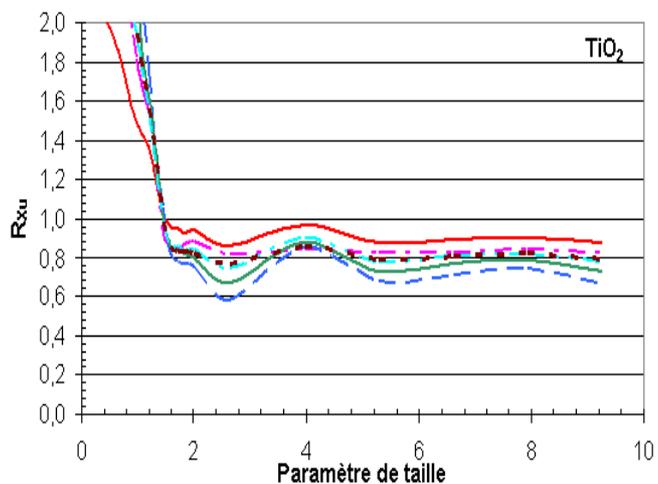
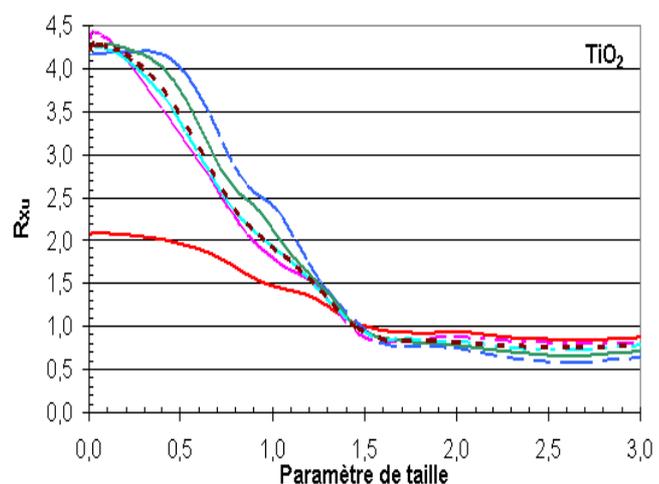
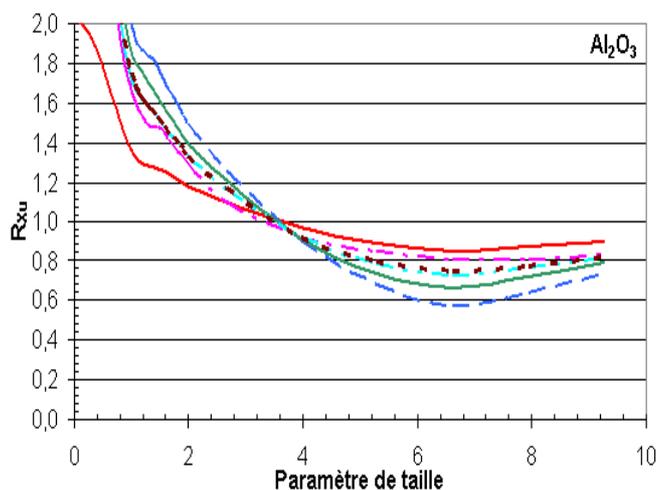
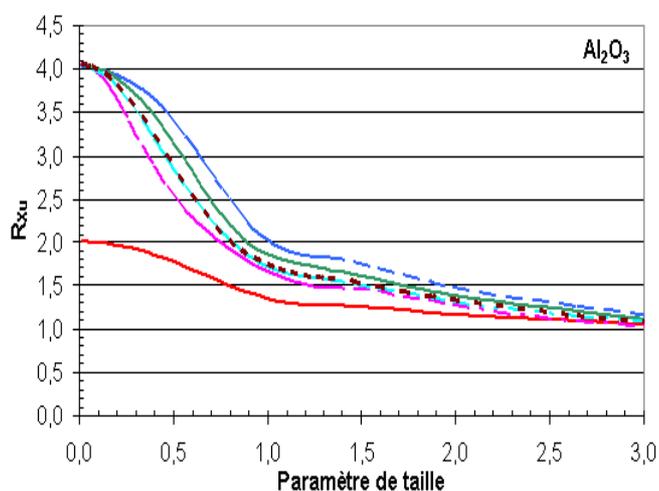
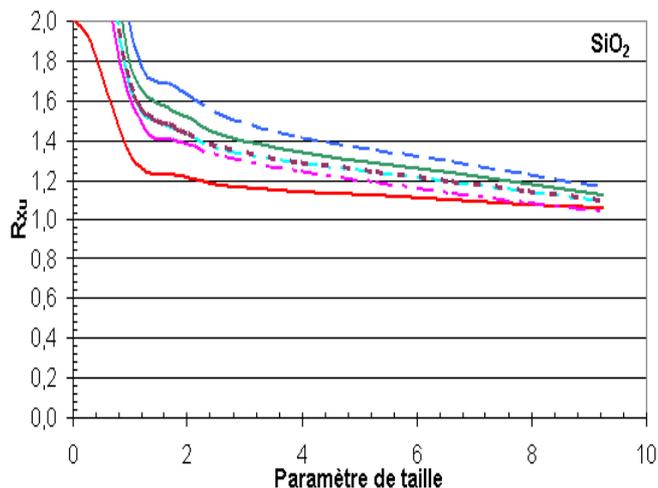
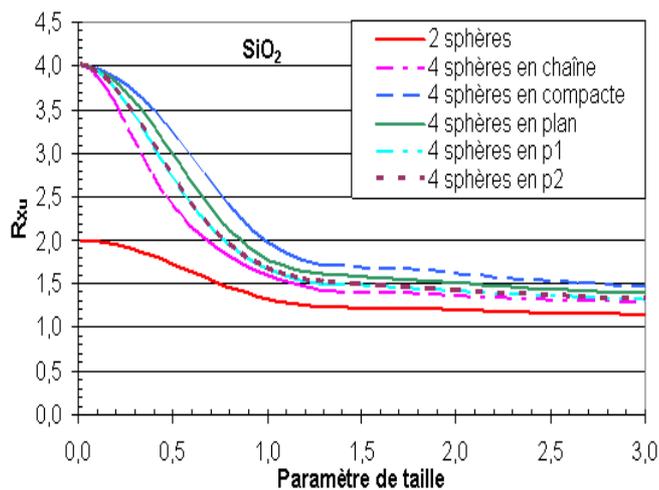


Figure B- III-5: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 4 sphères primaires.

Il semblerait que nous puissions établir un classement des configurations suivant leur section efficace de diffusion. Dans le domaine n°1, la section efficace de diffusion de la configuration compacte est supérieure à celle de la configuration en plan, elle-même supérieure aux configurations en p1 et p2 (qui sont très proches, voire similaires). La plus faible est celle de la configuration en chaîne. L'ordre est inversé pour le deuxième domaine (pour Al₂O₃ et TiO₂). Ainsi se dessinent deux configurations extrêmes, chaîne et compacte entre lesquelles se situent les autres configurations.

La différence moyenne² sur l'ensemble des paramètres de taille entre ces deux configurations extrêmes est d'environ 14.5% plus ou moins 1% suivant l'indice de réfraction (*Tableau B-III-1*). Elle est donc mesurable expérimentalement, tout comme celle entre une configuration en chaîne et une configuration en plan qui est de l'ordre de 9.5% (avec toujours, plus ou moins 1% suivant l'indice de réfraction). Néanmoins, il faut remarquer que la différence entre une configuration en p1 et celle en p2 est très faible (<1%), alors que la différence est notable si nous les comparons avec une configuration en plan.

Indices	Chaîne/ Compacte	Chaîne/ Plan	Chaîne/ P1	Chaîne/ P2	Compacte/ Plan	Compacte/ P1	Compacte/ P2	Plan/ P1	Plan/ P2	P1/ P2
SiO ₂	14,4%	9,6%	4,8%	5,2%	5,9%	11,9%	11,4%	5,6%	5,1%	0,5%
Al ₂ O ₃	15,4%	9,9%	4,5%	5,0%	6,2%	12,5%	11,9%	6,0%	5,4%	0,7%
TiO ₂	13,8%	8,6%	3,7%	4,1%	6,0%	11,8%	10,7%	5,8%	4,9%	1,4%
moyenne	14,5%	9,4%	4,3%	4,8%	6,0%	12,1%	11,3%	5,8%	5,1%	0,8%

*Tableau B- III-1: Différence entre les configurations de C_{sca} pour un agrégat de 4 sphères
 $\alpha \in [0;10]$*

Voyons maintenant l'effet de la variation de la configuration lorsque l'agrégat est composé de 8 particules primaires.

$$^2 \text{ Différence moyenne} = \left\langle \left| 1 - \frac{C_{sca_{\text{configuration1}}}}{C_{sca_{\text{configuration2}}}} \right| \right\rangle_{\alpha}$$

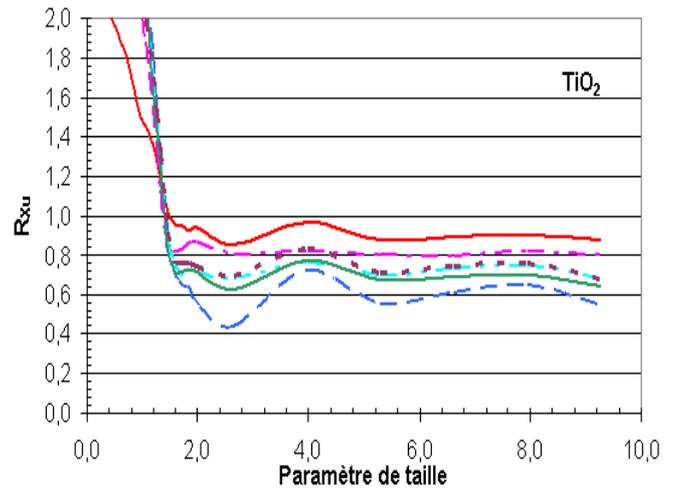
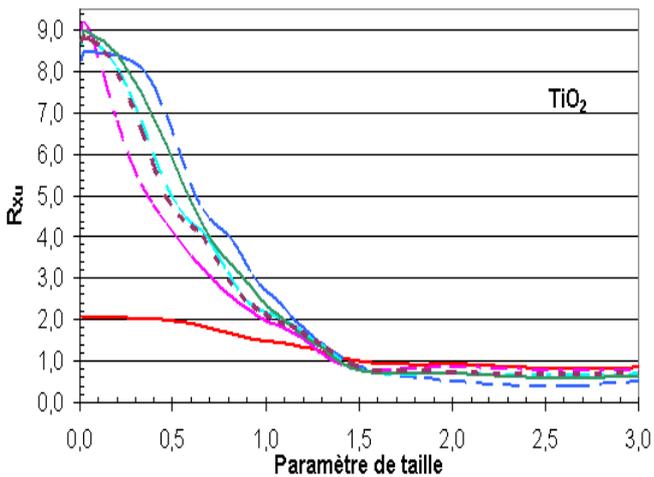
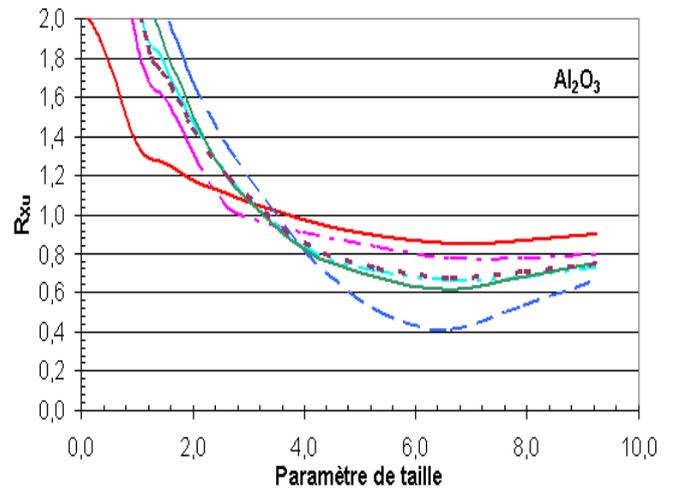
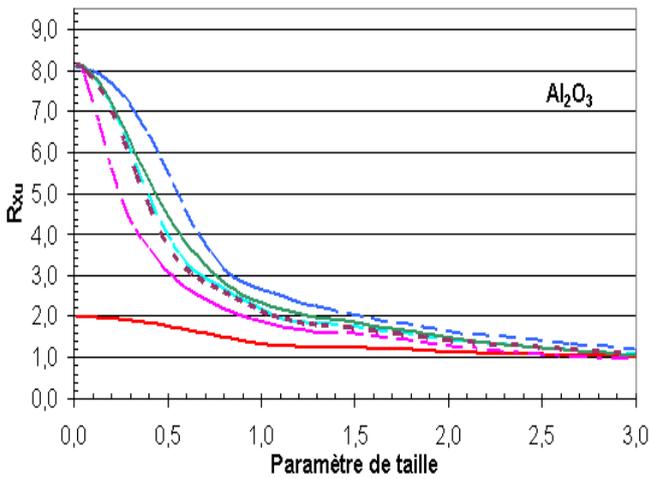
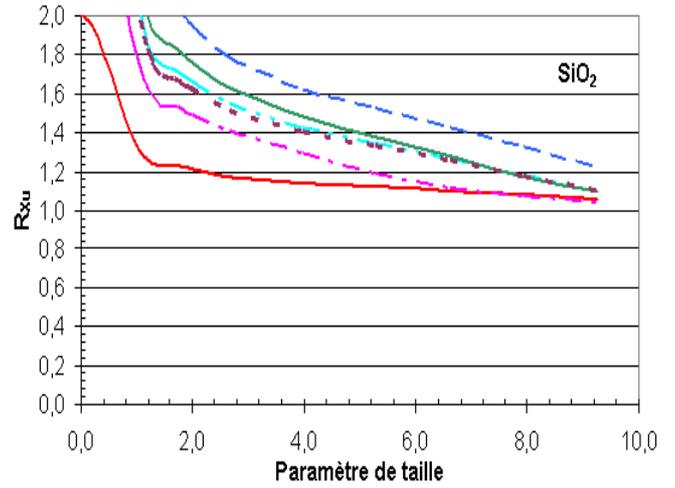
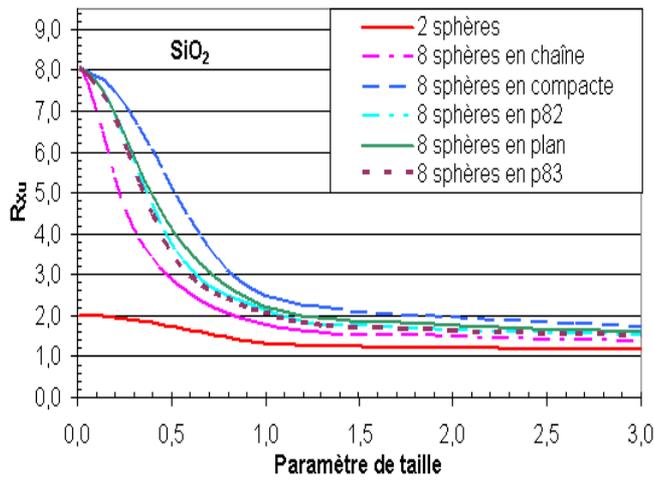


Figure B- III-6: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 8 particules primaires.

On observe les mêmes tendances, et la confirmation qu'il existe deux configurations extrêmes (compacte et chaîne) entre lesquelles la section efficace de diffusion des autres configurations évolue. Le lecteur doit toutefois se souvenir, que l'agrégat dénommé sous le nom de compact représente la configuration la plus compacte en comparaison avec celle des autres ; il est certainement possible de trouver une configuration dont la compacité lui est supérieure. La différence entre ces deux configurations est plus importante que celle où il n'y a que 4 particules primaires puisqu'elle est de 26%. On remarque également que les configurations en p82 et p83 donnent lieu à des courbes très proches, leur différence est de l'ordre de 2.5%

Tableau B- III-2.

Indices	Chaîne/ Compacte	Chaîne/ P82	Chaîne/ Plan	Chaîne/ P83	Compacte/ P82	Compacte/ Plan	Compacte/ P83	Plan/ P82	Plan/ P83	P82/ P83
SiO ₂	24,7%	13,1%	16,9%	11,0%	17,2%	11,5%	20,3%	4,5%	7,6%	2,6%
Al ₂ O ₃	27,5%	13,1%	17,2%	10,9%	17,5%	11,8%	20,5%	5,0%	7,9%	2,5%
TiO ₂	26,0%	12,3%	15,9%	10,4%	14,5%	10,0%	16,7%	5,7%	8,2%	2,4%
moyenne	26,1%	12,8%	16,6%	10,8%	16,4%	11,1%	19,2%	5,1%	7,9%	2,5%

Tableau B- III-2: Différence entre les configurations de C_{sca} pour un agrégat de 8 sphères
 $\alpha \in [0;10]$

Nous avons également réalisé le même type de courbes pour un agrégat de 16 particules primaires (Figure B- III-7) qui confirment les observations précédentes, avec cette fois-ci des configurations extrêmes différentes de 44% (Tableau B- III-3).

Indices	Chaîne/ Compacte	Chaîne/ Plan	Chaîne/ Cube	Plan/ Cube	Compacte/ Cube	Plan/ Cube
SiO ₂	38,6%	28,0%	34,7%	20,0%	7,4%	10,0%
Al ₂ O ₃	46,1%	29,5%	39,4%	20,0%	8,0%	11,6%
TiO ₂	47,2%	26,5%	37,0%	18,1%	8,4%	12,5%
moyenne	44,0%	28,0%	37,0%	19,4%	8,0%	11,4%

Tableau B- III-3: Différence entre les configurations de C_{sca} pour un agrégat de 16 sphères
 $\alpha \in [0;10]$

On constate que plus le nombre de particules primaires est grand, plus la configuration « chaîne » se distingue des autres, qui, elles, se rapprochent ($\alpha \in [0,2]$).

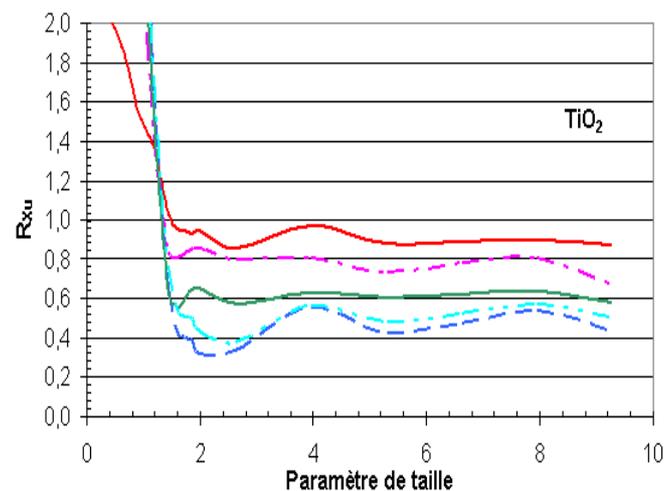
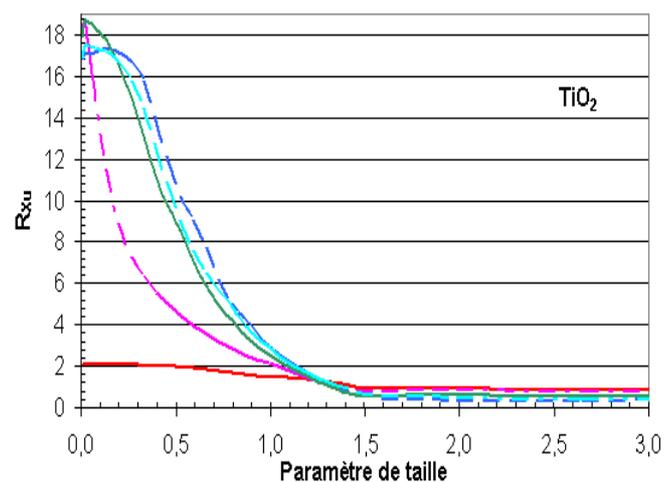
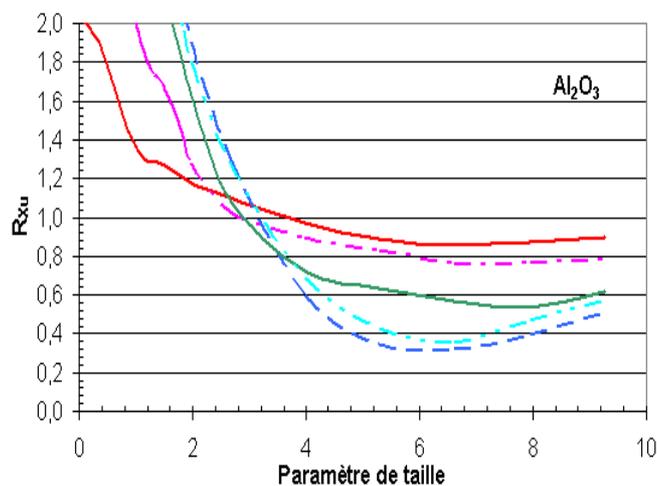
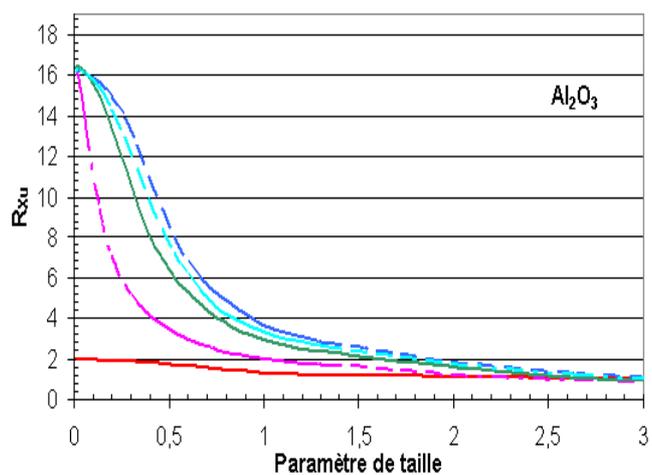
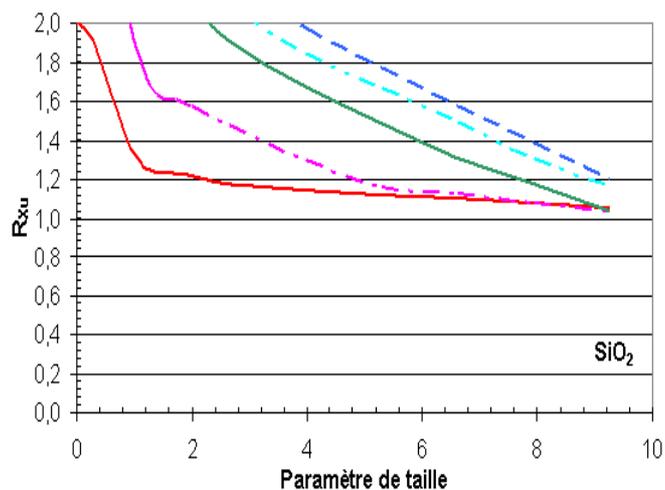
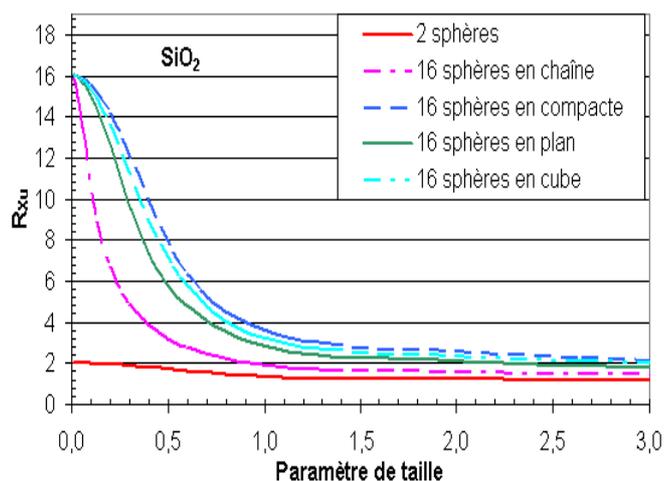


Figure B- III-7: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 16 particules primaires.

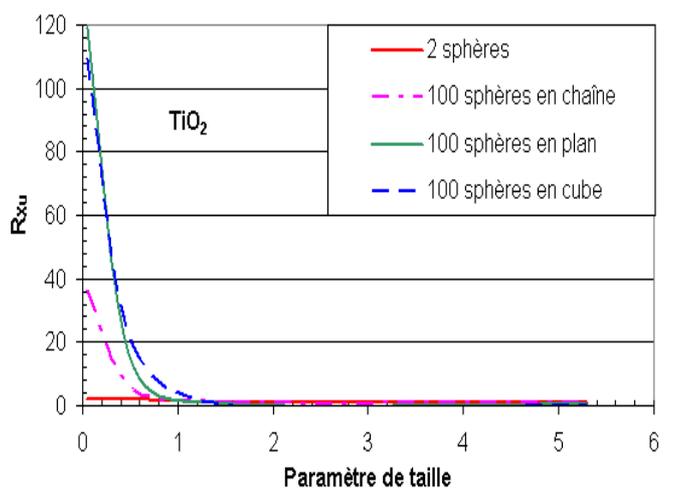
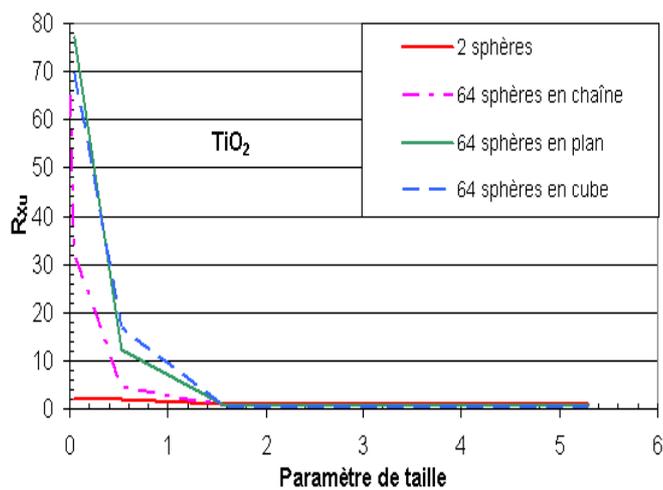
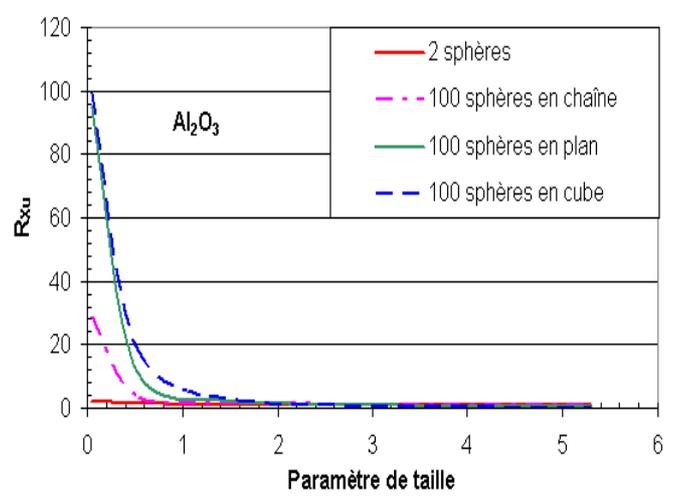
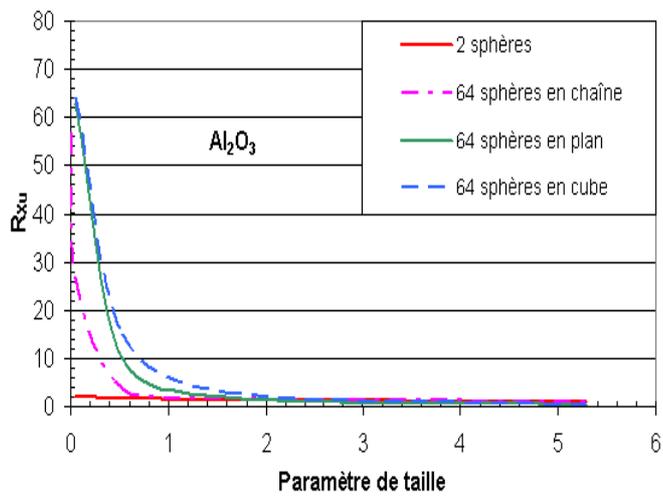
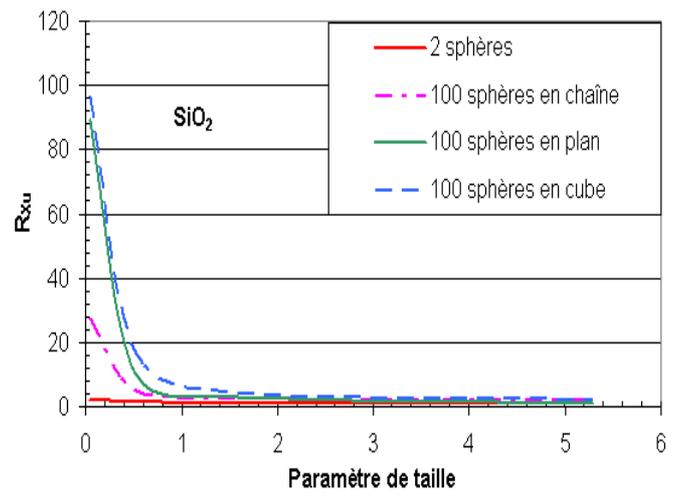
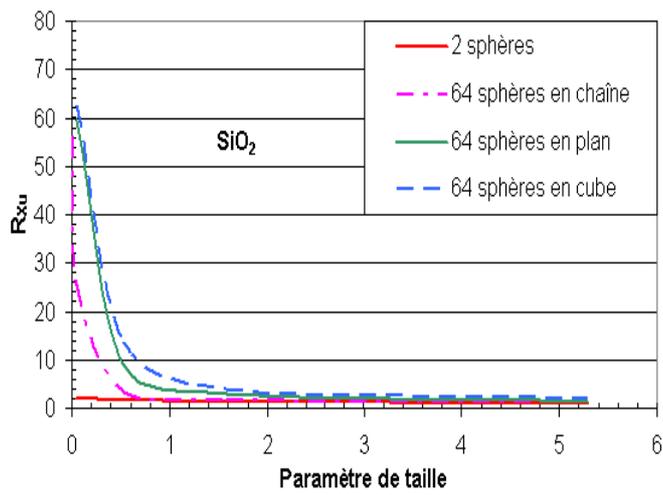


Figure B- III-8: Variation de la section efficace de diffusion en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 64 (1^{ière} colonne) et 100 (2^{ième} colonne) particules primaires.

La mémoire vive, nécessaire pour effectuer les calculs des valeurs moyennes sur l'ensemble des orientations, est proportionnelle à $(N N_w^2)^2$. Dans le cas de « gros » agrégats tels que ceux composés de 64 et 100 particules primaires, la mémoire de nos ordinateurs s'est avérée insuffisante. Nous avons donc réalisé la moyenne des propriétés optiques en moyennant les valeurs obtenues pour 50 orientations fixes de l'agrégat. La mémoire nécessaire à chaque orientation fixe est proportionnelle à $N_w^4 + N N_w^2$.

Nous pouvons faire les mêmes remarques avec des agrégats de 64 et 100 particules primaires (*Figure B- III-8*). Cependant, ces courbes servent uniquement à une appréciation qualitative. Le temps de calcul étant une fonction croissante du nombre de particules primaires et du paramètre de taille, nous n'avons réalisé que très peu de points sur ces courbes. Les valeurs de la section efficace de diffusion pour $N=64$ et 100 se trouvent en *Annexe B.III (Annexe Tableau 8 et Annexe Tableau 9)*.

On observe aussi que pour $N=64$ et 100 (SiO_2 , Al_2O_3), on a $C_{Xu,N} \propto N^2 C_{Mie,1}$ quand α tend vers 0.

Conclusion:

L'arrangement des particules primaires, c'est-à-dire la configuration d'un agrégat, n'est pas sans effet sur la section efficace de diffusion, néanmoins le nombre de particules primaires en son sein est le paramètre prédominant dans le domaine n°1 : $\alpha \in [0;2]$. Dans le second domaine ($\alpha \in [2;10]$), la configuration a tout autant d'importance que le nombre de particules primaires.

Les données ci-dessus et les commentaires afférents nous serviront à élaborer des méthodes d'approximation pour évaluer la section efficace de diffusion pour des agrégats.

B.III.2. Section efficace de pression de radiation

Lorsqu'on est dans le cas d'une suspension très concentrée, on utilise, non pas l'intensité lumineuse transmise qui est trop faible, mais celle rétrodiffusée qui est plus intense. Les phénomènes associés à cette mesure (au même emplacement que la source), sont la rétrodiffusion cohérente et incohérente. La première provient d'un phénomène d'interférence provoqué par le double passage de l'onde à travers la même particule. La largeur du pic d'intensité ainsi mesurée est proportionnelle au libre parcours moyen de transport, lui-même inversement proportionnel à la section efficace de pression de radiation (C_{pr}). La deuxième fait intervenir uniquement la diffusion multiple, dont le paramètre clef est aussi le libre parcours moyen de transport. C'est la raison pour laquelle nous allons examiner dans ce chapitre les variations de C_{pr} pour un agrégat, en fonction du nombre de particules primaires le constituant, de la forme de ce dernier, tout en faisant varier le paramètre de taille et l'indice de réfraction des particules primaires.

B.III.2.1 Pour une sphère

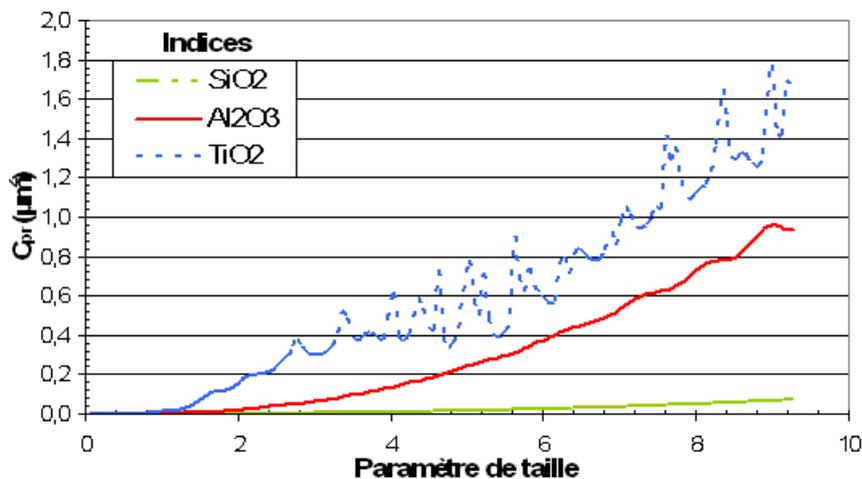


Figure B- III-9: Section efficace de pression de radiation pour les trois matériaux en fonction du paramètre de taille.

Sur l'ensemble des paramètres de taille, nous remarquons que l'évolution de la section efficace de pression de radiation est croissante et qu'elle suit le sens de variation de l'indice de réfraction contrairement à la section efficace de diffusion (Figure B- III-1)

Rappelons que suivant (A.86) : $C_{pr} = C_{ext} - C_{sca} \cdot \langle \cos \theta \rangle$ soit pour un matériau non absorbant ($C_{ext} = C_{sca}$) :

$$C_{pr} = C_{sca} (1 - \langle \cos \theta \rangle) \quad (B.25)$$

Le paramètre d'asymétrie quant à lui varie comme suit :

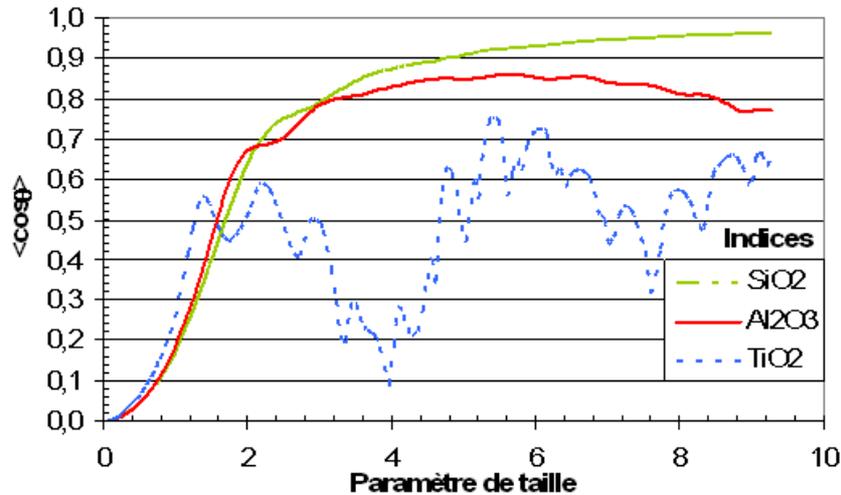


Figure B- III-10: Paramètre d'asymétrie pour les trois matériaux en fonction du paramètre de taille.

On voit donc que le paramètre d'asymétrie est proche de zéro pour des paramètres de taille très faibles quelque soit l'indice de réfraction. Puis celui-ci augmente jusqu'à un pseudo-palier proche de 1 dans le cas du SiO₂ et Al₂O₃, ceci traduit le fait que la diffusion s'effectue dans une direction privilégiée : celle de l'onde incidente. On parle de diffusion avant. Une particule sphérique de TiO₂ possède une diffusion angulaire qui varie en fonction du paramètre de taille de façon moins monotone ; en effet, pour un paramètre de taille de 4, le paramètre d'asymétrie est proche de zéro, la diffusion peut être alors qualifiée d'isotrope tandis que, pour un paramètre de taille de l'ordre de 6, la diffusion semble se faire dans une direction privilégiée.

Le calcul de la section efficace de pression de radiation, permet de combiner les informations contenues dans la section de diffusion et le paramètre d'asymétrie.

Nous présenterons les résultats des simulations numériques suivant le schéma utilisé précédemment: en regardant tout d'abord l'influence du nombre de particules primaires au

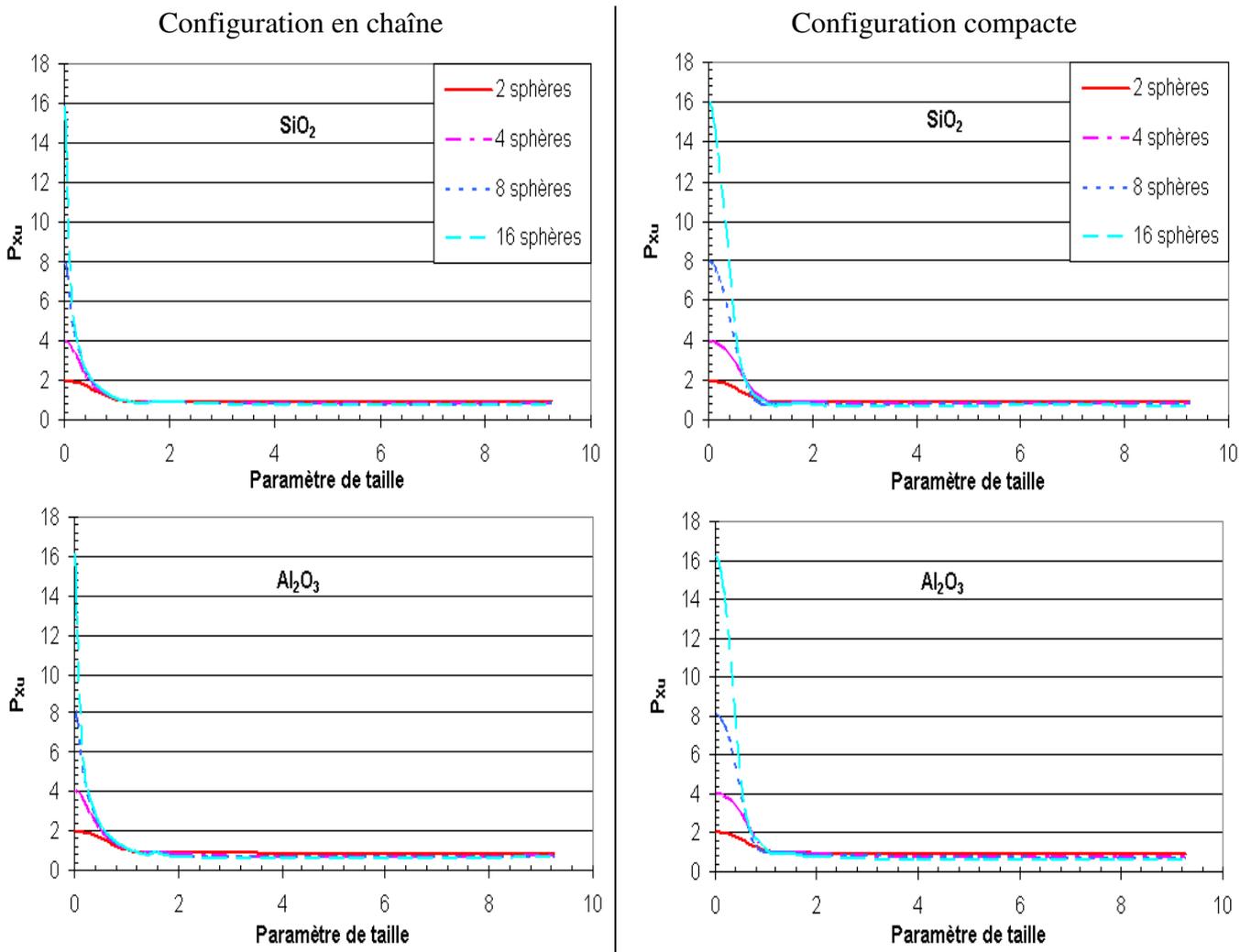
sein de l'agrégat suivant leur paramètre de taille et également l'influence de l'agencement de ces dernières dans l'agrégat.

De même, nous avons défini P_{xu} comme étant le rapport entre le C_{pr} d'un agrégat ($C_{xu,N}$) et le C_{pr} de ses N particules, considérées indépendantes, $NCpr_{Mie,1}$:

$$P_{xu} = \frac{Cpr_{xu,N}}{NCpr_{Mie,1}} \quad (B.26)$$

B.III.2.2 Effet du nombre de particules primaires

Nous avons, comme dans la section B.III.2.2, mis en parallèle deux configurations, chaîne et compacte. Nous obtenons le même profil de courbes (*Figure B- III-11*) et nous retrouvons deux domaines : l'un où la diffusion multiple est très importante pour $\alpha \in [0;2]$ et l'autre, où la section efficace de pression de radiation s'apparente plus à celle obtenue dans le cas de sphères seules sans interaction, définie sous le nom de domaine n°2: $\alpha \in [2;10]$.



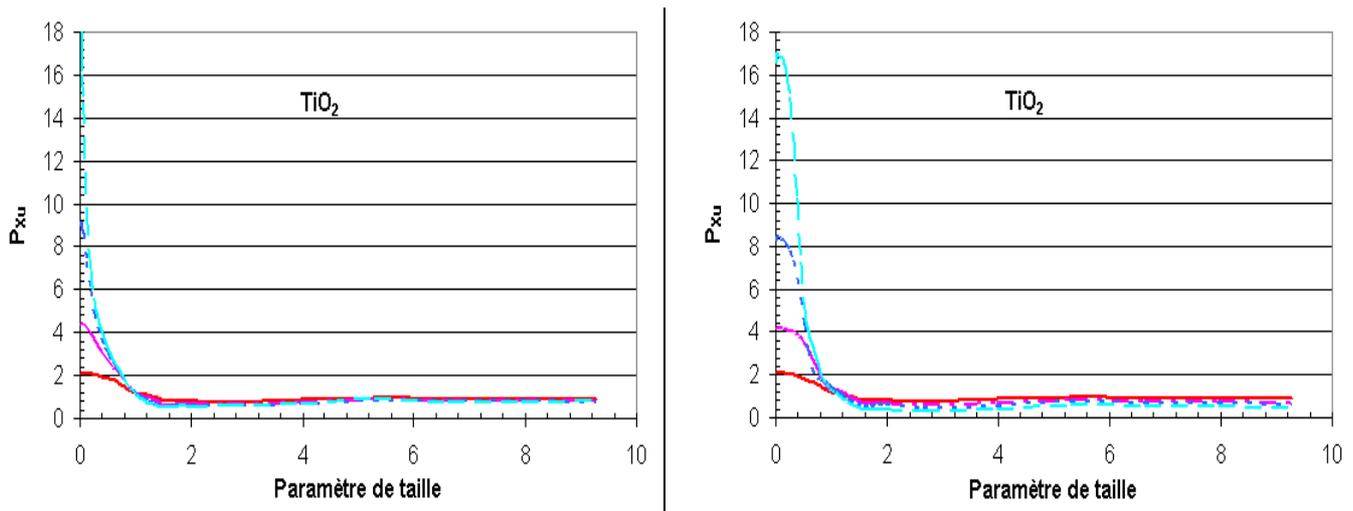


Figure B- III-11: Allure générale des courbes de C_{pr} pour une configuration en chaîne (colonne de gauche) et une configuration compacte (colonne de droite).

Les autres courbes, présentent P_{Xu} pour un paramètre de taille entre 0 et 3 ainsi que celles sur l'ensemble de la gamme des paramètres de taille mais avec un zoom sur P_{Xu} compris entre 0 et 2, sont en Annexe B.III (page XIII-XIV).

Toutes les analyses qualitatives et quantitatives faites pour la section efficace de diffusion peuvent être étendues à la section efficace de pression de radiation.

De plus, la section efficace de pression de radiation d'un agrégat constitué de particules primaires dont le paramètre de taille est supérieur à 1.5 semble être proportionnelle (d'un facteur p N) à la section efficace de radiation de pression d'une particule primaire. Pour conserver la fluidité de notre rapport, la détermination de ce facteur p est précisé en Annexe B.III (page XXI), nous l'évoquerons de nouveau B.VI.1.2.b).

B.III.2.3 Effet de la morphologie

Ci-contre est présenté le cas de 4 sphères primaires arrangées suivant les différentes configurations du *Tableau B- I-1*. On obtient également le même profil de courbe. La différence entre les deux configurations extrêmes est cette fois-ci de l'ordre de 10.7% (*Annexe Tableau 10*), valeur plus faible que celle obtenue avec les C_{sca} . Mais C_{pr} semble un peu plus sensible aux configurations qui sont proches entre elles, puisque la différence moyenne entre la configuration p_1 et p_2 est de 1.3% contre 0.8% avec C_{sca} .

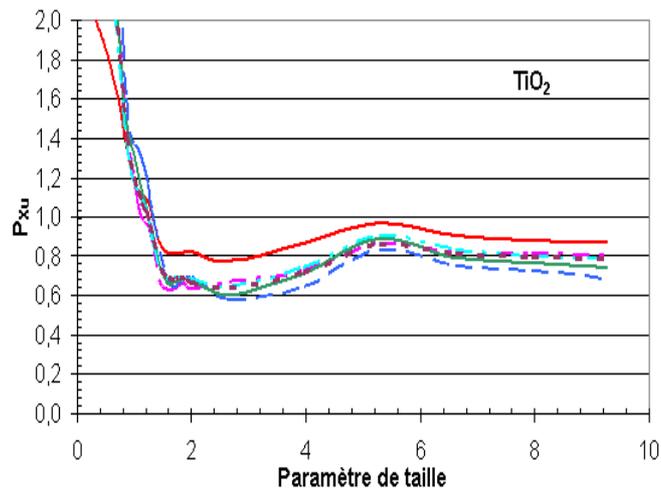
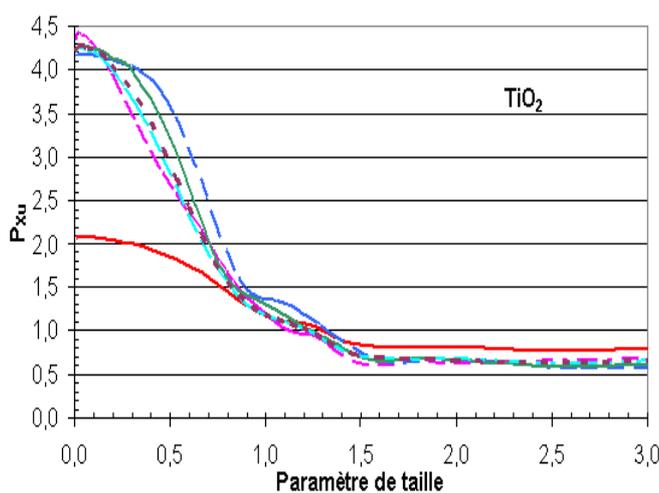
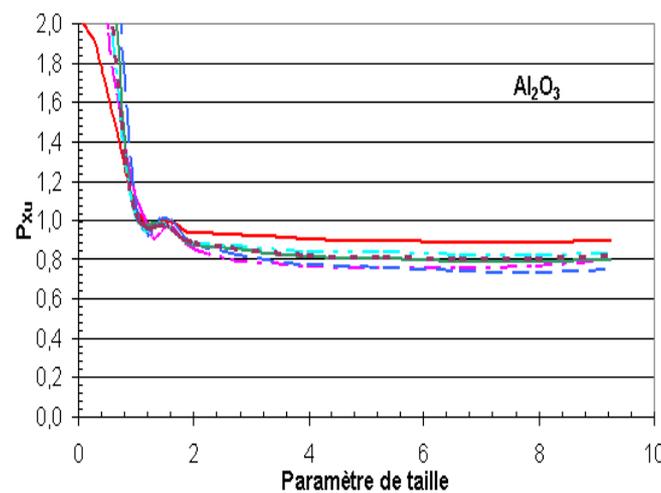
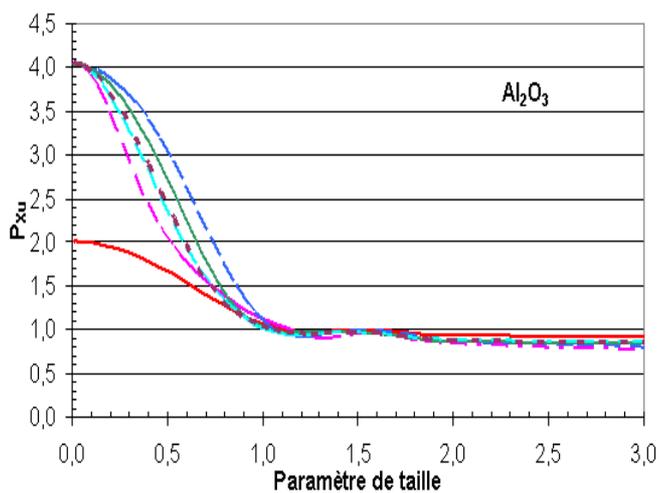
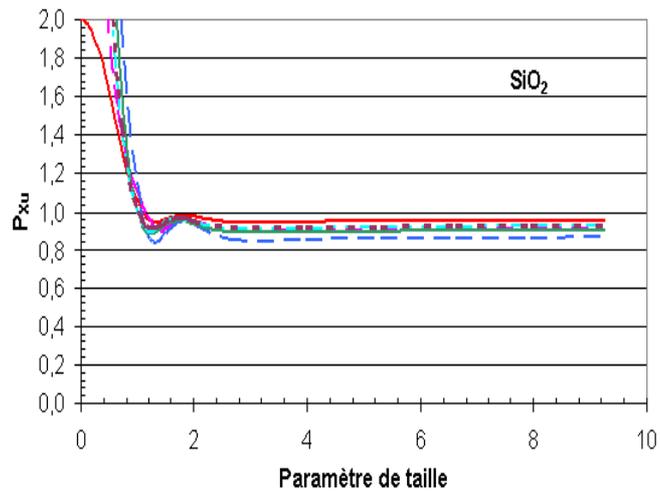
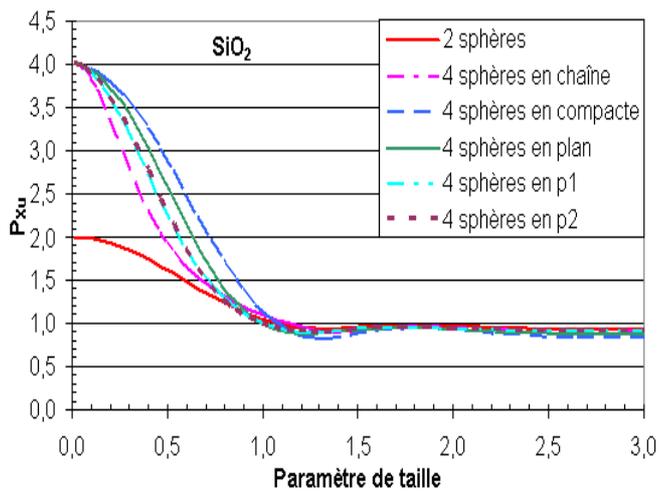


Figure B- III-12: Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 4 sphères primaires.

Les figures pour des agrégats comportant 8, 16, 64 et 100 particules primaires sont en Annexe B.III. (page XVII-XIX) ainsi que les tableaux de variation du Cpr d'une configuration à une autre pour le cas de 8 (*Annexe Tableau 11*) et 16 particules primaires (*Annexe Tableau 12*).

Conclusion :

Aux vues de ces différentes courbes, nous pouvons compléter notre remarque faite au paragraphe précédent. La section efficace de pression de radiation pour un agrégat composé de particules primaires dont le paramètre de taille est supérieur à 1.5, semble être proportionnelle (d'un facteur $N/2$ p) à la section efficace de pression de radiation d'un doublet. Pour les raisons déjà évoquées, l'évaluation de ce facteur est reporté en Annexe B.III (page XXII) et sera utilisé en B.VI.1.2.b).

Toutes les analyses qualitatives et quantitatives faites pour la section efficace de diffusion peuvent être étendues à la section efficace de pression de radiation.

B.III.3. Bilan

En conclusion de ce chapitre, les différentes configurations d'un agrégat suivant sa forme ou le nombre de particules primaires qu'il contient sont parfaitement discernables, que se soit avec C_{sca} ou C_{pr} .

Les courbes obtenues avec C_{sca} ou C_{pr} sont qualitativement similaires.

Nous avons remarqué, dans les deux cas, deux domaines dont la limite varie suivant l'indice de réfraction et le nombre de particules primaires. L'un où les sections efficaces ont des valeurs largement supérieures à celle d'un groupe identique de particules sans interaction (interférences constructives), l'autre où elles sont au contraire inférieures (interférences destructives). Il a aussi été noté que :

- le nombre de particules primaires est le paramètre pertinent dans le cas des faibles paramètres de taille ($\alpha \rightarrow 0, C_{Xu,N} \propto N^2 C_{Mie,1}$),
- il existe deux configurations extrêmes (chaîne et compacte) entre lesquelles les sections efficaces des autres évoluent,

- la différence des sections efficaces des deux configurations extrêmes augmente avec le nombre de particules primaires.

Ajoutons que les temps de calcul des propriétés optiques des agrégats sur des ordinateurs de puissance ordinaire sont très longs avec la méthode exacte, d'où l'idée de mettre en place des méthodes approchées plus rapides. Ainsi nous allons dans les prochains chapitres construire des méthodes approchées dont nous pourrons évaluer leur performance grâce à une comparaison avec la méthode exacte.

Chapitre IV Méthodes approchées pour un agrégat

Dans ce chapitre sont décrites les différentes méthodes approchées utilisées dans la suite de ce rapport et la démarche lors de leur construction. Nous aborderons uniquement le calcul de la section efficace de diffusion, relative à un agrégat.

B.IV.1. Etude préliminaire

B.IV.1.1 Approximation de Rayleigh

Au cours de nos investigations précédentes nous avons suivi l'évolution de R_{Xu} en fonction du paramètre de taille de la particule primaire. Rappelons qu'il est défini comme suit :

$$R_{Xu} = \frac{C_{Xu,N}}{NC_{Mie,1}}.$$

Nous avons donc décidé de voir si

$$R_{Rayleigh} = \frac{C_{Rayleigh,N}}{NC_{Rayleigh,1}} \quad (B.27)$$

affichait les mêmes caractéristiques dans sa limite de validité (vu en A.IV.1) qui est :

$$\alpha = \frac{2\pi x}{\lambda_1} \ll 1 \quad \text{et} \quad \left| \frac{n_p}{n_m} \right| \alpha \ll 1 \quad (\text{voir également l'illustration de la Figure A- IV-3}).$$

$C_{Rayleigh,N}$ prend en considération la diffusion multiple car, dans ce cas, nous avons limité la résolution du problème de diffusion multiple présenté en A.III.2 à $N_w=1$ ce qui implique que seul le premier ordre des coefficients de Mie soit pris en considération.

Ci-dessous (*Figure B- IV-1*) sont présentés, dans la première colonne R_{Xu} (courbes déjà présentées en B.III.1.3) et dans la deuxième colonne $R_{Rayleigh}$, en fonction du paramètre de taille (compris entre 0 et 3) et de l'indice de réfraction des particules primaires. Nous avons choisi de ne présenter que les différentes configurations avec 4 particules primaires (les autres présentant les mêmes tendances : *Annexe Figure 10*).

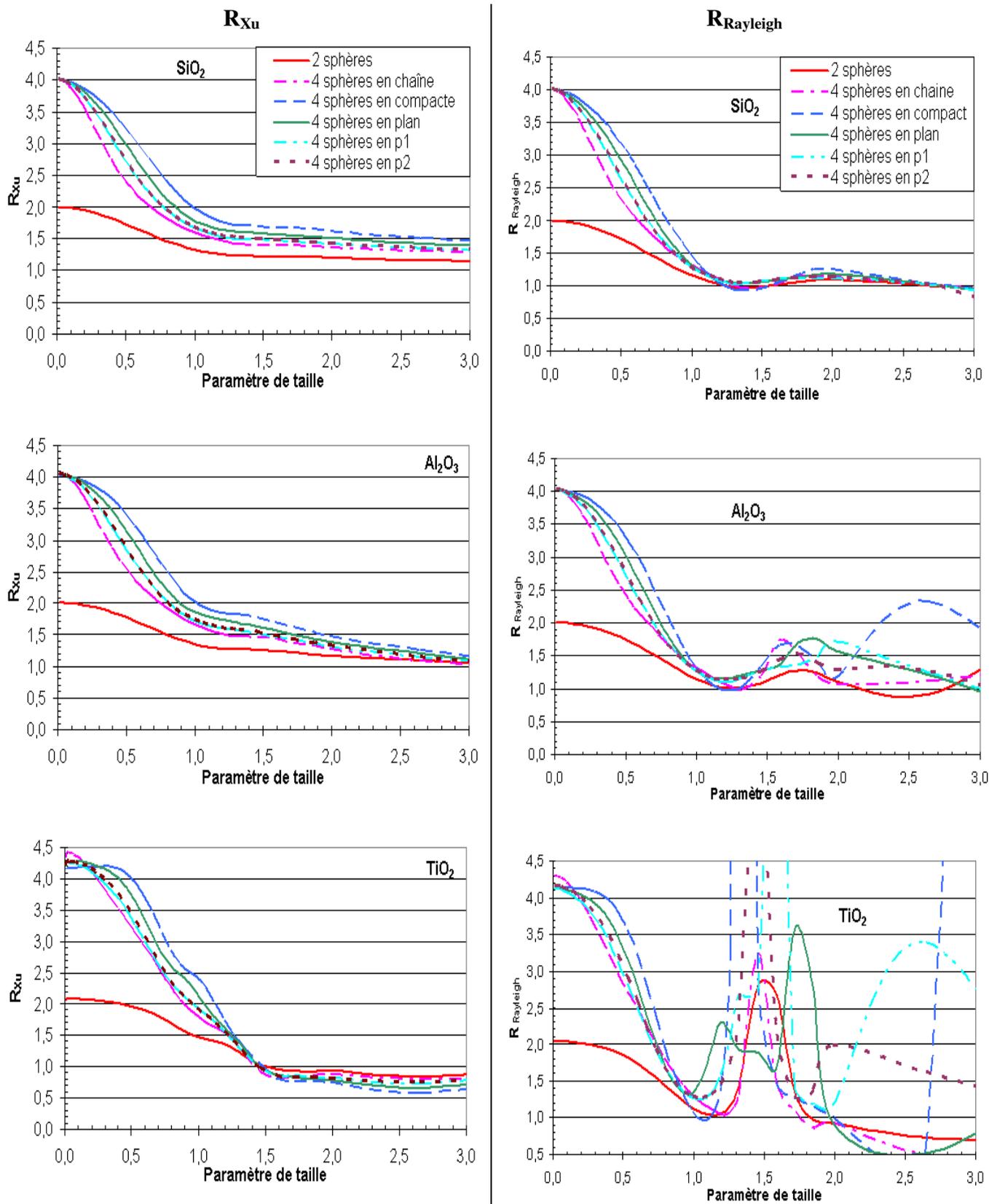


Figure B- IV-1: $R_{Rayleigh}$ pour les différentes configurations avec 4 sphères suivant le paramètre de taille et les 3 indices (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2)

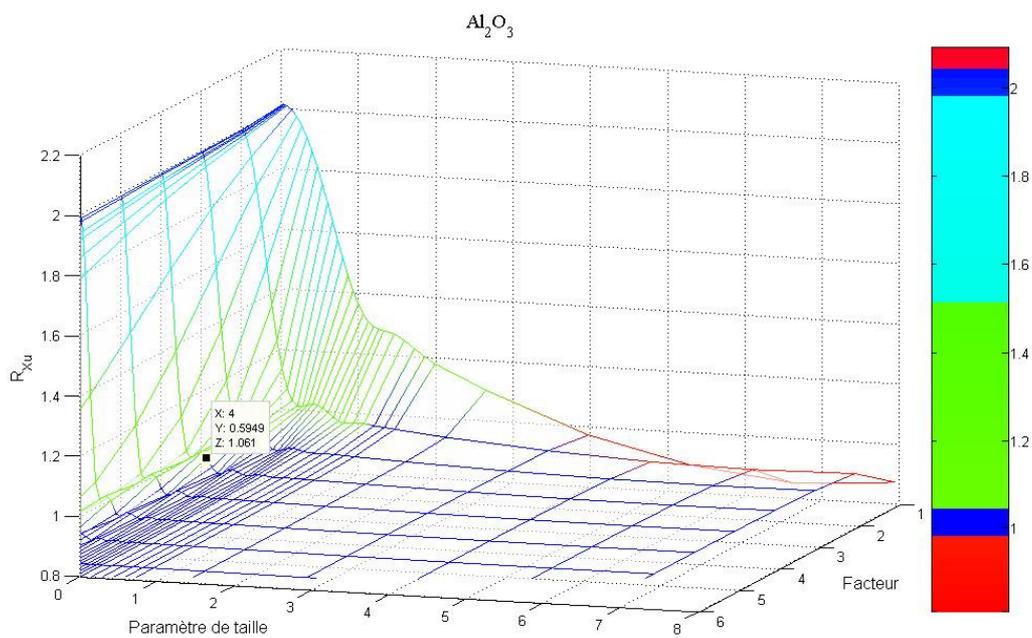
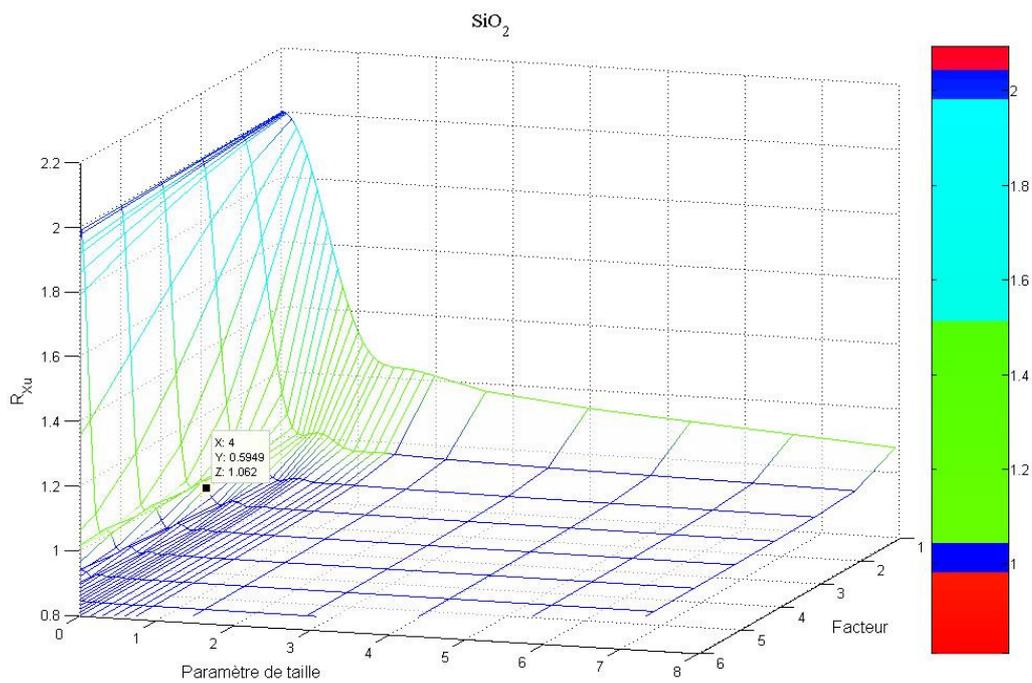
Nous pouvons observer qu'avec de faibles paramètres de taille ($\alpha < 1$) les caractéristiques de R_{Xu} (existence de deux configurations extrêmes, sens de variation de la section efficace de diffusion suivant le type de configuration observé, importance du nombre de particules au sein de l'agrégat) sont aussi celles de $R_{Rayleigh}$. Bien évidemment, pour les paramètres de taille plus élevés ($\alpha > 1$), le rapport $R_{Rayleigh}$ n'est pas utilisable puisqu'il est soumis à un domaine de validité qui doit concorder avec celui de Rayleigh pour une sphère seule. Pour préciser ce domaine de validité, nous avons réalisé le rapport : $R_{RX} = \frac{C_{Rayleigh,N}}{C_{Xu,N}}$ (B.28). Les courbes

correspondantes sont en Annexe B.IV (*Annexe Figure 9*). On constate une erreur inférieure à 10% dans le cas de SiO_2 et Al_2O_3 pour un paramètre de taille inférieur à 0.5, et pour un paramètre de taille de 0.1 dans le cas du TiO_2 . La limite de validité est une fonction légèrement décroissante du nombre N de particules primaires.

En conclusion l'approximation de Rayleigh peut être utilisée pour des agrégats ayant des particules primaires sphériques très petites. Comme elle présente toutes les caractéristiques des courbes $R_{Xu}=f(\alpha,N,m)$ pour $\alpha < 2$, sa simplicité sera mise à profit pour construire une approximation. Cependant, il semble plus intéressant d'utiliser l'approximation RDG (*Figure A- IV-3*) qui couvre un domaine de paramètres de taille plus important mais qui nécessite des indices de refraction plus faibles (en regard des résultats obtenus avec l'approximation de Rayleigh dans le cas du TiO_2). C'est donc la RDG (A.IV.2) que nous tâcherons d'utiliser dans une des méthodes approchées. $C_{Rayleigh,N}$ prenant en considération la diffusion multiple, nous tenterons d'évaluer cette dernière.

B.IV.1.2 Effet de la distance inter-particule :

Appliquant la méthode de nos prédécesseurs (A.V.2 :(Mishchenko, Mackowski et al. 1995) et (Quirantes, Arroyo et al. 2001)), nous avons suivi l'évolution de la section efficace de diffusion de deux sphères en fonction du type de matériau et de leur paramètre de taille. Nous les avons éloignées (centre à centre) progressivement d'un facteur proportionnel à leur diamètre, jusqu'à ce qu'elles n'interagissent plus, c'est-à-dire jusqu'à ce que R_{Xu} soit égal à 1.



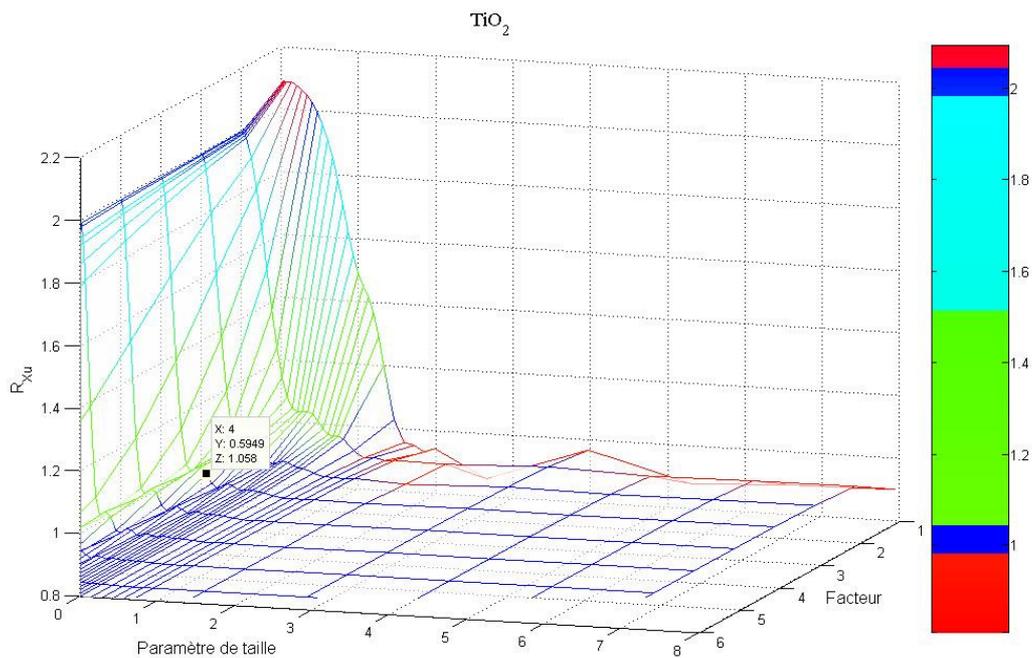
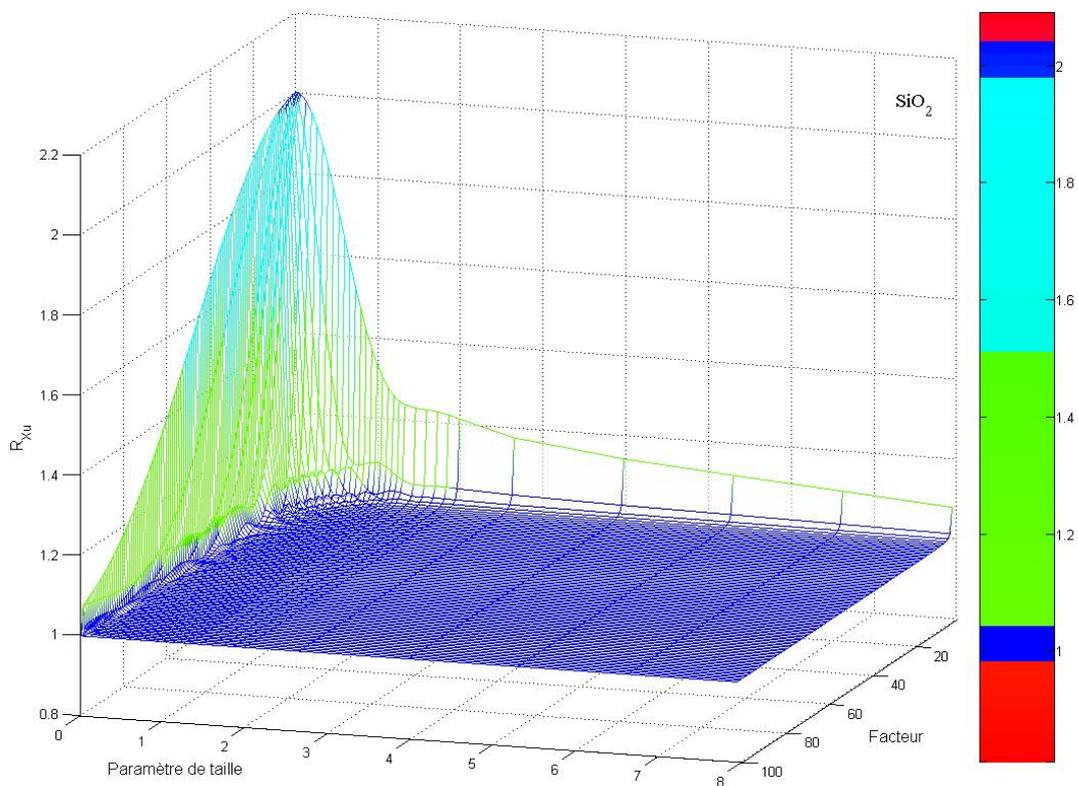


Figure B- IV-2: Evolution de R_{xu} en fonction du paramètre de taille et du facteur d'éloignement compris entre [1 ;6] pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2)



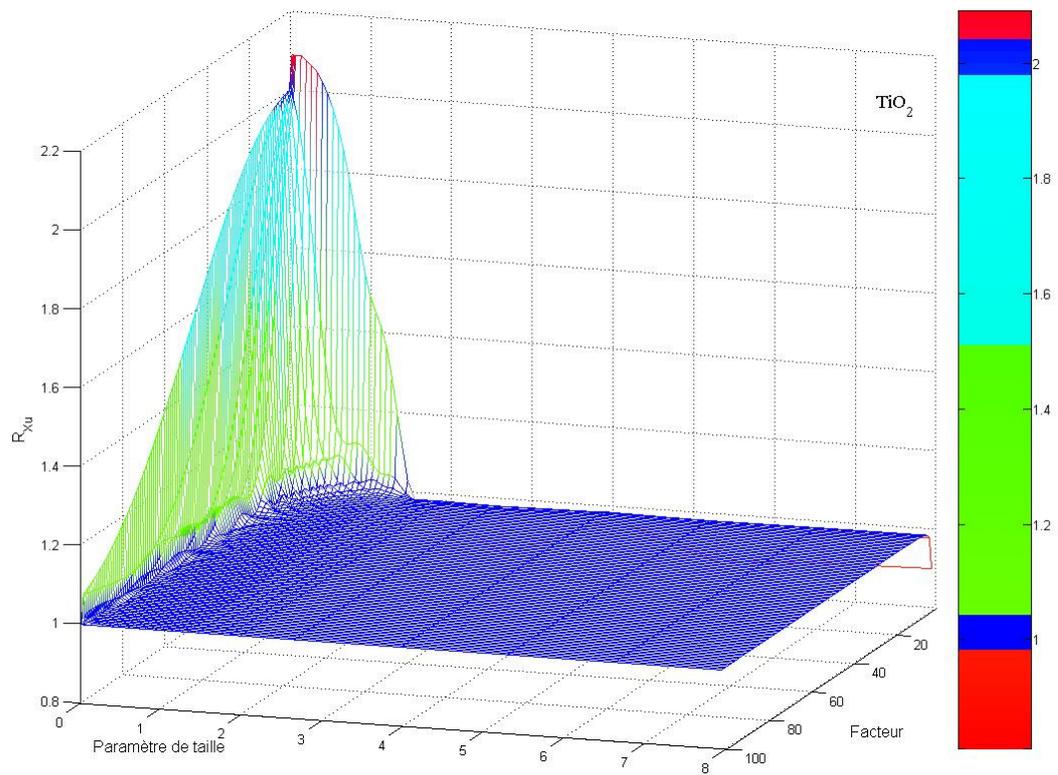
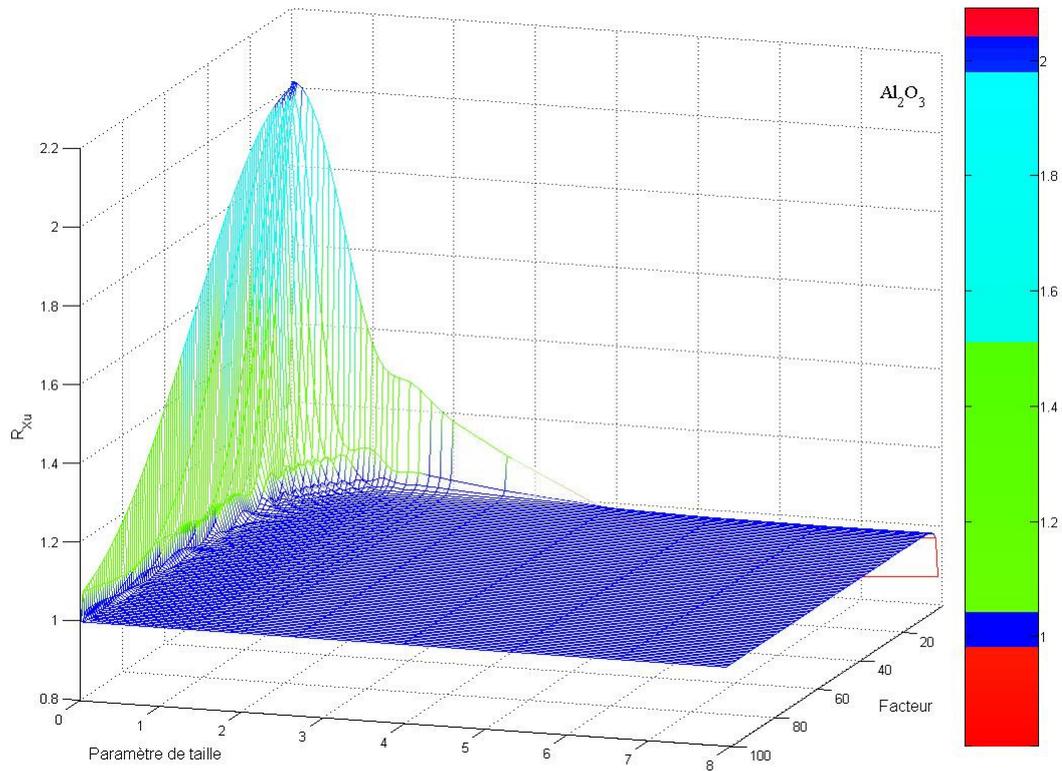


Figure B- IV-3: Evolution de R_{xu} en fonction du paramètre de taille et du facteur d'éloignement compris entre [1 ;100] pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2)

Nous pouvons voir sur la *Figure B- IV-3* que pour des paramètres de taille inférieurs à 0.5, plus la particule primaire est petite, plus le facteur d'éloignement doit être grand pour qu'il n'y ait pas interaction. Nous rejoignons donc la conclusion de Kolokolova et Gustafson (Kolokolova and Gustafson 2001): il est nécessaire dans le domaine de Rayleigh d'avoir une fraction volumique très faible pour ne pas avoir de diffusion multiple et ce quelque soit l'indice.

Plus quantitativement un facteur d'éloignement de 4, quelque soit l'indice, ne permet pas d'être dans un domaine de non-interaction pour l'ensemble des paramètres de taille (*Figure B- IV-2*) ; même, un facteur d'éloignement de 100 est insuffisant (*Figure B- IV-3*).

Pour des sphères en contact (*Figure B- IV-2*) R_{Xu} est largement supérieur à 1 pour un paramètre de taille assez faible (eg : $R_{Xu} > 1.4$ pour $\alpha < 1$), mais peut décroître pour des paramètres de taille plus importants à des valeurs inférieures à 1 ; on aurait donc, dans ce cas là, une majorité d'interférences destructives.

Il apparaît ainsi judicieux de rendre compte de cette distance d'interaction dans un des modèles approchés, et il serait d'autant plus intéressant qu'elle soit couplée avec l'indice de réfraction des particules.

B.IV.2. Méthodes approchées

Nous allons décrire dans ce chapitre les différentes méthodes approchées qui seront utilisées dans la suite de cette étude, en constituant un éventail utilisant des approches différentes. Certaines de ces méthodes approchées (SC, IRE, PBK, DA) ont déjà fait l'objet d'une étude (Gruy 2001), elles ont été comparées à des valeurs turbidimétriques expérimentales pour des suspensions de silice. Une comparaison expérience-modélisation, permet de conclure que DA et IRE sont des méthodes approchées pertinentes quand le nombre de particules primaires dans l'agrégat est inférieur à 32 et leur paramètre de taille inférieur à 10.

B.IV.2.1 Sphère Compacte (SC)

Cette méthode est incontournable car elle est utilisée en première approximation dans certaines publications. On la trouve sous le nom de sphère équivalente en volume, et nous nous devons donc de la comparer aux autres méthodes.

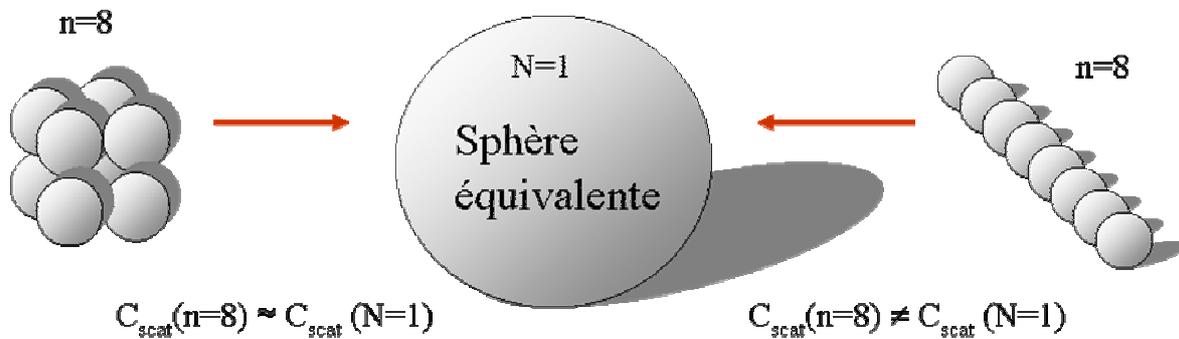


Figure IV-1: Sphère compacte

L'agrégat est considéré comme une sphère pleine c'est-à-dire contenant toute la matière. Cette méthode peut être valable pour des agrégats de forte compacité. La section efficace de diffusion est alors évaluée avec la théorie de Mie.

B.IV.2.2 Sphère creuse ou Poreuse (SP)

Nous présentons cette méthode car elle entre dans la philosophie des logiciels de certains constructeurs de granulomètre qui traite un agrégat à partir d'un rayon maximal ; ce rayon définissant une sphère pleine de matière. Dans le modèle de sphère creuse, nous avons essayé de corriger cette erreur en considérant la porosité de l'ensemble:

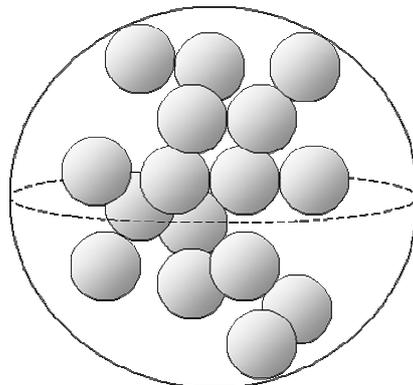


Figure B- IV-4: Sphère creuse

On choisit un diamètre correspondant au diamètre de la sphère circonscrite. Le diamètre de la sphère entourant l'agrégat étant connu, on calcule la fraction volumique en solide dans cette sphère. On détermine ensuite à l'aide de l'équation de Maxwell-Garnett l'indice effectif et on applique la théorie de Mie pour obtenir la section efficace d'extinction ou de diffusion.

La théorie de Maxwell-Garnett (A.102) nous permet de prendre en considération le fait que la sphère ne soit pas pleine de matière.

B.IV.2.3 Indice de Réfraction Effectif (IRE)

Nous avons montré dans la partie consacrée à la caractérisation optique d'un agrégat avec la méthode exacte, que la forme ou l'agencement des particules primaires au sein de cet agrégat avait une influence sur la section efficace. La méthode IRE doit rendre compte de la forme. La définition de la sphère équivalente précédente (SP) s'applique mal à un agrégat en chaîne. Sachant que l'aire projetée de l'objet diffusant (sur le plan (\vec{E}, \vec{H}) de l'onde incidente) est un paramètre pertinent en optique, nous considérons une sphère équivalente définie à partir de l'aire projetée (B.I.3.3.a).

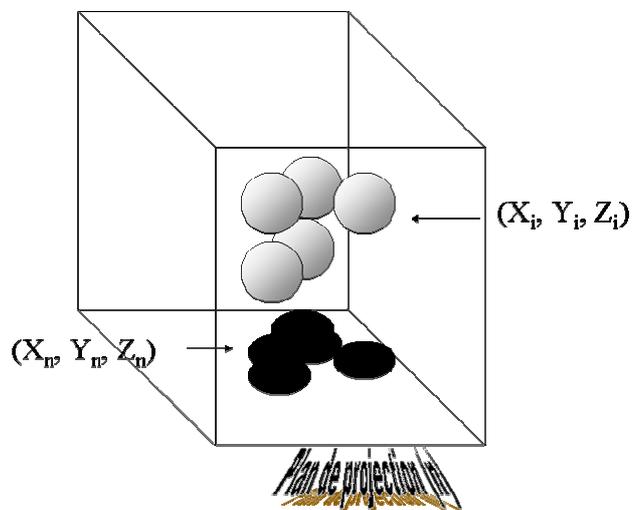


Figure B- IV-5: Aire de la surface projetée

On projette l'agrégat suivant plusieurs plans successifs (plan considéré perpendiculaire au vecteur d'onde incident) ce qui nous place dans le cas d'un agrégat mobile qui effectuerait une rotation sur lui même. A partir de la projection on détermine une surface, et à la suite de ces projections multiples on obtient une surface moyenne qui représente une surface équivalente de sphère. On peut donc en déduire, successivement, un diamètre équivalent, une

fraction volumique en solide dans la sphère, un indice effectif de réfraction à l'aide de la théorie de Maxwell-Garnett (A.102) et la section efficace d'extinction par la théorie de Mie.

B.IV.2.4 Fractal

Un agrégat ou une famille d'agrégats peuvent être caractérisés par une dimension fractale D_f . Cette dernière est généralement fixée par le mécanisme de formation de l'agrégat.

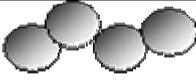
Type	D_f
	3
	1
	2.7
	$2.4 \leq D_f \leq 2.5$

Tableau B- IV-1: Dimension fractale

Dans le tableau ci-dessus est répertoriée la dimension fractale correspondant à un type de configuration.

On peut alors en déduire un rayon équivalent R_{equi} qui intègre dans sa formulation, le facteur de structure S , lequel est aussi fonction de la dimension fractale.

$$R_{\text{equi}} = x \left(\frac{N}{S} \right)^{1/D_f} \quad (\text{B.29})$$

avec x le rayon des particules primaires et N leur nombre. L'expression du facteur de structure S dépend des auteurs. La plupart le prennent égal à 1, d'autres (Gmachowski 1996) lui attribuent l'équation $S = 0.42D_f - 0.22$. (B.30)

On peut définir également la fraction volumique : $f = S \left(\frac{r_{\text{equi}}}{x} \right)^{D_f-3}$ utilisée dans la théorie de

Maxwell-Garnett (A.102) pour déterminer l'indice effectif de réfraction. A la suite de ces calculs, nous avons donc, un rayon équivalent et un indice effectif de réfraction qui nous

permettent d'utiliser la théorie de Mie pour une sphère seule afin de déterminer la section efficace de diffusion.

B.IV.2.5 Percival-Berry-Khlebtsov (PBK)

Cette méthode est inspirée des travaux de Percival et Berry (Berry and Percival 1986) et de Khlebtsov (Khlebtsov 1996).

Nous avons recherché une méthode permettant d'intégrer les remarques de nos investigations précédentes avec la méthode exacte :

- l'utilisation de l'approximation RDG (B.IV.1.1),
- l'intervention de la distance inter-particule pour modéliser les interférences (B.IV.1.2),
- la prise en compte de la diffusion multiple (B.III.1),

Ces trois points constituent les étapes de la méthode P.B.K :

Etape 1 : Evaluation de la contribution au C_{sca} de chaque particule primaire avec la relation (A.98) de RGD (Hulst 1981) pondérée par un facteur correctif par rapport au C_{sca} de Mie ; on appelle cette contribution : $F_1(\theta)$

Etape 2 : Prise en compte des interférences des ondes diffusées pour chaque paire de particules primaires possibles à l'aide d'un facteur de structure S qui est indépendant de la polarisation. Le facteur de structure est lié à la morphologie de l'agrégat au travers des distances inter particulaires d_{ij} .

$$S(\theta) = \left[N + \sum_{i=j=1, i \neq j}^N R(\theta, \phi) \right] / N^2$$

$$\text{Avec } R(\theta, \phi) = \frac{\sin\left(2kd_{ij} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)\right)}{2kd_{ij} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \quad (d_{ij} \text{ la distance entre une particule } i \text{ et } j.)$$

Etape 3 : Utilisation d'un coefficient correctif permettant de prendre en considération la diffusion multiple d adapté de (Berry and Percival 1986) et (Khlebtsov 1996)

$$d^{-1} = \left[1 - \frac{3}{2N} (-a_{i1} p_r - a_{r1} p_i) \right]^2 + \left[\frac{3}{2N} (a_{r1} p_r - a_{i1} p_i) \right]^2$$

avec

- a_{r1} et a_{i1} sont les parties réelle et imaginaire du coefficient de Mie a_1

$$- p_r = 2 \sum_{j>i, i=1}^N p_{r_i}(kd_{ij})$$

$$- p_i = 2 \sum_{j>i, i=1}^N p_{i_i}(kd_{ij})$$

$$- p_{r_i}(x) = (\cos x f_1(x) - \sin x f_2(x)) / x^2$$

$$- p_{i_i}(x) = (\sin x f_1(x) + \cos x f_2(x)) / x^2$$

$$- f_1(x) = \sin x - \frac{x}{3} f(x) + \frac{1}{x} \left(f(x) - \frac{\sin x}{x} \right)$$

$$- f_2(x) = \frac{\sin x}{x} - f(x)$$

- f est le facteur de forme dans le cas d'une sphère (Hulst 1981): déjà utilisé en (A.99)

$$f(x) = \frac{3}{x^3} (\sin x - x \cos x)$$

Bilan des étapes : on obtient : $C_{sca} = N^2 d \int_{2\pi} F_1(\theta) S(\theta) d\theta$

B.IV.2.6 Khlebtsov

Cette méthode ((Khlebtsov 1996)) suit la même démarche que P.B.K à la différence qu'au lieu de déterminer la contribution de chaque particule et de chaque paire de particules, on détermine le C_{sca} de l'agrégat en le ramenant à un objet fractal. Ceci revient à exprimer les distances inter-particulaires comme étant celles dans un objet fractal.

Il est attendu, suivant Khlebtsov, que cette méthode ne décrive correctement que les propriétés optiques des grands agrégats ($N > 1000$).

B.IV.2.7 Diffraction Anormale (DA)

Nous avons fait la remarque dans B.III.1 que la morphologie avait son importance pour les grands paramètres de taille $\alpha \in [2;10]$. L'approximation de la diffraction anormale, explicitée en A.IV.3 (Hulst 1981), peut rendre compte de la morphologie de l'agrégat en suivant cette démarche :

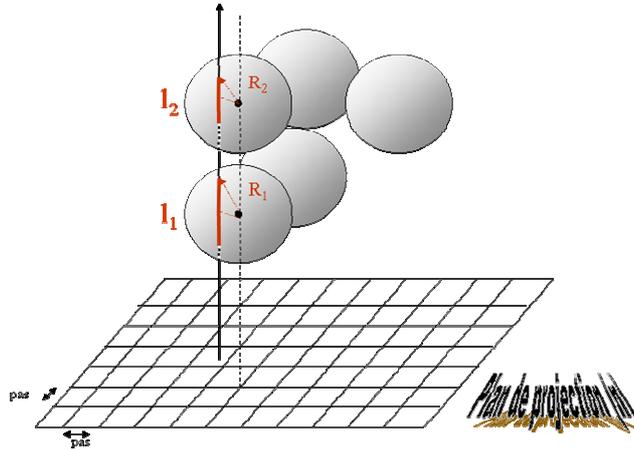


Figure B- IV-6: Cordes

On évalue les différentes cordes (ou intercepts) possibles $l_1, l_2 \dots$ que l'on introduit successivement dans l'équation (B.31) discrétisée pour obtenir C_{sca}

$$C_{sca} = 2 \iint_{[x,y]} \left(1 - \cos \frac{2\pi}{\lambda} l(m_r - 1)\right) dx dy \quad (\text{B.31})$$

$[x,y]$ représente un plan de projection.

On obtient un C_{sca} moyen en faisant tourner l'agrégat sur lui-même (ou en changeant le plan de projection) et en moyennant toutes les valeurs discrètes obtenues.

B.IV.3. Bilan

Dans les deux premières sous-sections de ce chapitre nous avons vu qu'il était préférable d'utiliser la RDG pour des agrégats ayant des particules primaires sphériques très petites, et de rendre compte de la distance d'interaction entre ces particules primaires quelque soit leur paramètre de taille. Ces constats ont été joints à ceux réalisés dans les deux premiers chapitres de cette partie B, pour construire des méthodes approchées.

Remarquons que toutes ces méthodes permettent, par leur formulation, d'obtenir une section efficace de diffusion moyennée sur l'ensemble des orientations que peut prendre un agrégat. Lorsque la méthode l'exige (IRE, DA), la moyenne est faite sur 50 plans de projection car on peut montrer qu'il n'y avait pas une augmentation d'erreur significative entre 50, 100 et 200 plans en regard de l'augmentation du temps de calcul.

Evaluons grossièrement les différences entre les méthodes citées dans les sections précédentes. Nous avons choisi de différencier la porosité et l'arrangement ; il est vrai que la porosité peut, en un certain sens, rendre compte de l'arrangement de l'agrégat, mais celle-ci dépend essentiellement du volume unité par rapport à laquelle on l'évalue.

Méthode	Prend-t-elle en considération?		Utilise-t-elle
	*L'agencement Autre que la porosité	*Les interactions	Maxwell-Garnett ? (Porosité)
Compacte	non	non	non
Creuse	non	non	oui
IRE	oui	non	oui
Fractal	oui	non	oui
PBK	oui	oui	non
DA	oui	oui	non
Khlebtsov	oui	oui	non

Tableau B- IV-2: Comparaison des différentes méthodes

La différence entre la méthode IRE et fractale, est que la première considère l'arrangement de façon précise en utilisant la surface projetée de l'agrégat tandis que la seconde utilise une dimension qui correspond à une gamme d'agrégats et n'est donc pas propre à chaque configuration.

Entre PBK et Khlebtsov, la différence est la façon d'évaluer la contribution de chaque paire de particules primaires, à la section efficace de diffusion; la première méthode somme l'ensemble des contributions individuelles des paires, alors que la deuxième l'évalue en tant

que groupe, en utilisant la dimension fractale et la fonction de distribution de paires pour un objet fractal.

Le domaine de validité, de toutes ces méthodes, est normalement l'ensemble des paramètres de taille à l'exception de DA, qui comme déjà mentionné, n'est à utiliser que dans le cas de grosses particules (voir A.IV.3.)

Dans le prochain chapitre nous allons comparer ces méthodes approchées à la méthode exacte.

Chapitre V Comparaison entre la méthode exacte et les méthodes approchées

Dans ce chapitre sont comparées les différentes méthodes approchées explicitées dans le chapitre précédent à la méthode exacte.

Pour cela, nous avons réalisé une étude sur les deux types de configurations que nous avons qualifiées plus haut de configurations extrêmes, à savoir la configuration chaîne présentée sur la colonne de gauche dans la palette des figures, et, la configuration compacte dans celle de droite. Nous avons réalisé cette comparaison en faisant varier le nombre de particules primaires au sein de l'agrégat (2, 4, 8, 16) et en choisissant successivement comme matériau SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2 (disposé sur chaque ligne).

Comme nous comparons la section efficace de diffusion de toutes ces méthodes $C_{methode,N}$ à celle de la méthode exacte $C_{Xu,N}$, nous avons défini le rapport R_m :

$$R_m = \frac{C_{methode,N}}{C_{Xu,N}} \quad (\text{B.32})$$

Pour chaque méthode nous présentons deux panels de figures, l'un permettant d'avoir une vue générale de l'amplitude des courbes sur l'ensemble des paramètres de taille ; l'autre en bornant R_m entre 0.5 et 1.5 avec toujours, en abscisse, le paramètre de taille compris entre 0 et 10. Rappelons, que si la méthode approchée est parfaite $R_m=1$ et qu'ainsi la gamme d'étude nous fait évaluer une méthode avec +/- 50% d'erreur.

Une première sélection parmi les méthodes proposées sera effectuée. Nous étudierons d'abord celles suspectées d'être les moins performantes : la méthode fractale et Khlebtsov, et dans une moindre mesure, les méthodes de la sphère creuse et compacte, puis nous évaluerons les performances des trois autres (PBK, DA, IRE).

B.V.1. Méthodes : Fractal, Khlebtsov, Creuse et Compacte

Les figures correspondant à ces méthodes sont en Annexe B. V. de ce rapport.

B.V.1.1 Méthodes Fractal et Khlebtsov

Dans le cas des deux méthodes utilisant des dimensions fractales, c'est-à-dire la méthode fractale et Khlebtsov, nous avons choisi $D_f=1$ pour une configuration en chaîne, $D_f=3$ pour une configuration compacte et un facteur de structure égale à l'unité (les résultats obtenus avec (B.30), n'étant pas très probants, ils ne sont donc pas présentés ici).

La méthode fractale sous-estime la section efficace de diffusion dans le cas de la configuration chaîne pour SiO_2 et s'avère complètement inutilisable pour ce type de configuration dans le cas d'indices de réfraction plus importants. Cette méthode affiche une erreur de moins de 10% vis-à-vis de la méthode exacte pour des agrégats en configuration compacte ayant de faibles indices (SiO_2) ; de plus cette erreur diminue avec l'augmentation du nombre de particules primaires constituant l'agrégat. Néanmoins, ce bon résultat n'est pas confirmé pour des indices de réfraction plus importants ; toutefois, il semblerait que cette méthode approchée pourrait convenir dans le cas d'agrégats composés d'un très grand nombre de particules primaires et ayant une configuration compacte. En effet, l'erreur commise dans ce type de configuration semble être une fonction décroissante du nombre de particules primaires.

La méthode Khlebtsov n'est, en aucun cas, une méthode à retenir au vu de la comparaison effectuée : elle surestime la section efficace de diffusion, et ce, quelque soit l'indice de réfraction du matériau, ou le paramètre de taille des particules primaires constituant l'agrégat.

B.V.1.2 Méthode de la sphère creuse et compacte

Contrairement aux idées reçues, le C_{sca} calculé dans le cadre d'une configuration compacte avec chacune de ces deux méthodes n'est pas sans erreur (bien que très utilisées). Le R_m de ces deux méthodes affiche des tendances opposées pour les faibles paramètres de taille, la méthode sphère creuse sous-estime la section efficace de diffusion tandis que la méthode de la sphère compacte la surestime et ce quelle que soit la configuration. Pour des paramètres de taille plus importants, le sens de variation du R_m de chaque méthode est inversé. Nous passons sous silence le caractère oscillant pour les forts indices, car l'erreur importante (50%) commise par ces deux méthodes, ne nous encourage pas à les conserver.

En conclusion sur ces méthodes, l'utilisation de la dimension fractale devait permettre de discerner les différentes configurations or, les résultats obtenus avec une configuration en chaîne la contre indiquent. De même, l'utilisation d'une sphère équivalente en volume (méthode compacte) pour décrire l'agrégat n'est pas suffisante puisqu'elle ne rend pas compte des interactions (interférence et diffusion multiple) qui interviennent de façon importante pour les indices forts (TiO_2). Pour les mêmes raisons, la méthode sphère creuse n'est pas concluante.

A ce stade de l'étude, nous savons, grâce à la méthode compacte, et à l'étude des courbes obtenues avec la méthode exacte, qu'il est nécessaire de prendre en considération les interactions inter-particulaires. Or ces interactions sont prises en considération dans la méthode Khlebtsov, laquelle ne donne pas satisfaction. Est-ce l'utilisation de la dimension fractale qui entache d'erreur la méthode ? Est-ce notre façon de définir une sphère équivalente comme dans les méthodes fractale, compacte et creuse qui n'est pas très judicieuse ?

B.V.2. PBK

PBK utilise la même démarche que Khlebtsov mais en déterminant la contribution de chaque particule primaire ou paire de particules primaires au C_{sca} tandis que la méthode Khlebtsov les considère en tant que groupe caractérisé par une dimension fractale. Ces deux méthodes incorporent l'effet des interférences et de la diffusion multiple.

Comme nous pouvons le voir sur la Figure B- V-1, cette méthode semble être une bonne approximation de la méthode exacte pour les très faibles paramètres de taille ($\alpha \ll 2$).

L'utilisation de la dimension fractale génère donc effectivement une erreur dans Khlebtsov.

La méthode (PBK) a une erreur inférieure à 10% pour un paramètre de taille compris entre 0 et 2 dans le cas du SiO_2 et de Al_2O_3 . Pour un indice de réfraction plus fort (TiO_2), l'erreur est plus importante puisqu'elle avoisine les 30% sur un domaine de paramètre de taille plus restreint [0 ;1].

La méthode PBK montre que les interactions considérées doivent se limiter aux faibles paramètres de taille ; leur participation au calcul majore le C_{sca} des agrégats formés de grandes particules primaires.

Considérons maintenant la Diffraction Anormale dans le cas d'un agrégat, pour voir si cette méthode nous permet de traiter les agrégats dont le paramètre de taille est important.

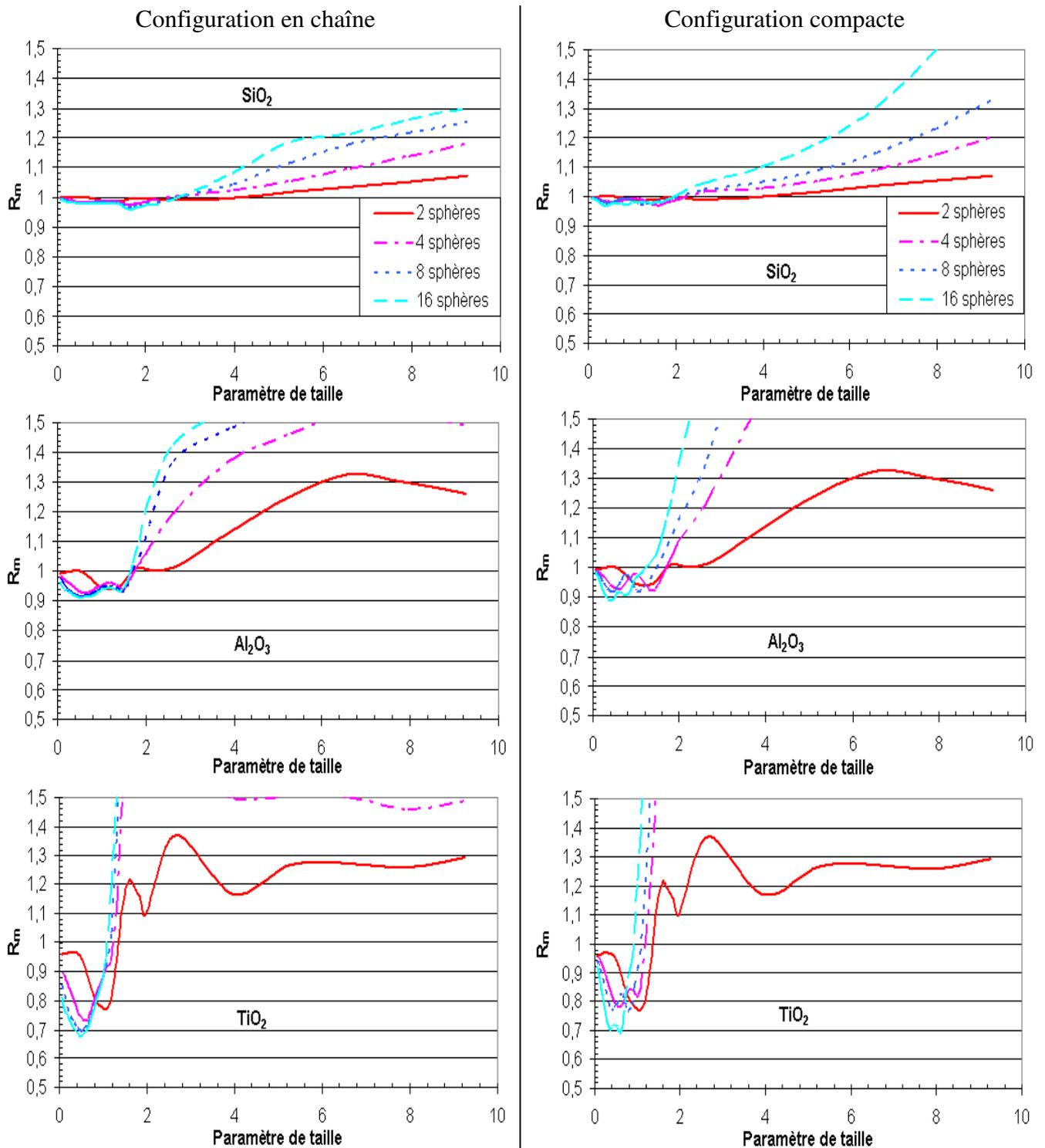


Figure B- V-1: Méthode PBK : Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).

B.V.3. DA

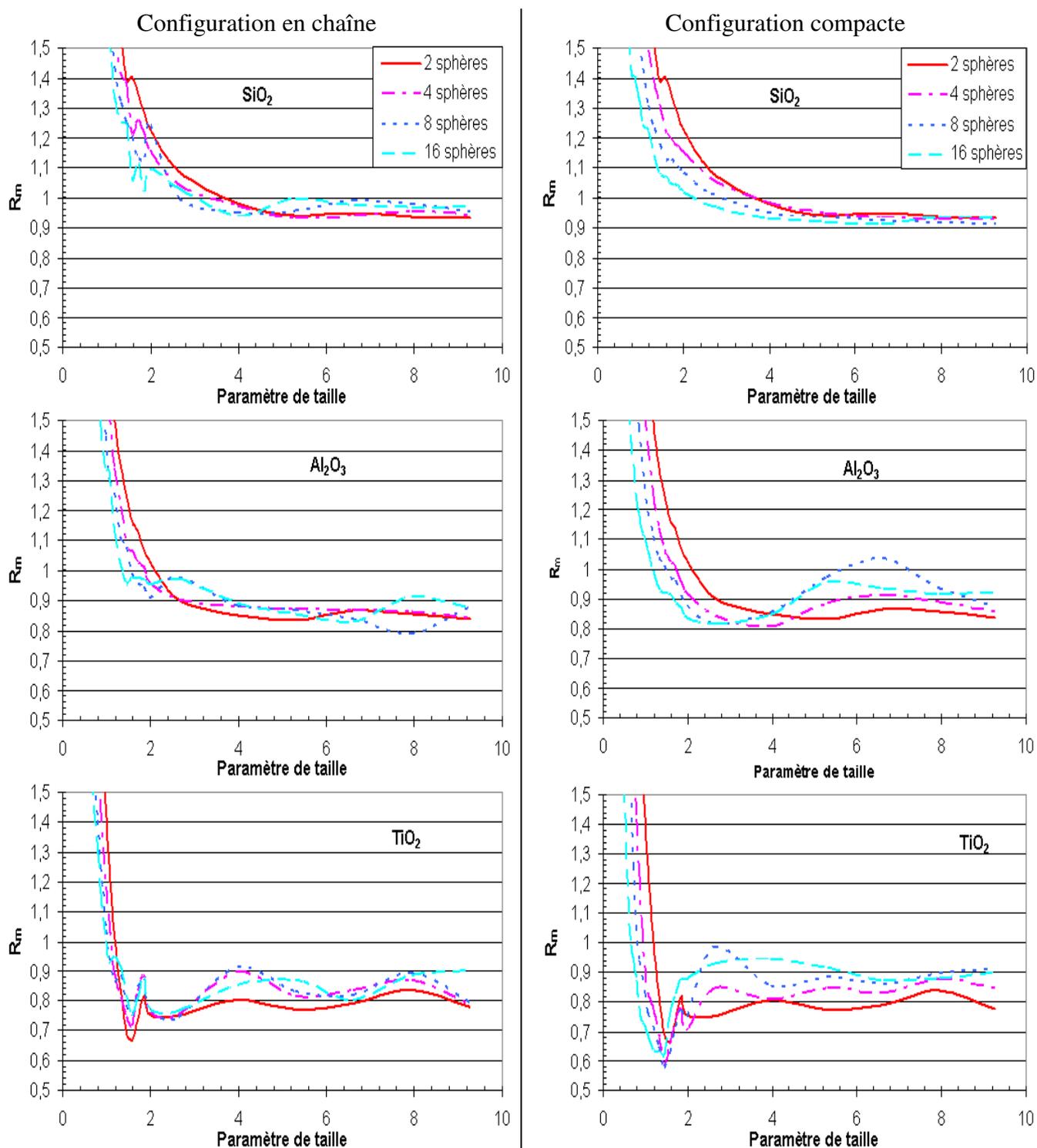


Figure B- V-2: Méthode AD: Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).

De façon attendue, la méthode DA est inadaptée aux faibles paramètres de taille mais s'avère être une très bonne approximation pour un paramètre de taille supérieure à 2. En effet, l'erreur n'est que d'environ 10% pour SiO₂, 20% pour Al₂O₃ et inférieure à 25% pour TiO₂ et ce quelque soit la configuration considérée. Il est important de rappeler que cette dernière est fortement liée à la configuration (morphologie) puisqu'elle comprend dans sa formulation la distribution de cordes (intercept) de cet agrégat.

L'étude réalisée dans le Chapitre I de la Partie B, nous a conduit à calculer une distribution de cordes pour les agrégats. Celle-ci peut être utilisée pour définir la méthode approchée DAr : diffraction anormale dite rapide. La distribution de cordes obtenue (B.I.4.2.b ii)) est utilisée pour calculer la section efficace de diffusion

$$C_{sca} = 2 \langle S_p \rangle \int_0^{l_{max}} \left(1 - \cos \frac{2\pi}{\lambda} l(m_r - 1) \right) D(l) dl$$

au lieu d'utiliser la formulation (B.31) plus longue en terme de CPU :

$$C_{sca} = 2 \left\langle \int_{S_p} \left(1 - \cos \frac{2\pi}{\lambda} l(m_r - 1) \right) dx dy \right\rangle_0$$

Les méthodes approchées DA et DAr (*Figure B- V-3*) conduisent à des courbes qualitativement et quasi quantitativement identiques, et ce, quelque soit la configuration et le matériau. Les résultats obtenus avec DAr sont moins proches de la méthode exacte que ne l'est DA mais en considérant que les temps de calcul sont divisés au moins par 100, cette méthode s'avère fort intéressante.

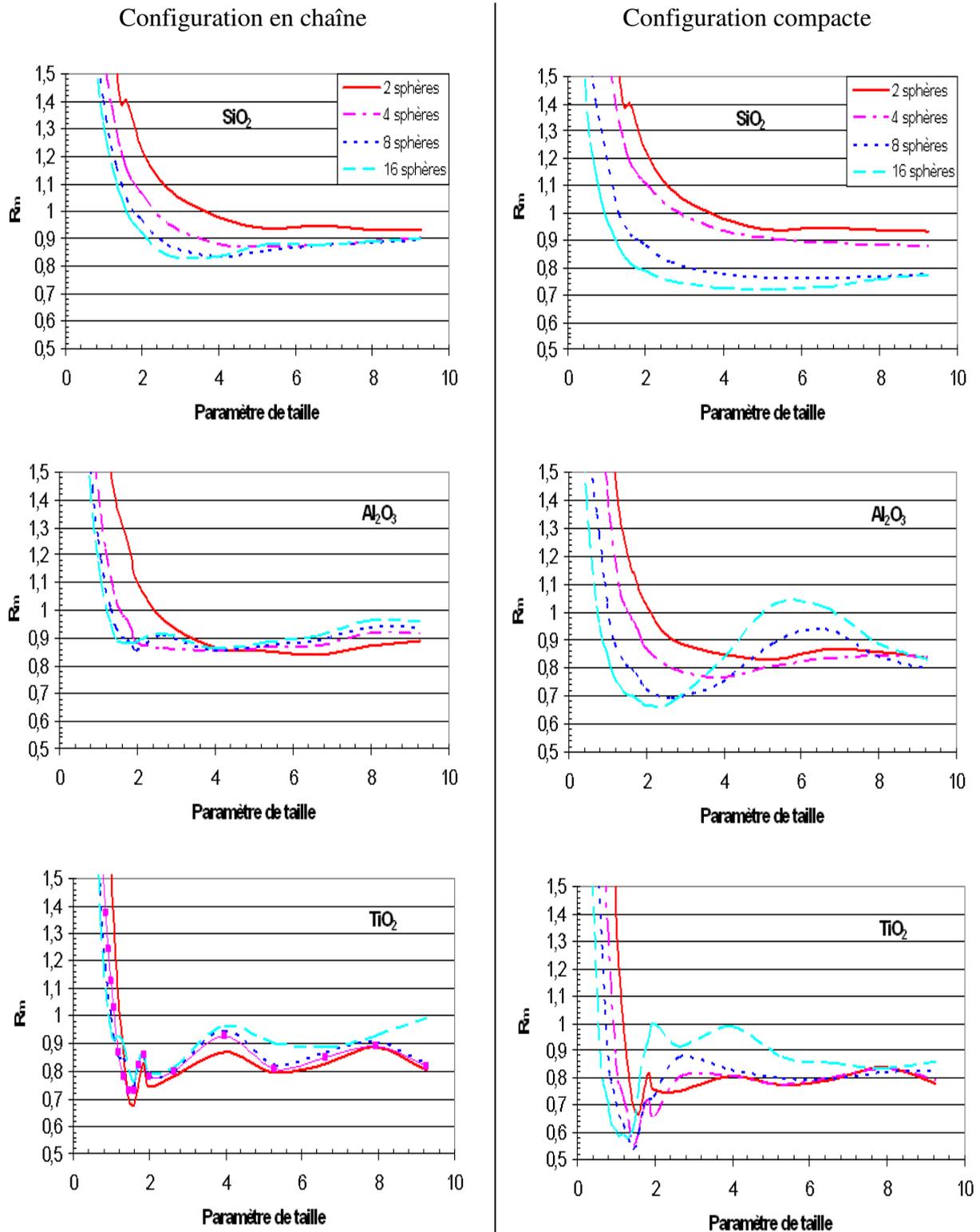


Figure B- V-3: Méthode ADr : Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

A ce stade, nous pourrions nous contenter d'affirmer qu'il faut utiliser la méthode PBK pour les petits paramètres de taille $[0 ; 2]$ et ADr pour les plus gros $[2, \infty[$, ce qui nous permettrait d'obtenir une bonne approximation pour des indices de réfraction faibles (SiO_2) et raisonnable pour les autres indices.

B.V.4. IRE

IRE définit une sphère équivalente, en moyennant sur différents plans la surface projetée de l'agrégat. Cette méthode est qualitativement supérieure aux autres méthodes calculant une sphère équivalente, car la fraction volumique en solide dans cette sphère sera toujours importante ($0.1 < f < 1$).

Elle a un comportement différent suivant le type de configuration pour les faibles paramètres de taille (*Figure B- V-4* et *B-V-5*). En effet, le C_{sca} calculé avec cette méthode est supérieur à celui de la méthode exacte pour une configuration en chaîne. Cette configuration entraîne-t-elle plus d'interférences destructives ? Comment pouvons-nous prendre ce phénomène en considération ? Ces questions sont d'importance car cette méthode nous laisse entrevoir la possibilité de l'existence d'une méthode approchée globale.

La méthode IRE pour une configuration compacte a une erreur inférieure à 25% pour un agrégat comportant 16 sphères aussi bien pour SiO_2 que pour Al_2O_3 , et, une erreur encore plus faible, pour un paramètre de taille supérieur à 2 dans le cas d'une configuration en chaîne. Pour un indice de réfraction plus élevé (TiO_2), les résultats sont un peu moins bons. Dans le cas d'une configuration compacte, l'erreur est de 20% pour un paramètre de taille supérieur à 2. Les oscillations pour un paramètre de taille supérieur à 2 sont dûes au choix de l'objet équivalent. L'objet équivalent étant ici une sphère il est donc normal de retrouver les irrégularités observées sur la *Figure B- III-1*.

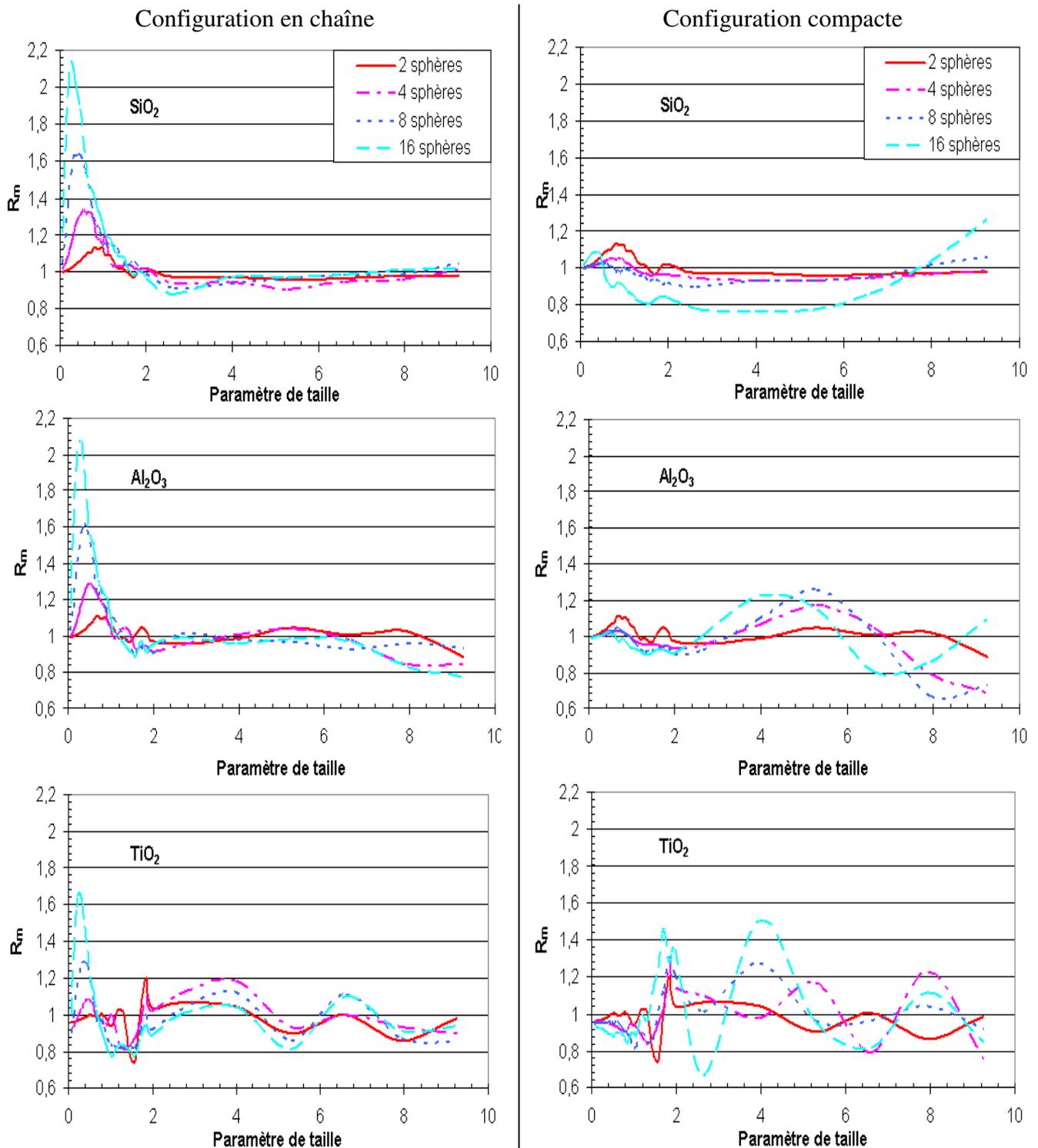


Figure B- V-4: Méthode IRE : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).

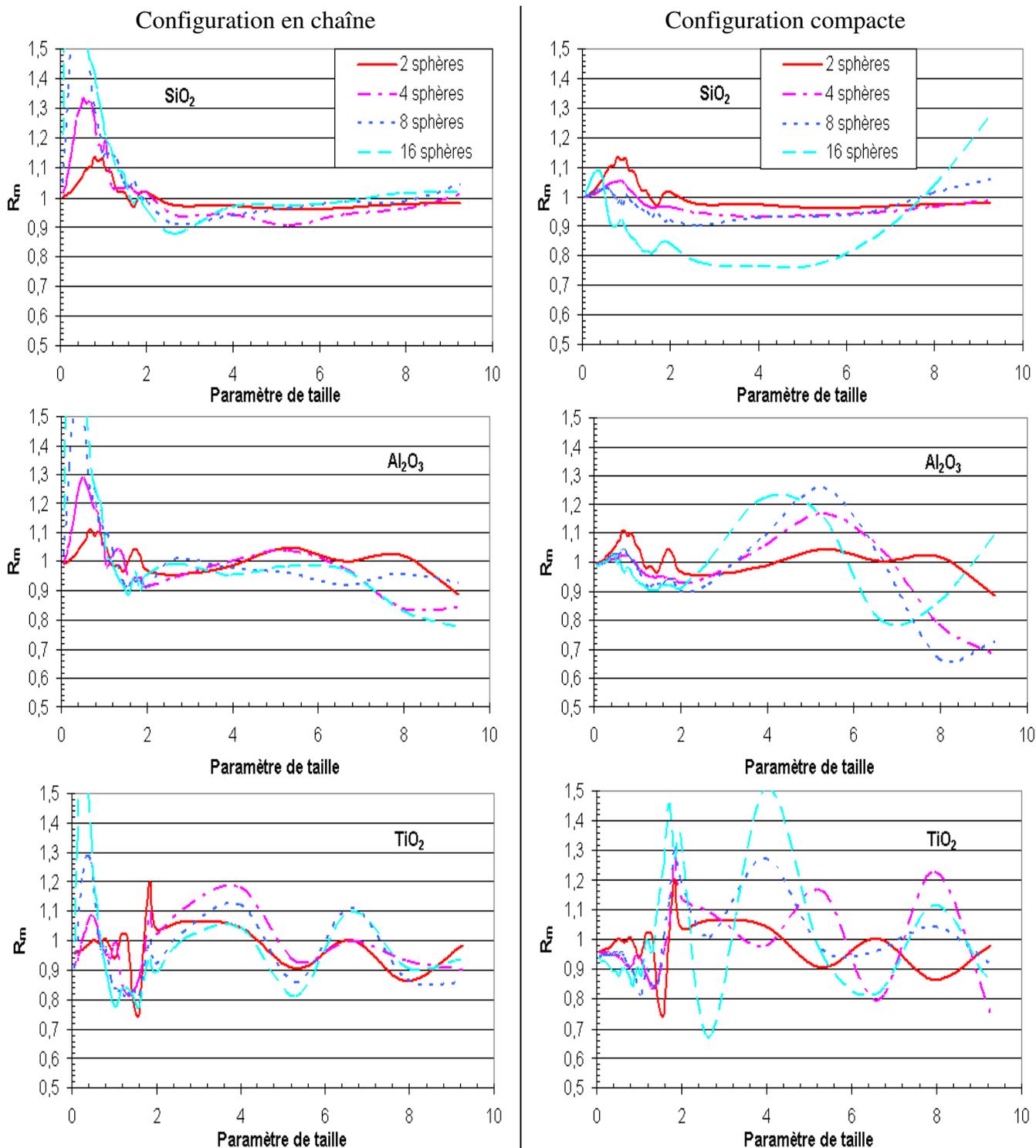


Figure B- V-5: Méthode IRE: Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ère} colonne) et en compacte (2^{ème} colonne).

B.V.5. Bilan sur les méthodes approchées :

Nous avons calculé, pour compléter l'évaluation de ces méthodes, la moyenne et l'écart type σ pour chaque méthode approchée. Ces moyennes sont effectuées sur l'ensemble des configurations compactes et chaînes avec 2, 4, 8, 16 sphères. Les configurations comportant 64 et 100 sphères ne sont pas incluses, car le nombre de paramètres de taille sur lequel a été réalisé leur étude est trop faible. Ainsi, chaque agrégat a le même poids sur le résultat.

Nous avons considéré, contrairement aux sections précédentes, la moyenne sur le rapport :

$$R_{m,c} = \frac{C_{\text{méthode},N}}{NC_{\text{méthode},1}} \frac{NC_{\text{Mie},1}}{C_{X_u,N}} = R_m \frac{C_{\text{Mie},1}}{C_{\text{méthode},1}}.$$

Cette modification permet de comparer l'agrégat à l'ensemble des particules primaires considérées indépendantes.

configuration	0 < α < 2											
	chaîne						compacte					
	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂	
indice	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ
méthode												
CS	1,73	0,95	1,72	0,95	1,39	0,88	1,20	0,24	1,21	0,25	1,07	0,32
IRE	1,23	0,35	1,16	0,31	1,00	0,18	1,02	0,05	0,99	0,05	0,97	0,12
PBK	0,99	0,02	0,96	0,06	0,81	0,21	0,99	0,01	0,98	0,07	0,85	0,17
DA	0,60	0,45	0,57	0,48	0,57	0,53	0,56	0,50	0,53	0,52	0,51	0,57
R _{xu}	2,47	2,32	2,56	2,45	2,85	3,08	3,70	4,12	3,82	4,34	3,97	5,06

Tableau B-V-1: Performance des meilleures méthodes suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 0 et 2, sauf pour les cellules entourées par un trait pointillé

$$0 < \alpha < 1$$

configuration	2 < α < 10											
	chaîne						compacte					
	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂	
indice	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ
méthode												
CS	1,37	0,45	0,68	0,46	0,64	0,43	1,14	0,16	0,78	0,29	0,80	0,27
IRE	0,97	0,05	0,95	0,08	0,98	0,10	0,96	0,05	0,98	0,16	1,00	0,18
PBK	1,10	0,14	1,47	0,51	1,46	0,56	1,14	0,22	2,57	2,18	2,56	2,31
DA	0,96	0,07	1,04	0,06	1,07	0,08	0,94	0,07	1,05	0,12	1,11	0,15
R _{xu}	1,17	0,20	0,88	0,16	0,83	0,18	1,40	0,50	0,76	0,38	0,66	0,38

Tableau B-V-2: Performance des meilleures méthodes suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 2 et 10, sauf pour les cellules entourées par un trait pointillé 1 < α < 10

Une méthode approchée convenable doit avoir la moyenne la plus proche de 1 et un écart type σ proche de 0.

On aboutit aux conclusions suivantes :

- L'approximation la plus naturelle est en fait $R_{Xu}=1$ (équation (B.24)), c'est-à-dire en considérant que la section efficace de diffusion d'un agrégat est proportionnelle au nombre de particules primaires le constituant $NC_{Mie,1}$. Comme on peut le voir dans les tableaux (*Tableau B-V-1* et *Tableau B-V-2*), ce n'est pas la meilleure approximation même pour de grands paramètres de taille.
- La méthode de la sphère compacte (SC) n'est pas appropriée.
- PBK est valable pour $0 < \alpha < 2$ avec une erreur qui augmente avec l'indice de réfraction du matériau
- DA est correcte pour $2 < \alpha < 10$ et est moins sensible à l'augmentation de l'indice de réfraction. DAr sera préférée, étant donné sa rapidité de calcul (*Annexe Tableau 16*).
- IRE est la meilleure méthode, car elle peut être envisagée sur l'ensemble des paramètres de taille. Néanmoins, la recherche d'une amélioration pour le cas d'une configuration en chaîne avec de faibles paramètres de taille est à envisager, ceci fera l'objet du chapitre suivant.

Chapitre VI :Méthode IRE

La méthode IRE s'est avérée, au cours de cette étude (Chapitre V), comme étant la méthode approchée la plus juste sur l'ensemble des paramètres de taille. Nous lui avons consacré une attention particulière et donc, ce chapitre est dédié à son amélioration.

Cette méthode qui consiste à trouver un objet équivalent à l'agrégat afin de pouvoir utiliser la théorie de Mie, possède la particularité d'être modulable suivant la géométrie de cet objet équivalent. Nous aborderons dans un premier temps le cas d'une sphère équivalente puis celui du sphéroïde équivalent à un agrégat. Puis nous testerons cette méthode pour des agrégats construits aléatoirement (BPCA, BCCA).

B.VI.1. Sphère équivalente à un agrégat :

B.VI.1.1 Utilisation de la méthode IRE pour le calcul de la section efficace de pression de radiation

De la même façon que nous avons montré l'efficacité de la méthode approchée IRE pour le calcul de la section efficace de diffusion, nous allons évaluer ses performances pour le calcul de la section efficace de pression de radiation. Le rapport des sections efficaces de pression de radiation obtenu d'une part avec la méthode exacte et d'autre part avec la méthode approchée, est défini conformément à (B.32) et noté R_m .

Sur la *Figure B- VI-1* est présentée l'évolution de ce rapport, en fonction du paramètre de taille des particules primaires constituant l'agrégat, et en fonction de leur nature (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2). La section efficace de pression de radiation est calculée pour différents types d'agrégats constitués de 2, 4, 8, 16 particules primaires formant une configuration compacte ou chaîne. Rappelons que si la méthode approchée est parfaite, R_m est égale à 1. Quelque soit le type de configuration ou de matériau, l'allure générale des courbes est semblable à celles obtenues lors de l'évaluation de cette même méthode pour le calcul de la section efficace de diffusion (*Figure B- V-4*). En effet, dans le cas des configurations en chaîne, nous remarquons également la présence d'un pic pour des paramètres de taille inférieurs à 2. Ce comportement était attendu, car le paramètre d'asymétrie $\langle \cos\theta \rangle$ tend vers 0, quand α tend vers 0, c'est-à-

dire que les sections efficaces de diffusion et de pression de radiation deviennent égales. Toutefois, pour $\alpha > 2$, la méthode approchée s'écarte de la méthode exacte.

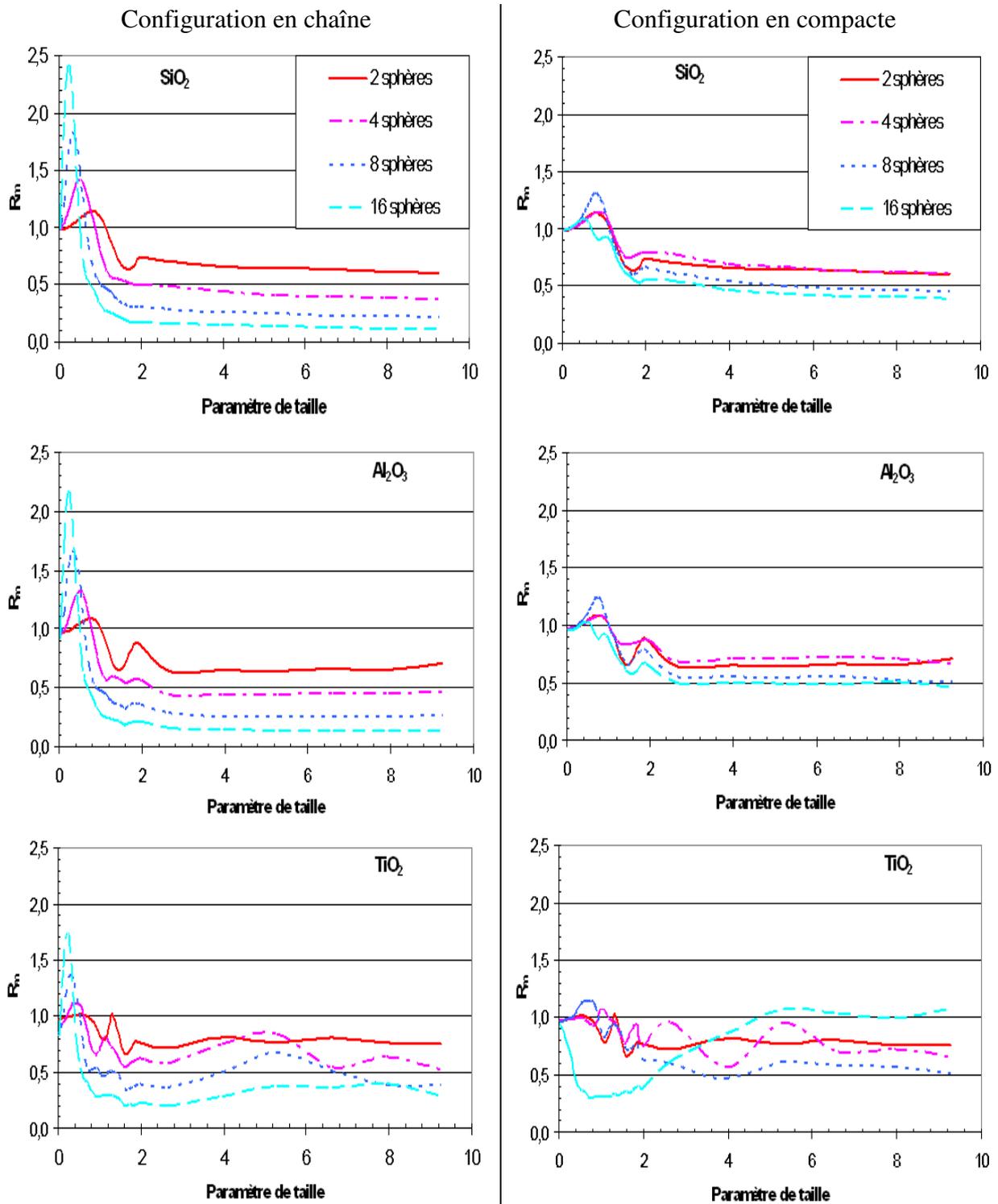


Figure B- VI-1: Méthode IRE : R_m pour la section efficace de pression de radiation, pour un paramètre de taille compris entre 0 et 10, de 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) suivant deux configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et en compacte (2^{ième} colonne).

Pour faciliter la comparaison de l'efficacité de cette méthode pour le calcul des deux sections efficaces (de diffusion et de radiation de pression), nous avons construit le *Tableau B- VI-1* sur le même modèle que les tableaux bilans (*Tableau B-V-1* et *Tableau B-V-2*)

configuration	Paramètre de taille	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂	
		moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ
chaîne	0<α<2	0,91	0,47	0,85	0,44	0,78	0,39
	2<α<10	0,36	0,66	0,38	0,65	0,55	0,49
compact	0<α<2	0,97	0,17	0,93	0,15	0,83	0,30
	2<α<10	0,57	0,44	0,60	0,41	0,76	0,30

Tableau B- VI-1: Performance de la méthode IRE pour le calcul de la section efficace de pression de radiation.

La moyenne et l'écart type sont calculés sur l'ensemble des agrégats étudiés pour chaque type de configuration. La méthode pour le calcul de la section efficace de pression de radiation est peu efficace pour des paramètres de taille supérieurs à 2, car même dans le cas des configurations compactes (ou l'efficacité moyenne est de 97% pour le calcul de la section efficace de diffusion) l'efficacité moyenne est de l'ordre de 64%.

Sans remettre en question la méthode approchée IRE, il convient de la corriger.

B.VI.1.2 Amélioration de la méthode IRE

B.VI.1.2.a) Pour le calcul de la section efficace de diffusion

L'étude précédente nous a montré que la méthode IRE n'était pas valable pour une configuration en chaîne dans le cas de faible paramètre de taille (*Figure B- V-4*).

B.VI.1.2.a) i) Démarche :

Nous suggérons de corriger la méthode IRE de la façon suivante. Nous considérons le

rapport : $F = \frac{C_{IRE,N}}{C_{XU,N}} \frac{C_{XU,1}}{C_{IRE,1}}$. Il présente toujours la même dépendance qualitative vis-à-vis du

paramètre de taille : $R = F - 1$ tend vers 0 quand α tend vers 0 et ∞ ; $R(\alpha)$ montre un maximum R_{max} pour une certaine valeur de α : α_{max} . Le couple $(\alpha_{max} ; R_{max})$ dépend de la morphologie de l'agrégat, du nombre de particules primaires et, dans une moindre mesure, de l'indice de réfraction.

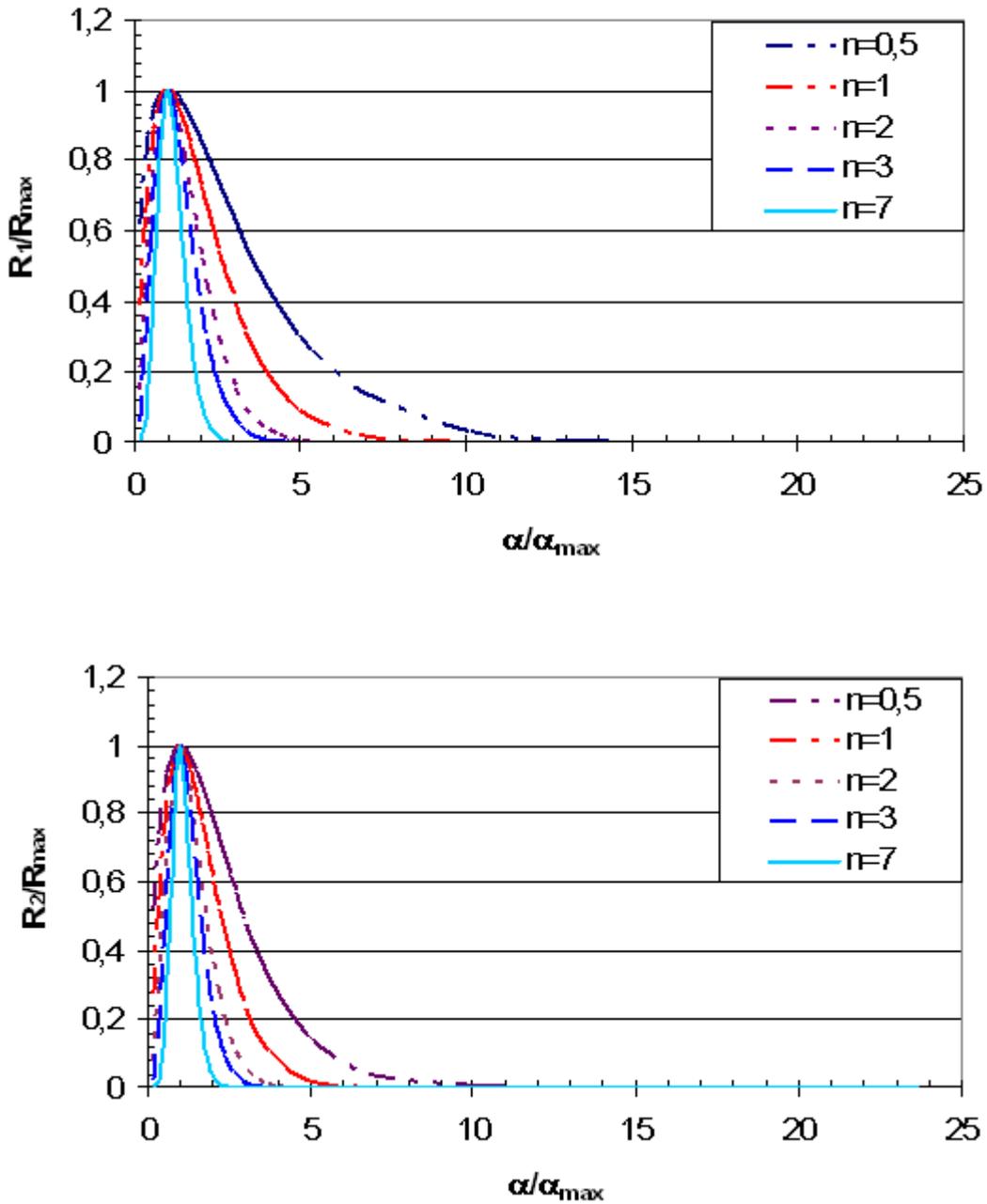


Figure B- VI-2: Fonction $R_1(\alpha)/R_{max}$ et $R_2(\alpha)/R_{max}$ pour différentes valeurs de n

La dissymétrie de la fonction $R(\alpha)$ suggère de représenter cette dernière à l'aide d'une fonction du type gamma :

$$\frac{R}{R_{max}} = A \left(\frac{\alpha}{\alpha_{max}} \right)^n e^{-mg \left(\frac{\alpha}{\alpha_{max}} \right)}$$

- n, m, A sont des constantes,

- $g(x)$ est une fonction dont l'expression peut être :

$$* g_1(x) = x \text{ d'où } \frac{R_1}{R_{\max}} = \left(\frac{\alpha}{\alpha_{\max}} \right)^n e^{-n \left(\frac{\alpha}{\alpha_{\max}} - 1 \right)} \quad (\text{B.33})$$

$$* g_2(x) = x - \sqrt{x} \text{ d'où } \frac{R_2}{R_{\max}} = \left(\frac{\alpha}{\alpha_{\max}} \right)^n e^{-2n \left(\frac{\alpha}{\alpha_{\max}} - \sqrt{\frac{\alpha}{\alpha_{\max}}} \right)} \quad (\text{B.34})$$

Notre choix se portera sur cette dernière (B.34), car sa décroissance (lorsque α tend vers 2), plus faible que pour $g_1(x)$, correspond mieux au comportement de F.

La Figure B- VI-2 représente les fonctions $R_1(\alpha)/R_{\max}$ et $R_2(\alpha)/R_{\max}$. La Figure B- VI-3 montre la pertinence du choix de R/R_{\max} .

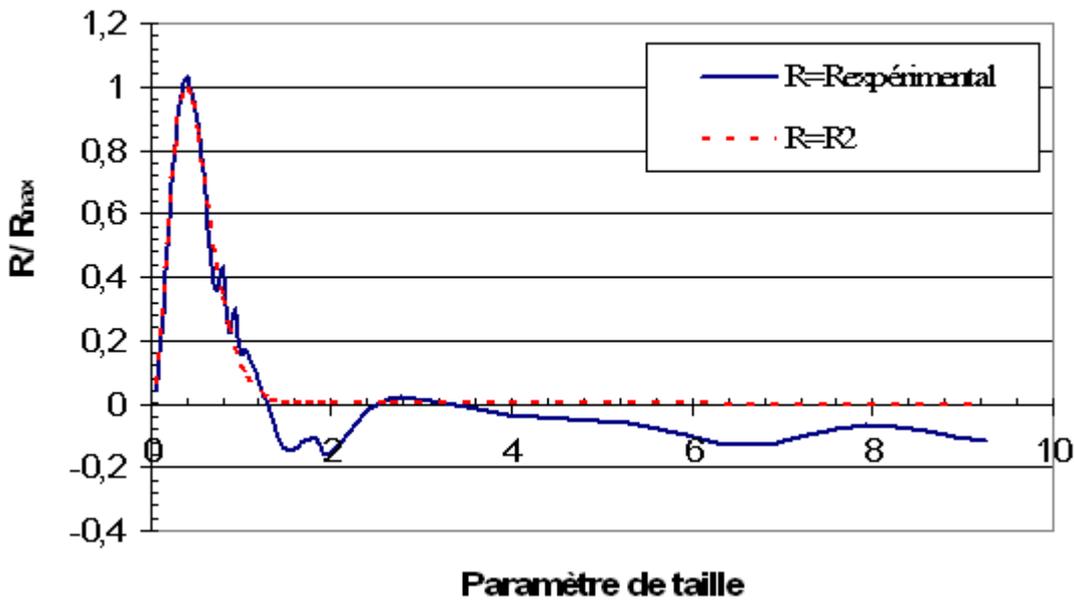


Figure B- VI-3: Concordance de $R_2(\alpha)/R_{\max}$ et $R_{\text{expérimental}}(\alpha)/R_{\max}$ pour un agrégat en configuration en chaîne composé de 8 particules primaires dans le cas de Al_2O_3

Afin de déterminer α_{\max} , R_{\max} et n , ceux-ci ont été tout d'abord ajustés pour chaque configuration en chaîne (où seul le nombre de particules primaires varie), de façon à ce que F soit le plus proche possible du rapport R_m quelque soit le matériau utilisé.

La sensibilité de F à la morphologie de l'agrégat, nous conduit à exprimer les paramètres α_{\max} , et R_{\max} en fonction d'un paramètre morphologique ; nous choisirons pour ce dernier d_1 ,

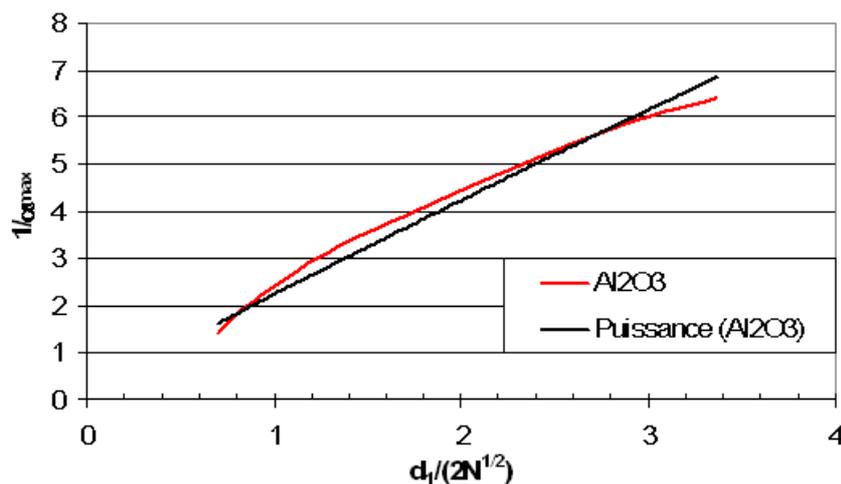
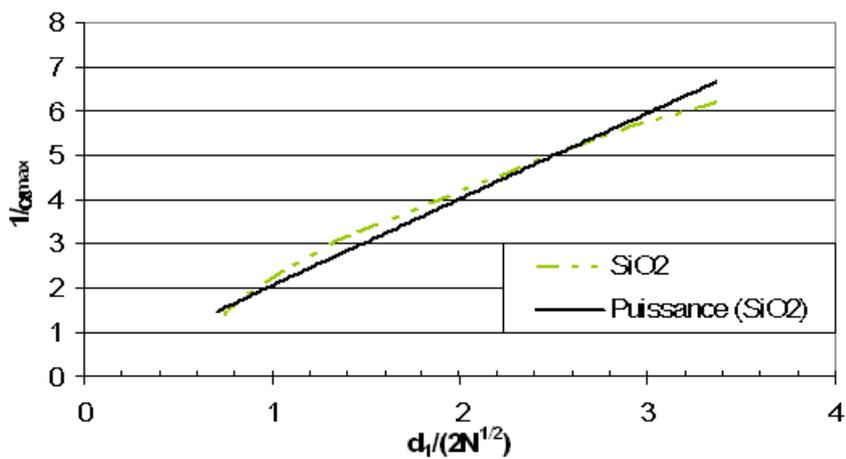
distance moyenne inter-particule au sein d'un agrégat. La pertinence de d_1 est associée à la méthode PBK.

Nous commencerons par exprimer α_{\max} en fonction de d_1 et N , puis R_{\max} et n .

- Paramètre α_{\max}

Nous avons étudié le comportement de $\frac{1}{\alpha_{\max}}$ en fonction de la distance d_1 et du nombre de

particules primaires N . $\frac{1}{\alpha_{\max}}$ suit une loi de puissance



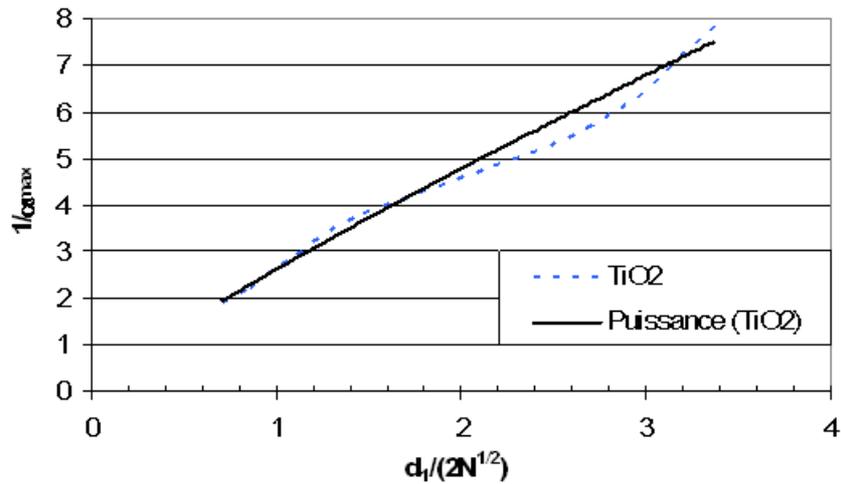


Figure B- VI-4: $1/\alpha_{\max}$ en fonction de d_1 et N , calculé pour des agrégats en configuration chaîne, composés de 2, 4, 8, 16, 64 et 100 particules primaires, pour les trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2)

D'où $\alpha_{\max} = a \left(\frac{d_1}{2\sqrt{N}} \right)^b$ avec une erreur moyenne de 9%, a et b sont des fonctions linéaires de l'indice de réfraction relatif m_r :

$$a = 0.6514m_r + 1.3582 \text{ et } b = -0.1134m_r + 1.0845$$

- Paramètre R_{\max}

R_{\max} est également approché par une loi puissance.

$$R_{\max} = c \left(\frac{2\sqrt{N}}{d_1} \right)^d \text{ avec une erreur moyenne de 21\%, avec c et d, fonctions linéaires de}$$

l'indice de réfraction relatif m_r : $c = -0.2355m_r + 0.6749$ et $d = -0.5289m_r - 1.3444$

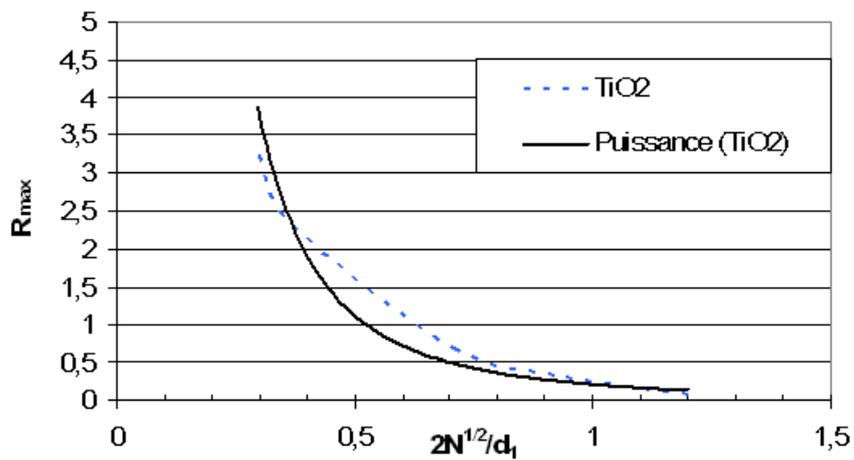
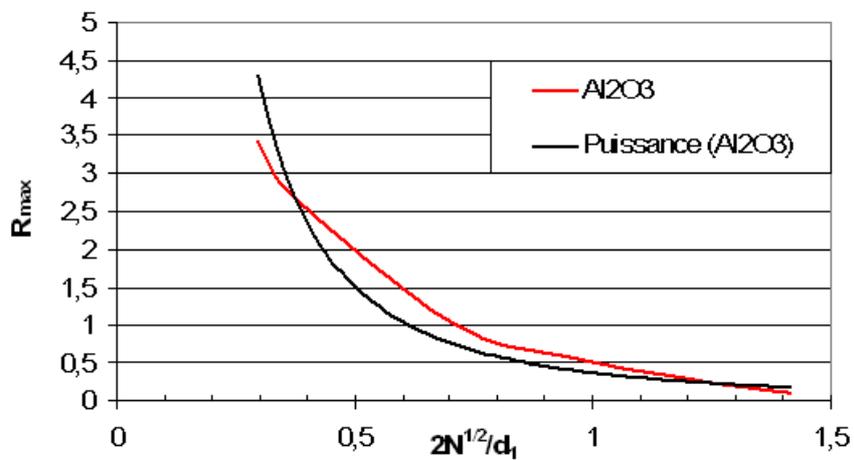
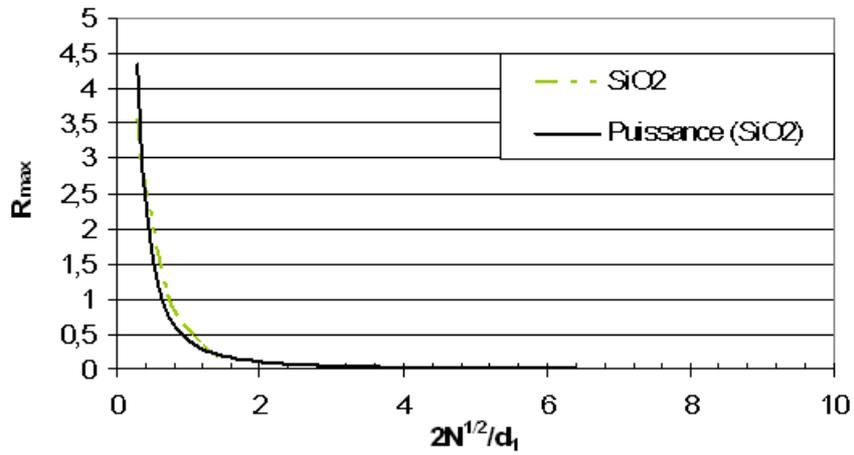


Figure B- VI-5: R_{max} en fonction de d_1 et N pour les trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2)

- Paramètre n

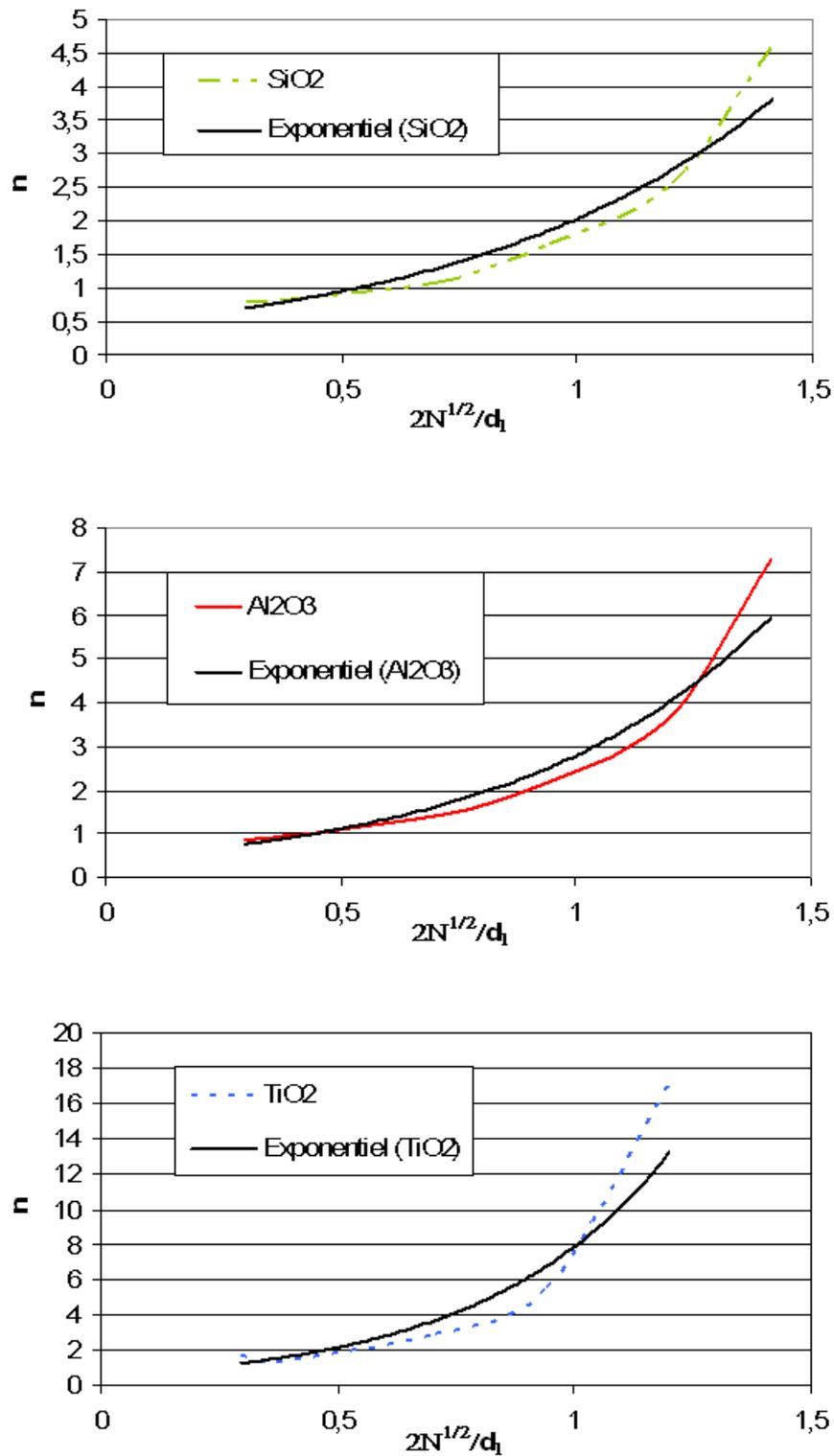


Figure B- VI-6: Evolution de n en fonction de d_1 et N pour les trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2)

n suit une loi exponentielle $n = ge^{\frac{2\sqrt{N}}{d_1}h}$ avec une erreur moyenne de 19%: g et h sont des fonctions linéaires de l'indice de réfraction relatif m_r : $g = 0.1907m_r + 0.2197$ et $h = 1.2346m_r + 0.119$

La sensibilité moindre de F à m_r suggère de proposer une approximation ne tenant pas compte de l'indice de réfraction relatif :

$$\alpha_{\max} \approx 2.3 \left(\frac{d_1}{2\sqrt{N}} \right)^{0.92}$$

$$R_{\max} \approx 0.33 \left(\frac{2\sqrt{N}}{d_1} \right)^{-2.1}$$

$$n \approx 0.5e^{2\left(\frac{2\sqrt{N}}{d_1}\right)}$$

Nous dénommerons la fonction F : F_1 lorsque α_{\max} , R_{\max} et n dépendront de m_r et F_2 dans le cas contraire. La section efficace de diffusion corrigée $C_{IRE,N}^C$ obéira à l'expression :

$$C_{IRE,N}^C = C_{IRE,N} / F_i \quad i=1,2$$

B. VI.1.2.a) ii) Résultats :

Les résultats correspondants ont été collectés dans le *Tableau B- VI-2*, où ils sont présentés de la même façon que ceux du *Tableau B-V-1*. Ainsi la moyenne du rapport : $R_{m,c} = R_m \frac{C_{Mie,1}}{C_{méthode,1}}$ pour chaque type de configuration et matériau en utilisant la méthode IRE, est comparée à celle obtenue avec la méthode corrigée IRE/F : Ces moyennes sont effectuées sur l'ensemble des configurations compactes et chaînes avec 2, 4, 8, 16 sphères.

configuration	0< α <2											
	chaîne						compacte					
	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂	
indice												
methode	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ
IRE	1,23	0,35	1,16	0,31	1,00	0,18	1,02	0,05	0,99	0,05	0,97	0,12
IRE/F ₁	1,02	0,06	1,02	0,07	0,95	0,11	0,98	0,05	0,97	0,05	0,96	0,13
IRE/F ₂	1,10	0,06	1,04	0,10	0,95	0,12	1,00	0,04	0,97	0,05	0,95	0,14

Tableau B- VI-2: Correction de la méthode IRE avec une fonction F pour $\alpha \in [0, 2]$

On améliore donc significativement les résultats pour une configuration en chaîne au détriment (quoique légèrement) de la configuration compacte.

Les valeurs obtenues pour un paramètre de taille supérieur à 2 sont inchangées et sont identiques à celles du *Tableau B-V-2* dans le cas de la méthode IRE.

Les résultats obtenus pour des agrégats constitués de 64 et 100 particules primaires ne sont pas intégrés dans les tableaux. Le nombre de paramètres de taille pour lesquels nous disposons de la section efficace de diffusion obtenue avec la méthode exacte (temps de calcul très important) est insuffisant pour réaliser une comparaison convenable. Néanmoins, ces gros agrégats ont permis d'affiner le choix des lois régissant α_{\max} , R_{\max} et n .

La différence entre F_1 et F_2 étant faible, l'utilisation de F_2 est satisfaisante et justifiée.

B.VI.1.2.b) Pour le calcul de la section efficace de pression de radiation

B.VI.1.2.b) i) Démarche :

La même méthode a été appliquée pour améliorer la méthode approchée IRE pour le calcul de la section efficace de pression de radiation. Nous avons pu constater sur la *Figure B- VI-1*, que le rapport R_m possédait également un maximum R_{\max} . Ce maximum correspondant au paramètre de taille α_{\max} . Les notations utilisées ici sont identiques à celles utilisées dans le paragraphe précédent, car le couple $(\alpha_{\max}, R_{\max})$ pour un agrégat donné est quasiment inchangé. On constate également sur cette même figure, que pour un paramètre de taille supérieur à α_{\max} , la décroissance de R_m est plus rapide et que lorsque α tend vers l'infini, R_m est inférieur à 1. Toutefois, la valeur de R_m , lorsque α tend vers l'infini, est une valeur considérée constante, dépendant de la morphologie de l'agrégat. Cette valeur est dénommée h_{\min} . Nous avons donc cherché à exprimer h_{\min} en fonction de d_1 qui est la distance moyenne inter particule et N . La *Figure B- VI-7*, montre les variations de h_{\min} en fonction de N et d_1 , approchées par une loi logarithmique (avec une erreur inférieure à 8%) paramétrée par l'indice de réfraction des particules primaires.

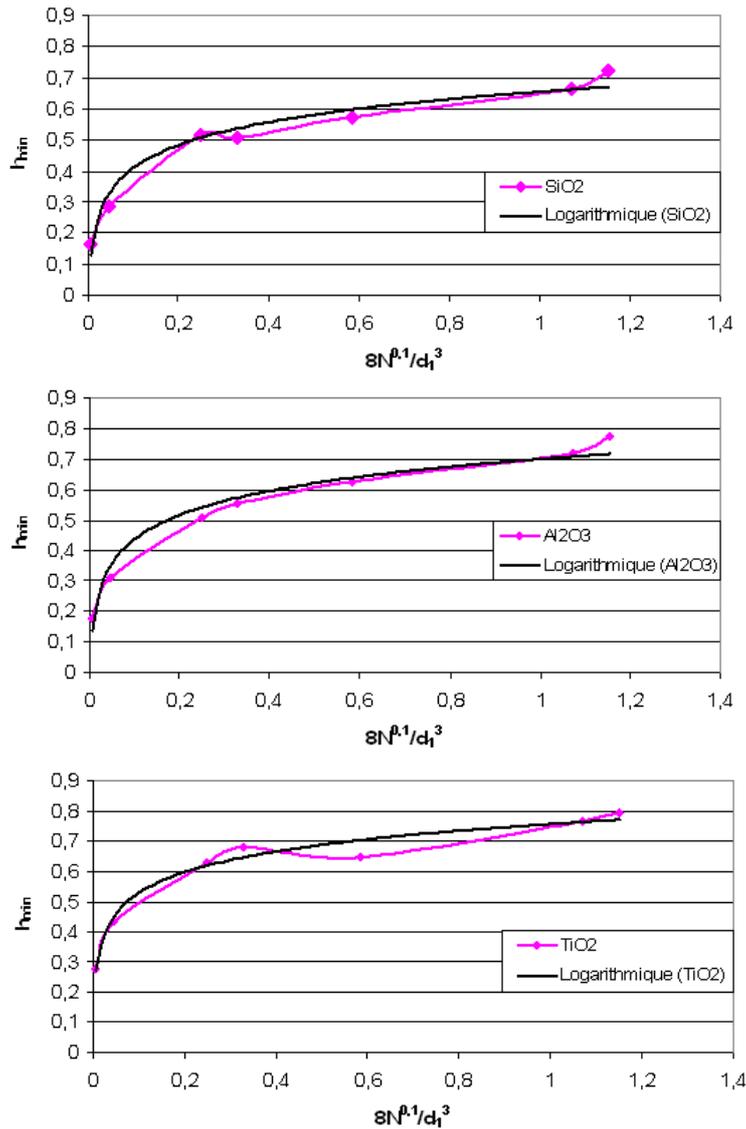


Figure B- VI-7: Evolution de h_{\min} en fonction de d_1 pour SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2 .

Ces considérations nous conduisent à exprimer la fonction G permettant de corriger la section efficace de pression de radiation obtenue avec la méthode approchée IRE comme suit :

$$\text{Si } \alpha < \alpha_{\max} \quad G = F_2, \text{ sinon } G = F_2 + (1 - h_{\min}) \left(e^{-2 \left(\frac{\alpha}{\alpha_{\max}} - 1 \right)} - 1 \right) \quad (\text{B.35})$$

Avec : - pour SiO_2 : $h_{\min} = 0.106 \ln(8N^{0.1}/d_1^3) + 0.65$

- pour Al_2O_3 : $h_{\min} = 0.114 \ln(8N^{0.1}/d_1^3) + 0.7$

- pour TiO_2 : $h_{\min} = 0.1 \ln(8N^{0.1}/d_1^3) + 0.76$

La sensibilité moindre de h_{\min} à m_r suggère de proposer une approximation n'en tenant pas compte : $h_{\min} = 0.1 \ln(8N^{0.1}/d_1^3) + 0.7$.

La section efficace de pression de radiation corrigée $C_{pr,IRE,N}^C$ obéira à l'expression :

$$C_{pr,IRE,N}^C = C_{pr,IRE,N} / G.$$

B.VI.1.2.b) ii) Résultats:

La section efficace de pression de radiation obtenue par la méthode IRE et corrigée par G, est beaucoup plus proche de la valeur exacte qu'elle ne l'est sans correction. Dans les *Tableau B-VI-3* et *Tableau B-VI-4* sont répertoriés la moyenne et l'écart type de la méthode IRE et IRE/G pour le calcul de la section efficace de pression de radiation suivant la configuration (compacte ou chaîne) et le matériau (SiO_2 , Al_2O_3 ou TiO_2). Les agrégats considérés ici, sont constitués de 2, 4, 8 et 16 particules primaires. Nous avons présenté ces résultats suivant les deux domaines définis en (B.VI.1.1).

		0 < α < 2											
configuration	chaîne						compacte						
indice	SiO_2		Al_2O_3		TiO_2		SiO_2		Al_2O_3		TiO_2		
méthode	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	
IRE	0,91	0,47	0,85	0,44	0,78	0,39	0,97	0,17	0,93	0,15	0,83	0,30	
IRE/G	1,29	0,39	1,16	0,25	0,94	0,13	1,06	0,14	1,02	0,11	0,87	0,29	

Tableau B- VI-3: Performance des méthodes IRE et IRE/G pour C_{pr} pour différents matériaux et un paramètre de taille compris entre 0 et 2.

		2 < α < 10											
configuration	chaîne						compacte						
indice	SiO_2		Al_2O_3		TiO_2		SiO_2		Al_2O_3		TiO_2		
méthode	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	
IRE	0,36	0,66	0,38	0,65	0,55	0,49	0,57	0,44	0,60	0,41	0,76	0,30	
IRE/G	0,93	0,17	0,90	0,15	1,07	0,23	0,92	0,13	0,90	0,11	1,06	0,30	

Tableau B- VI-4: Performance des méthodes IRE et IRE/G pour C_{pr} pour différents matériaux et un paramètre de taille compris entre 2 et 10.

Les résultats obtenus avec IRE/G sont plus proches de la méthode exacte que ne le sont ceux obtenus avec IRE. Nonobstant, ils ne sont pas parfaits et demanderont une amélioration pour, les paramètres de taille inférieurs à 2 et les indices de réfraction élevés (TiO_2). Ceci provient du fait que nous avons voulu conserver les mêmes couples (α_{\max} , R_{\max}).

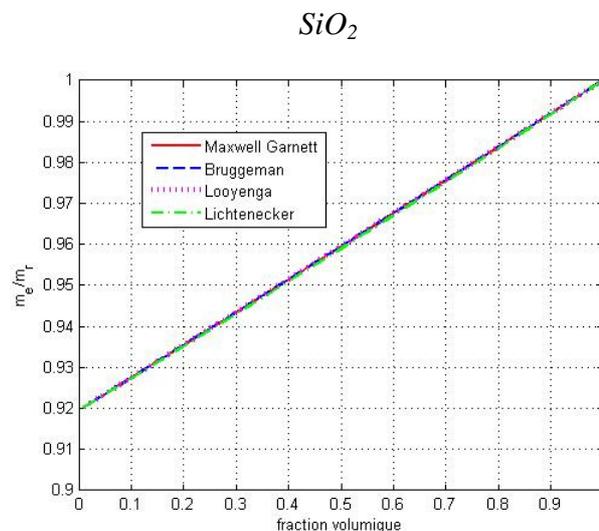
De plus pour des paramètres de taille supérieurs à 1.5 une analyse complémentaire (issue des remarques faites lors de l'étude de la méthode exacte B.III.2 et se trouvant en Annexe B.V.) conclut que la section efficace de pression de radiation d'un agrégat est plus justement proportionnelle à celle d'un doublet vis-à-vis du C_{pr} obtenue avec la méthode exacte que ne l'est C_{pr} avec IRE corrigé par G. La plus grande facilité d'utilisation de la fonction G nous incite à la conserver comme élément de correction.

B.VI.1.2.c) En changeant la méthode de calcul de l'indice effectif

Afin d'améliorer la méthode IRE nous nous sommes également intéressés à la façon de calculer l'indice effectif.

La bibliographie sur la façon de calculer l'indice effectif d'un mélange de deux matériaux est assez abondante mais n'aboutit pas pour l'instant à un consensus sur la façon d'aborder le cas d'un agrégat. Nous avons donc décidé de tester les plus simples d'entre elles, en n'oubliant pas que l'application de ce travail sera l'inversion du signal turbidimétrique. En effet, lorsque la caractérisation des agrégats est envisagée, c'est à partir de ses propriétés optiques que sont déduites leur forme, leur taille...etc. Les expressions employées doivent donc être les plus simples possibles. Dans ce paragraphe sont testées quatre méthodes : celle de Maxwell-Garnett (eq.1.101) utilisée dans notre étude des méthodes approchées, celle de Bruggeman (eq.1.102), celle de Looyenga (eq.1.104) et celle de Lichtenecker (1.103).

Les figures ci-dessous représentent le rapport de l'indice effectif m_e à l'indice de réfraction relatif m_r des trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) en fonction de la fraction volumique.



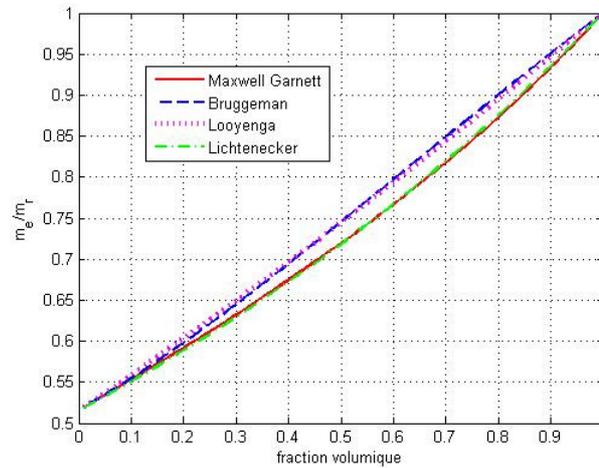
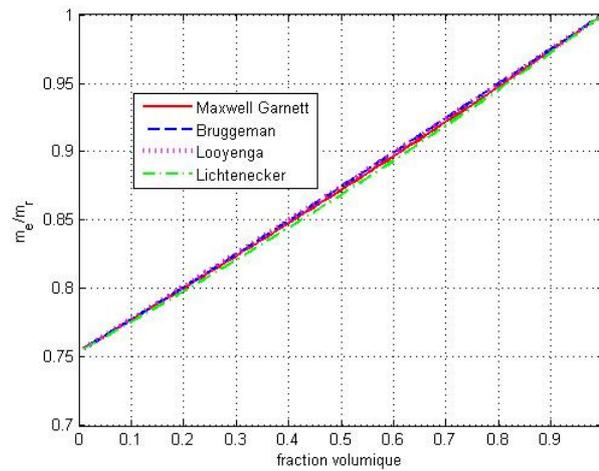


Figure B- VI-8: Indice effectif normalisé de SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2 en fonction de la fraction volumique.

Ces quatre méthodes aboutissent à des résultats similaires pour des indices faibles de réfraction d'inclusions (SiO_2 , Al_2O_3) et diffèrent légèrement pour le plus élevé (TiO_2).

Il apparaît intéressant de tester ces méthodes de calcul d'indice effectif avec la méthode approchée IRE servant à déterminer la section efficace de diffusion. Rappelons que, dans cette méthode, l'indice effectif était initialement calculé d'après Maxwell-Garnett. Dans les tableaux ci-dessous sont rassemblés, pour une configuration en chaîne (Tableau B- VI-5), et pour une configuration compacte (Tableau B- VI-6) l'erreur moyenne par rapport à la

méthode exacte et l'écart type correspondant, pour la section efficace de diffusion d'agrégats constitués de 2, 4, 8, 16 particules primaires sur une gamme de paramètre de taille $\alpha \in [0,10]$.

		MG	Bruggeman	Lichtenecker	Looyenga
SiO ₂	erreur moyenne	19,6%	19,7%	18,1%	19,7%
	écart type	18,5%	18,4%	16,9%	18,4%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	16,4%	18,6%	14,2%	18,8%
	écart type	16,1%	18,2%	12,4%	18,4%
TiO ₂	erreur moyenne	12,1%	20,2%	11,9%	20,7%
	écart type	10,0%	18,0%	9,1%	18,7%

Tableau B- VI-5: Configuration en chaîne : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion, calculés avec la méthode IRE et différentes méthodes d'indice effectif, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 10

		MG	Bruggeman	Lichtenecker	Looyenga
SiO ₂	erreur moyenne	4,2%	4,2%	4,3%	4,2%
	écart type	3,5%	3,7%	3,5%	3,7%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	5,7%	6,2%	7,3%	6,0%
	écart type	6,4%	6,5%	5,9%	6,5%
TiO ₂	erreur moyenne	10,6%	12,8%	10,0%	11,2%
	écart type	8,6%	8,7%	8,8%	7,9%

Tableau B- VI-6: Configuration compacte : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion, calculés avec la méthode IRE et différentes méthodes d'indice effectif, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégat de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 10

La méthode de Lichtenecker améliore légèrement les résultats dans le cas d'une configuration en chaîne et, est équivalente à celle de Maxwell-Garnett dans le cas d'une configuration compacte. Sa formulation étant très simple, nous l'utiliserons dorénavant pour calculer l'indice effectif, d'autant plus, que cette méthode n'est pas limitée à une forme d'inclusion sphérique contrairement à celle de Maxwell-Garnett.

Nous avons vu dans ce paragraphe B.VI.1 que la méthode IRE pouvait être améliorée à partir des fonctions F_2 et G . Nous préconisons également d'utiliser la méthode de Lichtenecker pour le calcul de l'indice effectif de la sphère équivalente.

Peut-on améliorer la méthode IRE en choisissant un autre objet équivalent et éviter les artifices des fonctions F_2 et G ?

B.VI.2. Sphéroïde équivalent à un agrégat

Nous avons vu dans les chapitres précédents que la méthode IRE est la meilleure méthode approchée permettant de calculer les propriétés optiques des agrégats. Or, cette méthode utilise une géométrie dite équivalente à celle de l'agrégat et dénommée : sphère équivalente. Bien que cette méthode approchée affiche des résultats assez satisfaisants pour l'obtention de la section efficace de diffusion, ses performances pour le calcul de la section efficace de pression de radiation nous ont suggéré un besoin d'amélioration. Dans cette partie nous tâcherons donc de voir si la géométrie de l'objet équivalent peut permettre d'améliorer les performances de IRE. Pour cela nous envisageons de considérer le sphéroïde comme l'objet équivalent.

Dans les paragraphes suivants, seront donc présentés les résultats afférents à cette géométrie sphéroïdale. Auparavant, nous devons être en mesure d'appliquer la théorie de Mie à un sphéroïde.

B.VI.2.1 Historique

Nous avons choisi comme objet équivalent un sphéroïde plutôt qu'un ellipsoïde, car des travaux ont permis de mettre en place des codes de calcul appliquant la théorie de Mie aux seules géométries sphéroïdales.

La détermination des champs suit la même procédure que celle évoquée pour une particule sphérique (Partie A.Chapitre II)

Dans un système de coordonnées sphéroïdales, les vecteurs d'onde sphérique (VSWF : (A.28)-(A.31)) sont remplacés par les vecteurs d'onde sphéroïdale. Les champs sont alors exprimés en fonction des vecteurs d'onde sphéroïdale (comme dans l'équation (A.16)) et les coefficients sont déterminés à partir des conditions aux limites (surface de la particule). Les détails de ces étapes sont présentés dans l'article de Asano et Yamamoto (Asano and Yamamoto 1975). Par la suite, des améliorations ont été apportées pour permettre d'obtenir les propriétés optiques de sphéroïdes très allongés ou aplatis avec des temps de calcul plus courts (Voshchinnikov and Farafonov 1992), (Farafonov, Il'in et al. 1999).

Nous avons testé différents codes disponibles sur le web ou fournis par leurs auteurs (que nous remercions au passage pour leur aide) dont entre autres celui de Farafonov, Voshchinnikov³ et Xu. Le code de calcul de Xu s'est avéré plus facile d'utilisation par rapport à nos besoins (moyenne des propriétés optiques sur l'ensemble des orientations), c'est donc celui-ci qui sera utilisé dans les tests suivants.

B.VI.2.2 Amélioration de la méthode IRE

Dans le premier chapitre (B.I.3.3.b)) de cette partie, nous avons défini les dimensions d'un sphéroïde équivalent que nous qualifierons de méthode n°1. Nous allons comparer les sections efficaces de diffusion et celles de pression de radiation obtenues avec ce sphéroïde équivalent et une sphère équivalente. Nous essayerons également de mettre en place une technique de calcul simple du sphéroïde équivalent (méthode n°2).

B.VI.2.2.a) Avec un sphéroïde défini par la méthode n°1 :

La méthode utilisée pour calculer l'indice effectif est celle de Lichtenecker. Dans un premier temps (*Tableau B- VI-7*) l'erreur moyenne et l'écart type (vis-à-vis de la méthode exacte), calculés pour C_{sca} et C_{pr} d'agrégats en configuration compacte constitués de 2, 4, 8 et 16 particules primaires, sont comparés suivant le type d'objet équivalent (sphère ou sphéroïde).

³<http://www.astro.spbu.ru/staff/ilin2/SOFTWARE/>

Puis le même type de comparaison est effectué, pour des agrégats toujours constitués de 2, 4, 8 et 16 particules primaires, mais en configuration en chaîne (Tableau B- VI-8). La stabilité du code de calcul dans le cas d'un sphéroïde équivalent a limité cette étude à des paramètres de taille compris entre 0 et 4 pour des configurations compactes et 0 et 2 pour des configurations en chaîne.

		C_{sca}		C_{pr}	
Objet équivalent		Sphère équivalente	Sphéroïde équivalent Méthode n°1	Sphère équivalente	Sphéroïde équivalent Méthode n°1
SiO ₂	erreur moyenne	3,9%	3,8%	16,1%	15,0%
	écart type	2,9%	3,3%	13,4%	14,6%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	5,8%	6,1%	14,0%	15,2%
	écart type	3,6%	4,7%	12,6%	13,9%
TiO ₂	erreur moyenne	9,7%	10,1%	8,1%	10,5%
	écart type	8,7%	8,2%	8,5%	8,3%

Tableau B- VI-7: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration compacte (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) pour $\alpha \in [0,4]$ et les trois matériaux (SiO₂, Al₂O₃, TiO₂)

		C_{sca}		C_{pr}	
Objet équivalent		Sphère équivalente	Sphéroïde équivalent Méthode n°1	Sphère équivalente	Sphéroïde équivalent Méthode n°1
SiO ₂	erreur moyenne	20,3%	19,4%	40,3%	31,8%
	écart type	17,7%	15,6%	22,2%	19,1%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	15,9%	15,3%	32,1%	29,8%
	écart type	13,1%	13,1%	18,6%	16,4%
TiO ₂	erreur moyenne	11,8%	14,4%	32,4%	27,6%
	écart type	9,3%	10,1%	17,5%	14,6%

Tableau B- VI-8: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration chaîne (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) pour $\alpha \in [0,2]$ et les trois matériaux (SiO₂, Al₂O₃, TiO₂)

Au vu des résultats obtenus, l'utilisation d'un sphéroïde équivalent ne conduit pas à une amélioration spectaculaire de la méthode IRE. Mais ces résultats peuvent être influencés par les dimensions du sphéroïde équivalent déterminé avec la méthode n°1. Remettant en cause la façon de définir ce sphéroïde équivalent, nous présenterons une autre méthode (méthode n°2) permettant d'aboutir à des résultats plus concluants. La comparaison entre la méthode n°1 et 2 a été reportée en Annexe B.VI. (page XXXVI)

B.VI.2.2.b) Avec un sphéroïde défini par la méthode n°2:

La difficulté est de trouver le sphéroïde équivalent représentant au mieux la géométrie de l'agrégat. Les résultats précédents, notamment ceux de l'étude de la géométrie des agrégats (Partie B.Chapitre I) et de l'évaluation des méthodes approchées (Partie B.Chapitre V), nous conduisent à utiliser la surface projetée de l'agrégat pour déterminer ce sphéroïde équivalent.

Nous avons suggéré de déterminer les caractéristiques 3D d'un agrégat (*Figure B- I-1*) avec :

- u_1 : sa plus grande dimension,
- u_2 : sa plus grande dimension après projection de ce dernier sur un plan perpendiculaire à la droite portant (\vec{u}_1)
- u_3 : sa plus grande dimension après projection de ce dernier sur un plan perpendiculaire à la droite portant (\vec{u}_2)

A partir de u_1 , u_2 et u_3 on peut définir un sphéroïde ou un parallélépipède rectangle. Or le sphéroïde équivalent doit avoir un volume V_s inférieur à celui du parallélépipède rectangle

$$V_p : V_s < V_p \quad (V_p = u_1 u_2 u_3)$$

Ainsi, plusieurs possibilités sont offertes pour définir le volume V_s , voici celle qui nous a conduit aux meilleurs résultats :

Soit V_e le volume de l'ellipsoïde : $V_e = 1/6 \pi(u_1 u_2 u_3)$

Et V_r le volume défini à partir du rayon équivalent projeté $R_{p,f}$ de l'agrégat (B.23) :

$$V_r = \frac{4}{3} \pi R_{p,f}^3$$

On impose la condition que si $V_e > V_r$ alors $V_s = V_r$, dans le cas contraire $V_s = \frac{V_e + V_r}{2}$.

Par la suite, les dimensions du sphéroïde équivalent sont obtenues :

Si $u_1 \approx u_2 \approx u_3$	Si $u_1 > u_2 \approx u_3$	Si $u_1 \approx u_2 > u_3$
Le sphéroïde est une sphère	Le sphéroïde est de type oblong :	Le sphéroïde est de type aplati :
$a = b = u$	$a = \frac{u_1}{2}$	$a = \frac{u_3}{2}$
	$b = \sqrt{\frac{V_s}{(4/3)\pi a}}$	

Nous obtenons ainsi un sphéroïde équivalent dont les dimensions sont répertoriées en °*Annexe Tableau 20*. Le même type de démarche que celle utilisée dans la méthode IRE est suivi. La détermination d'une fraction volumique de solide dans le sphéroïde, de l'indice de réfraction effectif à l'aide de la théorie de Lichtenecker (théorie valide pour des inclusions non sphériques), est réalisée. Enfin, le calcul des sections efficaces est obtenu avec la théorie de Mie pour un sphéroïde (B.VI.2.1).

B.VI.2.2.c) Evaluation de l'amélioration avec un sphéroïde équivalent :

Nous avons effectué la comparaison de la méthode du sphéroïde équivalent avec celle de la méthode exacte pour le calcul de la section efficace de diffusion et celui de la section de pression de radiation, pour les agrégats déjà mentionnés dans cette étude, c'est-à-dire correspondant à des configurations compactes et en chaîne.

Cette comparaison a été réalisée sur une gamme de paramètres de taille réduite de 0 à 4, pour des agrégats en configuration compacte, et, de 0 à 2 pour des agrégats en configuration chaîne. Cette limitation du paramètre de taille des particules primaires, est due à la non

convergence du programme utilisé (défaut de tous les codes de calcul actuels) pour déterminer les caractéristiques optiques du sphéroïde équivalent tel que nous l'avons défini.

B.VI.2.2.c) i) Pour le calcul de la section efficace de diffusion :

L'erreur moyenne et l'écart type de la méthode du sphéroïde équivalent vis-à-vis de la méthode exacte sont rassemblés dans les tableaux (*Tableau B- VI-9* et *Tableau B- VI-10*), lors de son utilisation pour évaluer la section efficace de diffusion. Mais ces tableaux contiennent également les résultats de la comparaison entre la méthode IRE et la méthode exacte, ce qui nous permet de juger ou non de l'amélioration des résultats au regard du choix de l'objet équivalent.

Tout d'abord, à l'aide du *Tableau B- VI-9*, nous pouvons constater que les performances obtenues avec un sphéroïde équivalent sont comparables (voire légèrement supérieures de 1%) à celles obtenues avec une sphère équivalente, et ce, quelque soit la nature du matériau (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) dans le cas des configurations compactes.

	Méthode de calcul de l'indice effectif	Sphère équivalente		Sphéroïde équivalent
		Maxwell Garnett	Lichtenecker	Lichtenecker
SiO_2	erreur moyenne	3,9%	3,9%	3,7%
	écart type	2,8%	2,9%	3,2%
Al_2O_3	erreur moyenne	4,0%	5,8%	4,0%
	écart type	3,4%	3,6%	2,6%
TiO_2	erreur moyenne	10,4%	9,7%	8,1%
	écart type	8,6%	8,7%	7,6%

Tableau B- VI-9: Configuration compacte : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 4

Par la suite, seuls des agrégats de 2 et 4 particules primaires en configuration en chaîne ont pu être testés (limitation du programme). Les résultats qui en découlent sont encourageants mais mériteraient d'être confirmés pour des agrégats constitués d'un plus grand nombre de

particules primaires. En effet, les performances du sphéroïde équivalent sont supérieures d'environ 3% à celles de la sphère équivalente.

	Méthode de calcul de l'indice effectif	Sphère équivalente		Sphéroïde équivalent
		Maxwell Garnett	Lichtenecker	Lichtenecker
SiO ₂	erreur moyenne	10,0%	8,8%	6,1%
	écart type	7,9%	7,1%	4,8%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	8,0%	7,0%	5,8%
	écart type	6,3%	4,5%	4,2%
TiO ₂	erreur moyenne	6,6%	6,1%	10,5%
	écart type	6,5%	6,6%	5,6%

Tableau B- VI-10: Configuration en chaîne : erreur moyenne et écart type de la section efficace de diffusion calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2 et 4 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 2

Il est donc possible d'améliorer les performances de la méthode IRE en changeant la géométrie de l'objet équivalent.

B.VI.2.2.c) ii) Pour le calcul de la section efficace de pression de radiation :

Le résultat du calcul de la section efficace de pression de radiation à l'aide d'un sphéroïde équivalent est comparé à celui obtenu avec une sphère équivalente. Le *Tableau B- VI-11* et le *Tableau B- VI-12* rassemblent les performances de chaque méthode suivant le type de configuration, qui sont respectivement les configurations compacte et chaîne. Les calculs sont soumis aux mêmes limitations : sur la gamme des paramètres de taille et le nombre de particules primaires au sein de l'agrégat considéré.

Les résultats obtenus pour des configurations compactes avec un sphéroïde équivalent sont à peine meilleurs que ceux obtenus avec la sphère équivalente.

Dans le cas des agrégats en chaîne, la section efficace de pression de radiation, calculée à partir de la méthode approchée utilisant un sphéroïde équivalent, est plus proche de la valeur

exacte que ne l'est cette dernière de la valeur issue de la méthode approchée utilisant la sphère équivalente.

	Méthode de calcul de l'indice effectif	Sphère équivalente		Sphéroïde équivalent
		Maxwell Garnett	Lichtenecker	Lichtenecker
SiO ₂	erreur moyenne	16,3%	16,1%	14,8%
	écart type	12,9%	13,4%	12,1%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	13,7%	14,0%	13,2%
	écart type	11,8%	12,6%	11,4%
TiO ₂	erreur moyenne	8,7%	8,1%	8,6%
	écart type	8,9%	8,5%	8,1%

Tableau B- VI-11: Configuration compacte : erreur moyenne et écart type de la section efficace de pression de radiation calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2, 4, 8, 16 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 4

	Méthode de calcul de l'indice effectif	Sphère équivalente		Sphéroïde équivalent
		Maxwell Garnett	Lichtenecker	Lichtenecker
SiO ₂	erreur moyenne	22,6%	21,9%	14,3%
	écart type	13,5%	14,0%	8,5%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	19,4%	18,7%	13,0%
	écart type	11,6%	12,8%	7,6%
TiO ₂	erreur moyenne	16,0%	15,6%	14,6%
	écart type	12,9%	12,7%	9,8%

Tableau B- VI-12: Configuration en chaîne : erreur moyenne et écart type de la section efficace de pression de radiation calculés, en utilisant une sphère ou un sphéroïde équivalent, par rapport à la méthode exacte dans le cas d'agrégats de 2 et 4 particules primaires dont le paramètre de taille varie entre 0 et 2

L'étude, réalisée ici, est incomplète et ne permet en aucun cas d'affirmer la validité de l'utilisation d'un sphéroïde équivalent. Il est tout d'abord primordial d'améliorer le programme permettant de calculer les propriétés optiques d'un sphéroïde en éliminant ses problèmes de convergence. Par la suite, la méthode de détermination des dimensions du sphéroïde équivalent est sans doute à améliorer.

B.VI.3. BPCA et BCCA

Comme annoncé, nous avons voulu conclure cette étude numérique en testant des agrégats ayant une forme aléatoire obtenues à l'aide des mécanismes BPCA et BCCA décrits en B.I.1. Etant donné que la méthode IRE avec une sphère équivalente a fait l'objet d'une étude plus approfondie pendant ces travaux, cette méthode approchée sera donc évaluée pour ce type d'agrégats.

B.VI.3.1 Agrégats obtenus avec les mécanismes BPCA et BCCA:

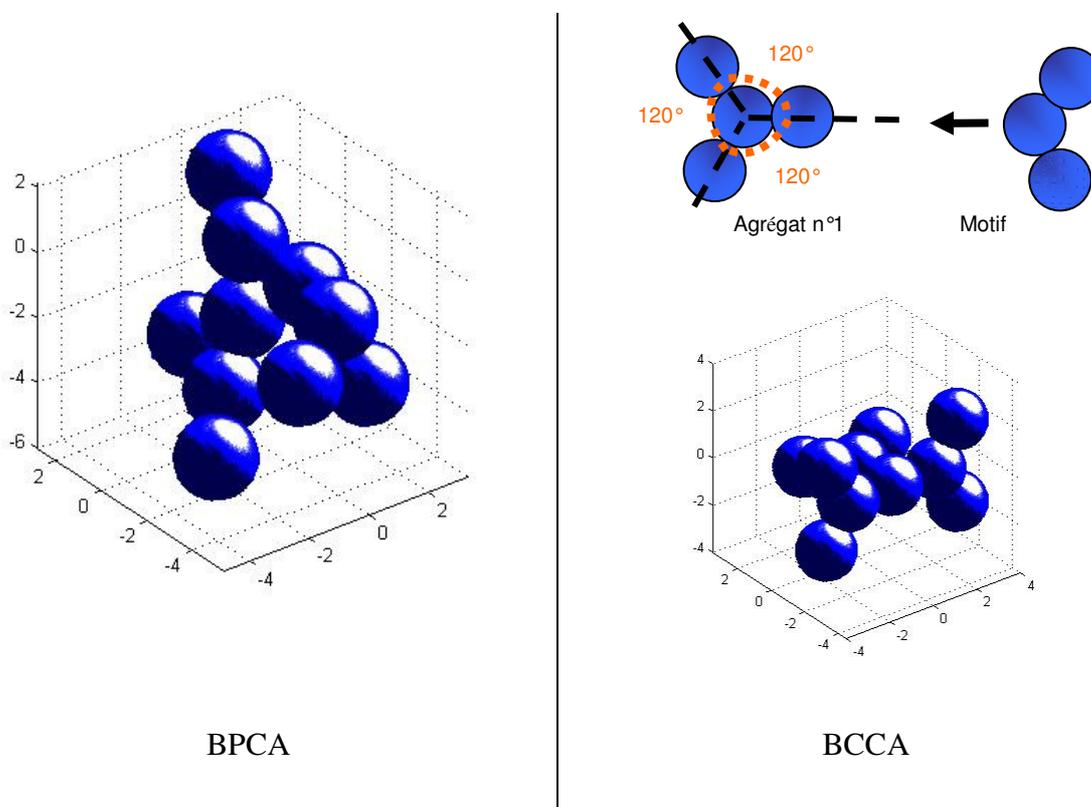


Figure B- VI-9 : Exemple d'agrégats de 10 particules primaires construits à partir des mécanismes BPCA et BCCA.

La Figure B- VI-9 illustre la construction des agrégats. Les agrégats du type BPCA se forment petit à petit, en ajoutant, à un emplacement complètement aléatoire, une particule primaire à l'édifice jusqu'à l'obtention d'un agrégat constitué du nombre de particules primaires désiré.

Les agrégats du type BCCA sont construits également de façon aléatoire mais, suivent un mécanisme de formation. Le premier agrégat (agrégat n°1) construit, possède obligatoirement quatre particules primaires ; ses particules sont disposées de telle sorte qu'elles forment un angle de 120° les unes par rapport aux autres. Puis un agrégat de trois particules primaires, appelé motif, s'ajoute petit à petit à l'édifice. Cet ajout est régi par le mécanisme suivant: le motif se fixe à l'agrégat par un point de contact réalisé avec sa particule primaire centrale, les angles entre les trois particules primaires entourant cette particule centrale doivent être de 120° . Dans le cas où la particule de fixation (Pf) n'est elle-même rattachée à l'agrégat que par un seul point de contact (Pc), le motif se fixe suivant la droite définie par ce point de contact (Pc) et le centre de la particule (Pf) auquel il vient se fixer. Dans le cas contraire (plus d'un point de contact), le motif se fixe sur la particule (Pf) de l'agrégat suivant la droite perpendiculaire à toutes les droites passant par le centre de cette particule (Pf) et le centre des particules avec lesquelles (Pf) est en contact. La particule de fixation est choisie aléatoirement.

Ces deux mécanismes de construction respectent également la contrainte que les particules constituant l'agrégat ne s'interpénètrent pas.

B.VI.3.2 Comparaison de IRE avec la méthode exacte

Nous avons réalisé quelques tests avec la méthode IRE corrigée par les fonctions F2 et G pour des agrégats constitués de particules primaires dont les matériaux sont SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2 . et construits à l'aide des deux mécanismes BPCA et BCCA. L'indice effectif de la sphère équivalente est déterminé suivant nos précédentes investigations par l'expression de Lichtenecker.

Nous avons choisi le nombre de particules primaires au sein d'un agrégat formé suivant le mécanisme BPCA égale à : 4, 8, 10, 16 ou 40, et 4, 7, 10, 16 ou 40 si le mécanisme mis en jeu est BCCA. Le paramètre de taille des particules primaires constituant ces agrégats varie entre 0 et 6 (les deux domaines définis dans notre étude préliminaire sont ainsi couverts). Tout comme ceux définis dans le *Tableau B- I-1*, ces agrégats sont considérés en suspension dans l'eau.

Les tests réalisés avec ces agrégats aléatoires permettent d'évaluer la méthode approchée IRE, vis-à-vis de la méthode exacte, Nous utiliserons de nouveau le rapport R_m (B.32). Pour chaque mécanisme et chaque type d'agrégat (en terme de nombre de particules) cinq agencements aléatoires ont été construits, nous définissons $\langle R_m \rangle$ comme étant la moyenne de R_m sur ces 5 agencements. La représentation graphique dans ce paragraphe, a été préférée aux tableaux de valeurs, mais ceux-ci, correspondant à $\langle R_m \rangle$, sont en Annexe B.VI (page XXXVIII-XL)

Dans un premier temps, l'indice de réfraction des matériaux utilisés est réel comme ce fut le cas tout au long de cette étude. Le cas d'indice de réfraction complexe sera évoqué dans un dernier temps.

B.VI.3.2.a) Dans le cas d'indices de réfraction réels :

Dans ce paragraphe est testée la performance de la méthode IRE corrigée par les fonctions F_2 dans le cas du calcul de la section efficace de diffusion et par la fonction G lors du calcul de la section efficace de pression de radiation vis-à-vis de la méthode exacte. Les indices de réfraction des matériaux sont réels.

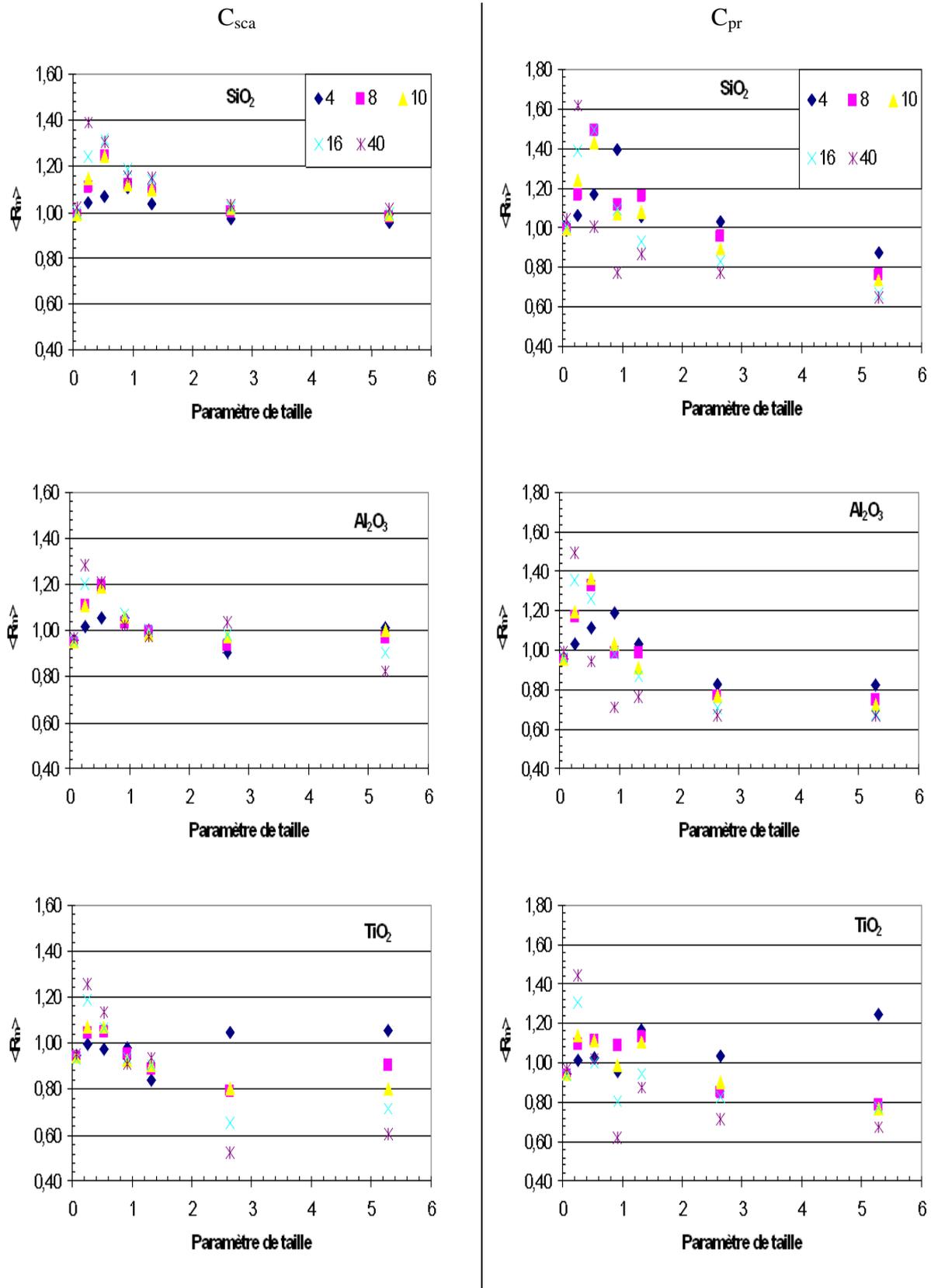


Figure B- VI-10 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.

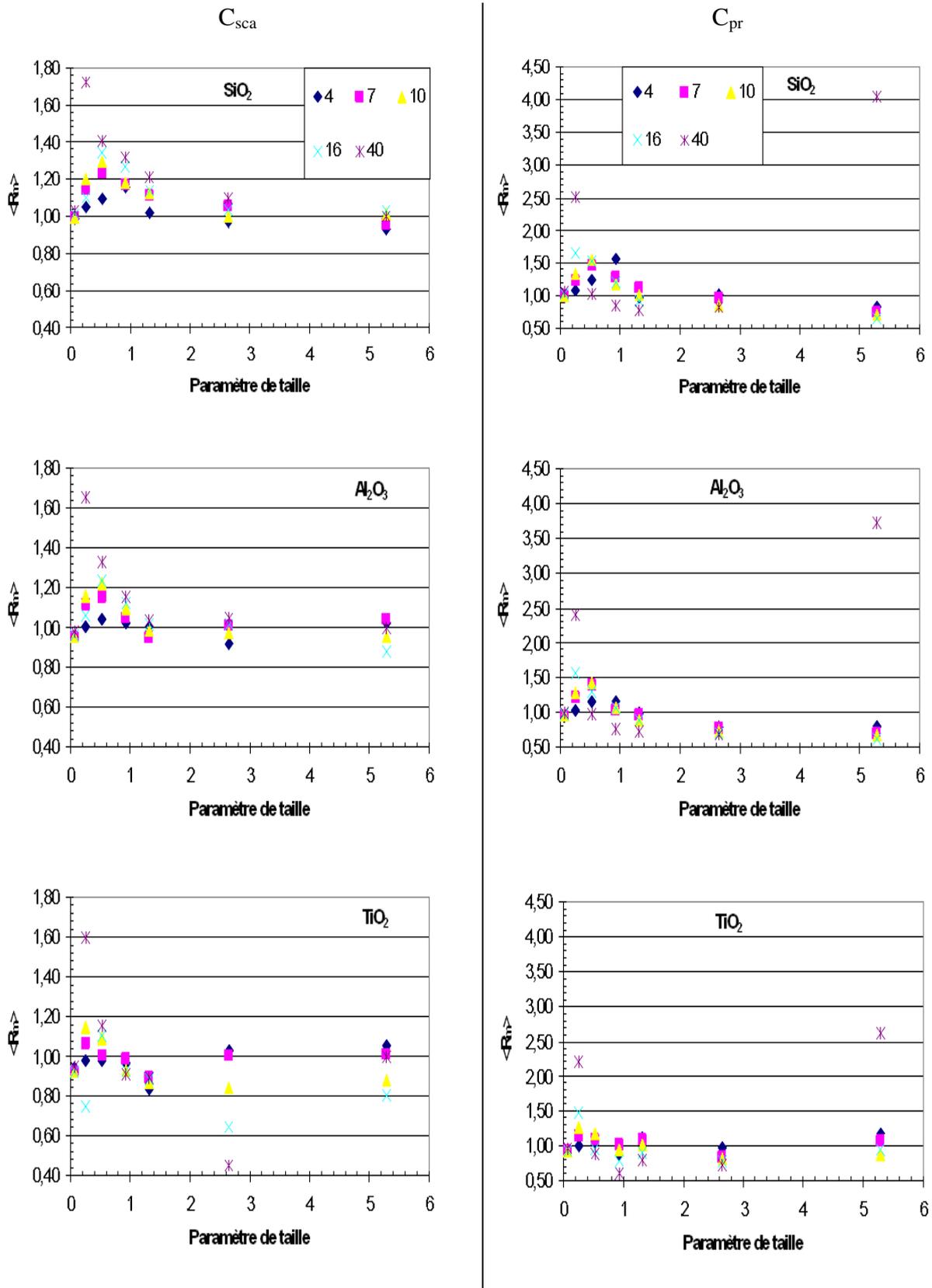


Figure B- VI-11 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction réel.

L'erreur commise sur la section efficace de diffusion est une fonction croissante du nombre de particules primaires et de l'indice de réfraction de ces dernières. Les résultats obtenus avec les deux mécanismes de formation des agrégats suggèrent que la correction de la méthode IRE par la fonction F_2 est insuffisante et doit être revue. Nonobstant, on observe que la méthode IRE peut être une bonne méthode approchée pour des paramètres de taille de particules primaires supérieurs à 2 et dont le matériau a un faible indice de réfraction (SiO_2).

B.VI.3.2.b) Dans le cas d'indices de réfraction complexes :

Il est attendu que le passage à des indices complexes améliore les performances de la méthode IRE utilisant une sphère équivalente. Nous avons choisi cette partie complexe égale à 0.1 quelque soit le type de matériau, car cette valeur fait partie des choix offerts par les constructeurs de granulomètres pour des particules de cette nature.

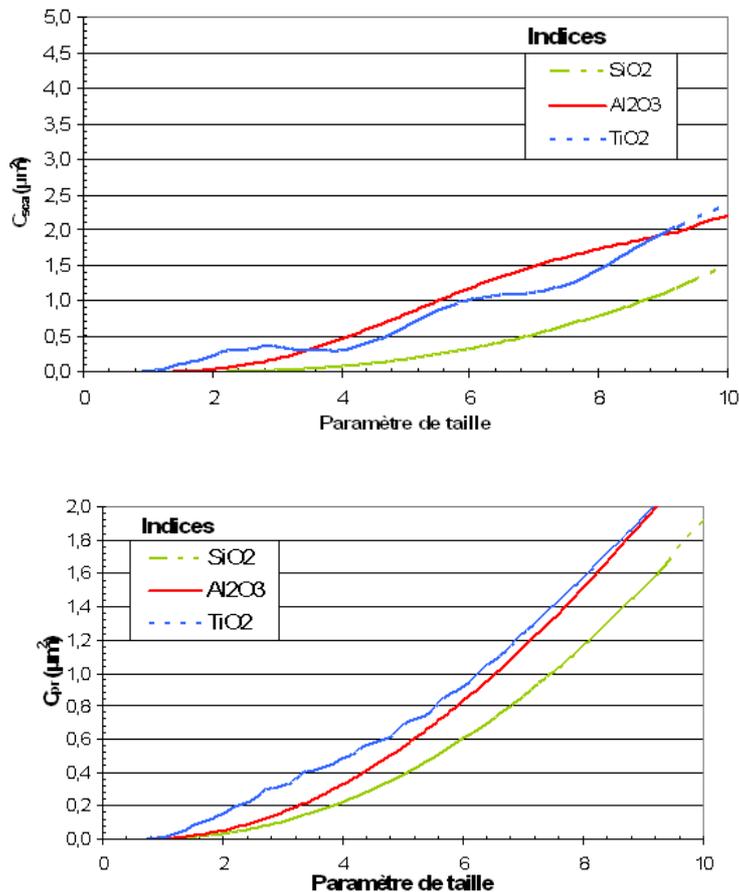


Figure B- VI-12 : C_{sca} et C_{pr} pour une particule sphérique en fonction du paramètre de taille, pour les trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) ayant une partie complexe égale à 0.1.

Le fait que le matériau de la sphère possède un indice de réfraction complexe implique que les courbes présentant l'évolution de C_{sca} et C_{pr} en fonction du paramètre de taille (*Figure B-VI-12*) apparaissent plus lissées que celles présentées dans la *Figure B-III-1* et la *Figure B-III-9*. Le choix de la géométrie équivalente (une sphère) doit donc introduire une erreur moindre notamment dans le domaine $\alpha \in [2;10]$.

Dans ce paragraphe est testée la performance de la méthode IRE corrigée par la fonction F_2 dans le cas du calcul de la section efficace, de diffusion et de pression de radiation vis-à-vis de la méthode exacte. C_{pr} est ici uniquement corrigé par F_2 car des tests non présentés ici montrent que le deuxième terme correctif de la fonction G (B.35) est inadapté aux indices complexes.

L'erreur commise est encore une fonction croissante du nombre de particules primaires au sein de l'agrégat et de l'indice de réfraction du matériau. Nous observons une légère amélioration des valeurs obtenues pour la section efficace de diffusion, mais surtout, une meilleure corrélation des résultats obtenus entre la méthode exacte et la méthode approchée lors du calcul de la section efficace de pression de radiation. Dans le cas de la silice, l'erreur est alors inférieure à 20% sur l'ensemble des paramètres de taille.

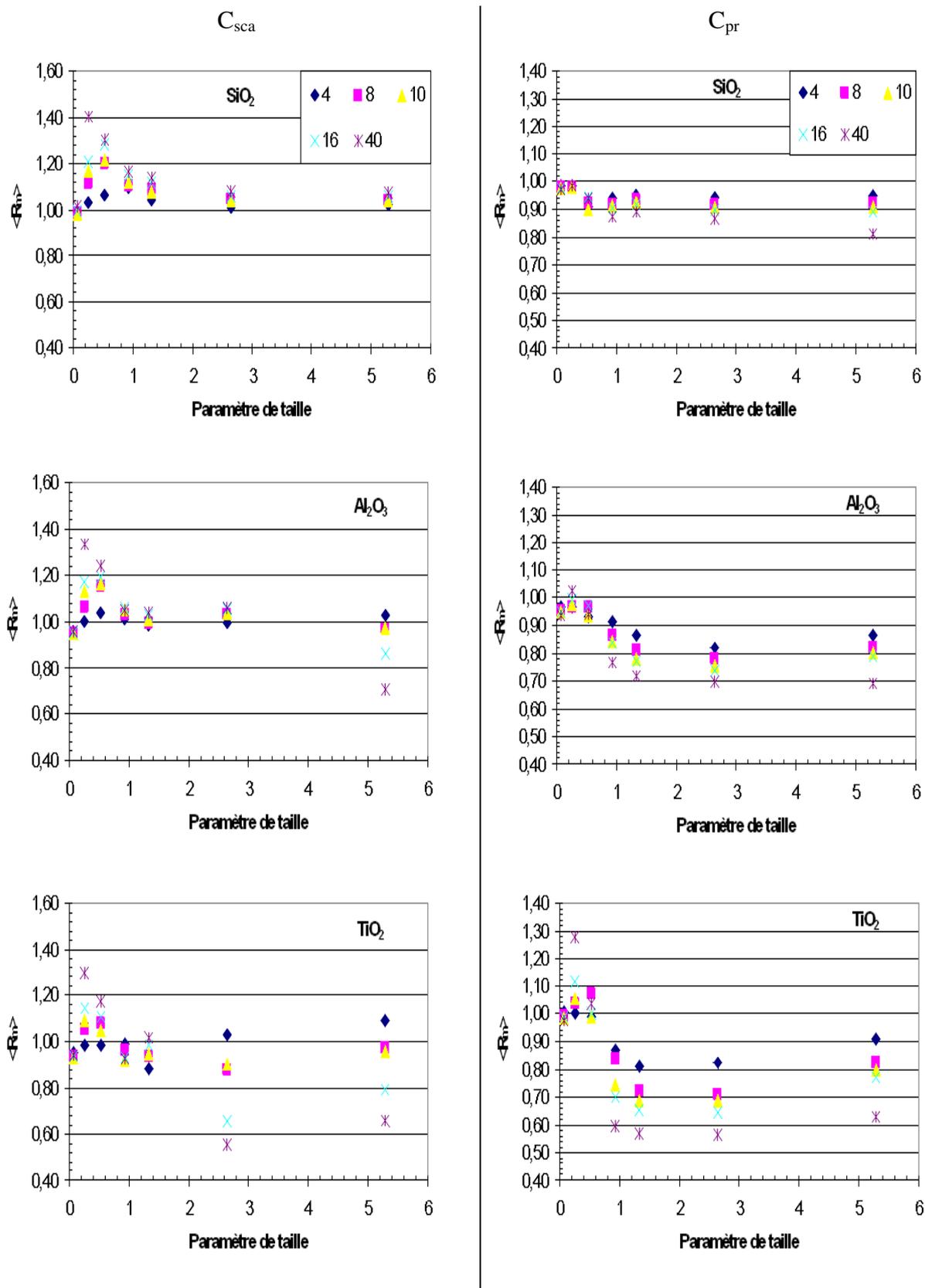


Figure B- VI-13 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.

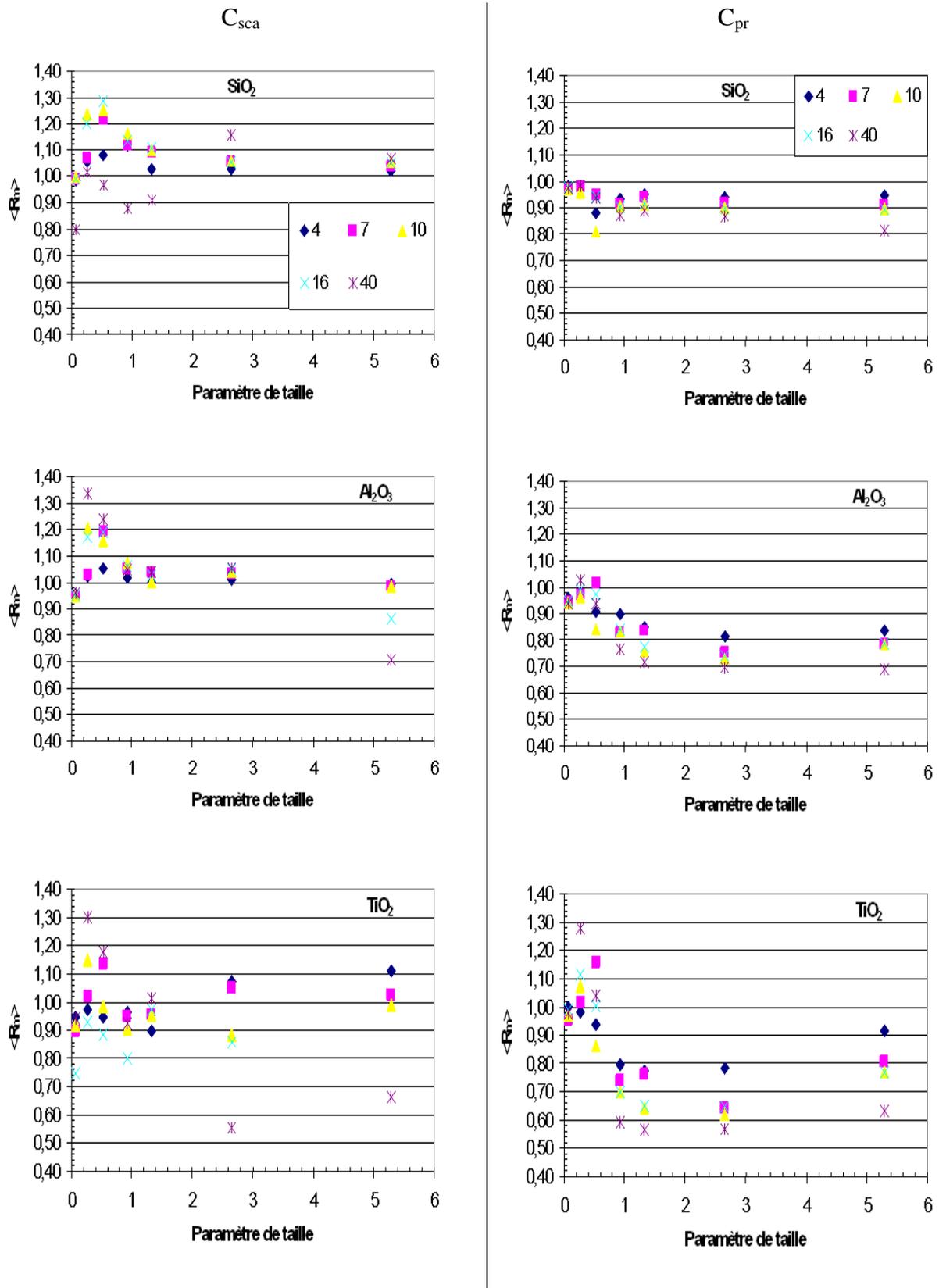


Figure B- VI-14 : C_{sca} et C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 et TiO_2) ayant un indice de réfraction complexe.

En conclusion, la fonction de correction F_2 de la méthode IRE est encore à améliorer ainsi que la fonction G pour étendre leur application à des indices de réfraction plus forts (Al_2O_3 , TiO_2). La partie encourageante de cette étude est que le passage à des indices complexes n'entache pas d'avantage d'erreur cette méthode approchée.

B.VI.4. Bilan

Plusieurs voies ont été testées pour calculer les propriétés optiques des agrégats, comme le résume le *Tableau B- VI-13*.

Objet équivalent		sphère	Sphéroïde
Indice effectif de l'objet équivalent		Lichtenecker	Lichtenecker
Propriétés optiques	C_{sca}	Avec une fonction de correction F_2	X
	C_{pr}	Avec un fonction de correction G	X

Tableau B- VI-13: Résumé de l'étude visant à améliorer IRE

La méthode de Lichtenecker pour le calcul de l'indice effectif est préférable aux autres méthodes.

Le choix d'une sphère équivalente implique l'utilisation de fonctions de correction F_2 et G pour obtenir des valeurs des propriétés optiques les plus proches possibles, de celles obtenues avec la méthode exacte, quelque soit le paramètre de taille. Toutefois, ces deux fonctions sont à améliorer, sachant que la méthode IRE avec une sphère équivalente est prometteuse même avec des indices de réfraction complexes. L'avantage d'utiliser une sphère équivalente est de permettre une mise en place rapide, compte tenu des méthodes d'inversion des spectres turbidimétriques déjà développées, du contrôle de la taille d'un agrégat (technique inexistante pour l'instant).

La recherche d'une méthode basée sur un sphéroïde équivalent semble encourageante mais est encore à tester, en améliorant les codes de calcul lorsque l'objet est sphéroïdal, mais

également en définissant, d'une façon plus concluante, la méthode de détermination des dimensions du sphéroïde équivalent.

Conclusion et perspectives

Les temps de calcul des propriétés optiques des agrégats sont actuellement trop importants sur des ordinateurs de puissance moyenne et ne permettent pas d'envisager dans l'immédiat de caractériser optiquement une population d'agrégats. Cette étude s'est donc orientée vers la recherche de méthodes approchées pour les propriétés optiques d'agrégats de particules sphériques non absorbantes.

Dans un premier temps, nous avons étudié les paramètres influençant les sections efficaces de diffusion C_{sca} et de pression de radiation C_{pr} d'agrégats obtenues avec la méthode exacte GMM. Nous aboutissons aux résultats suivants : les différentes configurations d'un agrégat suivant sa morphologie ou le nombre de particules primaires qu'il contient sont parfaitement discernables, que ce soit avec C_{sca} ou C_{pr} . Les courbes $C=f(\alpha)$ obtenues pour les deux sections efficaces sont qualitativement similaires. Nous avons remarqué, dans les deux cas, deux domaines, dont la limite varie légèrement avec l'indice de réfraction et le nombre de particules primaires. L'un, où les sections efficaces ont des valeurs largement supérieures à celle d'un groupe identique de particules sans interaction, l'autre, où elles sont au contraire égales ou inférieures. Nous avons constaté que :

- le nombre de particules primaires est le paramètre pertinent dans le cas des faibles paramètres de taille ($\alpha \rightarrow 0, C_{Xu,N} \propto N^2 C_{Mie,1}$),
- il existe deux configurations extrêmes (chaîne et compacte) entre lesquelles les sections efficaces des autres évoluent,
- la différence des sections efficaces des deux configurations extrêmes augmente avec le nombre de particules primaires.

Par la suite, ont été évaluées par comparaison à la méthode exacte, différentes méthodes approchées permettant d'obtenir la section efficace de diffusion. Le choix de certaines d'entre elles, comme la méthode de la sphère compacte et creuse, a été guidé par le fait que ces méthodes sont communément employées dans la littérature ou dans les logiciels de

constructeurs de granulomètre. La sélection des 5 autres méthodes approchées a été réalisée par rapport à la méthode exacte. Elles prennent toutes en considération la morphologie de l'agrégat, mais par l'intermédiaire de grandeurs géométriques différentes : dimension fractale, distance inter particulaire, distribution de cordes, surfaces projetées. Deux d'entre elles comprennent également un terme permettant de rendre compte explicitement des interactions inter particulaires : PBK et Khlebtsov. Ajoutons à cela, l'approximation la plus naturelle considérant que la section efficace de diffusion d'un agrégat est proportionnelle au nombre de particules primaires le constituant : $NC_{Mie,1}$.

Cette dernière approximation est mauvaise, même pour de grands paramètres de taille. De même, la méthode de la sphère compacte (SC) est jugée inappropriée, tout comme la méthode de la sphère creuse (SP). Les méthodes utilisant une dimension fractale sont, quant à elles, peu concluantes sur des agrégats contenant un faible nombre de particules primaires. Les trois méthodes approchées conduisant à des résultats assez proches de la méthode exacte sont : PBK, DA et IRE. PBK est valable pour $0 < \alpha < 2$ avec une erreur qui augmente avec l'indice du matériau. DA est correcte pour $2 < \alpha < 10$ et est moins sensible à l'augmentation de l'indice de réfraction.

Les méthodes PBK et DA balayent à elles deux l'ensemble des paramètres de taille. Une amélioration de la méthode diffraction anormale (DAr), reposant sur une expression quasi-analytique de la distribution des cordes, permet d'accélérer notablement les calculs. Ces deux méthodes constituent donc, dans un premier temps, une bonne alternative à la méthode exacte.

La méthode IRE., qui utilise la surface projetée moyenne, peut être envisagée sur l'ensemble des paramètres de taille. Sa version initiale a été améliorée.

Tout d'abord, il a été montré que l'expression de Lichtenecker pour le calcul de l'indice de réfraction effectif est préférable aux autres équations, compte tenu de sa simplicité. Ensuite, les sections efficaces de diffusion et de pression de radiation obtenues avec IRE ont fait respectivement l'objet de correction par l'intermédiaire des fonctions F_2 et G lorsque l'objet équivalent est une sphère. Cependant, ces deux fonctions doivent être modifiées, sachant que la méthode IRE avec une sphère équivalente est prometteuse, même avec des indices de réfraction complexes.

L'avantage d'utiliser la notion de sphère équivalente est de permettre une mise en place rapide, compte tenu des méthodes d'inversion de spectres granulométriques, du contrôle de la taille d'agrégat dans une suspension. Toutefois le cas d'un sphéroïde équivalent a été envisagé.

La recherche d'une méthode reposant sur un sphéroïde équivalent est la dernière investigation réalisée. La méthode IRE avec un sphéroïde équivalent semble, au vu des résultats obtenus, encourageante mais embryonnaire. Il est nécessaire d'améliorer les codes de calcul pour un sphéroïde, mais également d'affiner la méthode de détermination des dimensions du sphéroïde équivalent. Une telle géométrie permettrait (contrairement à la sphère équivalente) d'étudier l'influence de la polarisation du champ incident et donc d'introduire un paramètre expérimental supplémentaire.

Ce travail de recherche n'aboutit pas à une seule et unique méthode approchée parfaite. Il a permis de balayer une gamme de paramètres (indices de réfraction et paramètre de taille des particules primaires, morphologie des agrégats) assez importante et de réaliser une première sélection des méthodes approchées. L'importance de mettre en place rapidement une technique de caractérisation en ligne d'agrégats, nous encourage dans les prochaines investigations à finaliser les connaissances élaborées dans ce sujet de thèse. Les prochains efforts doivent porter sur :

- l'amélioration des fonctions F_2 et G en étendant leur utilisation à des particules absorbantes
- l'amélioration de la méthode ADr avec une expression analytique de la distribution des cordes
- l'amélioration du code de calcul pour un sphéroïde et la définition du sphéroïde équivalent
- la prise en compte de l'influence d'une lumière incidente polarisée
- l'étude d'agrégats de particules non sphériques,
- l'étude d'agrégats formés dans des suspensions polydisperses,
- l'évaluation de l'influence de la distance inter-agrégats

Annexes

La numérotation des annexes est en fonction du chapitre auquel ces dernières se réfèrent.

Annexe A.I.

- Instruments d'analyse de taille de particules basés sur différents principes physiques (Jillavenkatesa, Dapkunas et al. 2001)

Instrumental Technique	Physical principe	Volume fraction Range (%)	Size range (µm)
Acoustic Attenuation Spectroscopy (N) [Ultrasonic Attenuation Spectroscopy]	ultrasonics	>1	0.05 to 10
Centrifugal Sedimentation-Optical (E)	sedimentation	ID	0.01 to 30
Centrifugal Sedimentation X-Ray (E)	sedimentation	ID	0.01 to 100
Electrical Resistance Zone Sensing (E) [Particle Counting, Coulter Counter]	Particle counting	<0.1	0.4 to 1200
Electroacoustic Spectroscopy (N) [Electrokinetic Sonic Amplitude]	ultrasonics	>1	0.1 to 10
Gas Absorption Surface Area Analysis (E) [BET Absorption]	Surface area analysis	NA	NA
Laser Light Diffraction (E) [Static Light Scattering, Mie Scattering, Elastic Light Scattering]	Electromagnetic wave interaction and scattering	0.01 to 5	0.04 to 1000
Light Microscopy (E)	Particle counting	NA	>1.0
Quasi-Elastic Light Scattering (E) [Dynamic Light Scattering, Photon Correlation Spectroscopy, Optical Beating Spectroscopy]		<0.005	0.003 to 6
Scanning Electron Microscopy (E)	Particle counting	NA	>0.1
X-Ray Gravitational Sedimentation (E)	sedimentation	ID	0.5 to 100
Colloid Vibration Current (N) [Single Frequency]	ultrasonics	>1	<10
Electrokinetic Sonic Amplitude (N) [Single frequency]	ultrasonics	>1	<10
Micro electrophoresis (E) [Laser Light Scattering, Quasi-Elastic Light Scattering]	Electromagnetic wave interaction and scattering	<0.001	0.1 to 1
Sieving (E)	sieving	NA	5 to 100000

Annexe Tableau 1: Techniques de mesure de taille de particules

E: Established Technique

N: Emerging Technique

ID: Instrument Dependent

➤ Limitation d'analyse de taille de particules

Il existe de nombreux appareils permettant de mesurer la taille des particules, l'objectif ici n'est pas de tous les recenser dans le but d'une nouvelle acquisition, ni de promouvoir certain d'entre eux. Les trois appareils, cités ici, sont ceux utilisés dans le laboratoire dans lequel cette thèse a été réalisée, et dont nous avons une expérience d'utilisateur.

Méthodes granulométriques	Turbidimétrie	Granulomètre à diffraction laser	Mesure de corde
Appareils	Aello 1100	Mastersizer	Lasentec D600
Taille des particules	0.9 à 300 μm	20 nm à 2 mm	On n'obtient pas une taille de particule mais une distribution de cordes
Concentration des particules en suspension	16% en volume	Tel que l'obscurité de la solution n'excède pas 5%	Pas de limitation
Théorie utilisée pour déterminer la taille des particules	Théorie de Mie	Théorie de Mie	-
Contrainte	Particules sphériques	Particules sphériques	-

Annexe Tableau 2: Caractéristiques de certains appareillages commerciaux

Le Tableau présenté ci-dessus permettra dans le futur de reconstituer le contexte historique de l'avancement des technologies dans ce domaine. Il permet également de synthétiser les propos du paragraphe A.I.3 à savoir qu'il n'est pas possible avec de tels dispositifs d'obtenir la taille des particules en suspension quelque soit leur forme et leur concentration.

Annexe A.III. :

➤ Formulations pour le champ magnétique:

$$\vec{H}_0(j) = -\frac{k}{\omega\mu} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n i \cdot E_{mn} \cdot \left[p_{mn}^{j,j} \vec{N}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + q_{mn}^{j,j} \vec{M}_{mn}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right] \quad \text{corr. à (A.56)}$$

$$\mathbf{H}_{sca}(l, j) = \frac{k}{\omega\mu} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n E_{mn} \cdot \left\{ b_{mn}^l \cdot \left[\sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(A0_{mn\mu\nu}^{l,j} \mathbf{N}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + B0_{mn\mu\nu}^{l,j} \mathbf{M}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right) \right] + a_{mn}^l \cdot \left[\sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(B0_{mn\mu\nu}^{l,j} \mathbf{N}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) + A0_{mn\mu\nu}^{l,j} \mathbf{M}_{\mu\nu}^{(1)}(kr^j, \theta^j, \phi^j) \right) \right] \right\} \quad \text{corr. à (A.59)}$$

$$\mathbf{H}_{sca,total}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) = \frac{k}{\omega\mu} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n E_{mn} \left(b_{mn} \mathbf{N}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) + a_{mn} \mathbf{M}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) \right) \quad \text{corr. à (A.66)}$$

$$\mathbf{H}_{sca,total}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) = \frac{k}{\omega\mu} \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \Delta^l} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n E_{mn} \left(b_{mn}^l \mathbf{N}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) + a_{mn}^l \mathbf{M}_{mn}^{(3)}(kr^{j_0}, \theta^{j_0}, \phi^{j_0}) \right) \quad \text{corr. à (A.75)}$$

➤ Formulations pour le coefficient de diffusion

$$b_{mn} = \sum_{l=1}^{N_l} \sum_{\nu=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\nu}^{\nu} \left(a_{\mu\nu}^l B_{mn\mu\nu}^{l j_0} + b_{\mu\nu}^l A_{mn\mu\nu}^{l j_0} \right) \quad \text{corr. à (A.67)}$$

$$b_{mn} = e^{-i \cdot k \Delta^l} b_{mn}^l \quad \text{corr. à (A.74)}$$

➤ Formulations pour les coefficients de translation de vecteur

En accord avec Xu

$$A_{mn\mu\nu}^{lj} = C_0 \cdot e^{i(\mu-m)\phi_j} \sum_{q=0}^{q_{\max}} \left[i^p \cdot C_p \cdot a_q \cdot h_p^{(1)}(k \cdot d_{lj}) \cdot P_p^{\mu-m}(\cos \theta_{lj}) \right] \quad \text{(B.36)}$$

$$B_{mn\mu\nu}^{lj} = C_0 \cdot e^{i(\mu-m)\phi_j} \sum_{q=1}^{Q_{\max}} \left[i^{p+1} \cdot C_p \cdot b_q \cdot h_{p+1}^{(1)}(k \cdot d_{lj}) \cdot P_{p+1}^{\mu-m}(\cos \theta_{lj}) \right] \quad \text{(B.37)}$$

avec

$$C_0 = \frac{(-1)^m}{2} \sqrt{\frac{(2n+1)(2\nu+1)(n+m)!(\nu-\mu)!}{n(n+1)\nu(\nu+1)(n-m)!(\nu+\mu)!}}$$

$$C_p = n(n+1) + \nu(\nu+1) - p(p+1)$$

$$q_{\max} = \min \left[n, \nu, \text{trunc} \left(\frac{n+\nu-|\mu-m|}{2} \right) \right]$$

$$Q_{\max} = \min \left[n, \nu, \text{trunc} \left(\frac{n + \nu + 1 - |\mu - m|}{2} \right) \right]$$

$$p = n + \nu - 2q$$

$a_q = a(-m, n, \mu, \nu, p)$ est le coefficient de Gaunt,

$$b_q = \frac{2p+3}{A_{p+2}} \cdot \left[(p+2)(p_1+1)\alpha_{p+1}a(-m, n, \mu, \nu, p) - (p+1)(p_2+2)\alpha_{p+2}a(-m, n, \mu, \nu, p-2) \right]$$

avec $A_{p+2} \neq 0$;

$$b_q = \frac{2p+3}{(p+3)(p_1+2)A_{p+4}} \cdot \left\{ \left[A_{p+3}A_{p+4} + (p+2)(p+4)(p_1+3)(p_2+3)\alpha_{p+3} \right] a(-m, n, \mu, \nu, p-2) \right. \\ \left. - (p+2)(p+3)(p_2+3)(p_2+4)\alpha_{p+4}a(-m, n, \mu, \nu, p-4) \right\}$$

où $A_{p+2} = 0$;

Lorsque A_{p+2} et A_{p+4} sont nulles, B est aussi nul.

$$A_p = -p(p-1)(m+\mu) + (m-\mu)(n-\nu)(n+\nu+1)$$

$$\alpha_p = \frac{\left[p^2 - (n-\nu)^2 \right] \left[p^2 - (n+\nu+1)^2 \right]}{4p^2 - 1}$$

$$p_1 = p + m - \mu$$

$$p_2 = p - m + \mu$$

► Formulations pour la matrice de diffusion en champ lointain

$$S_1(\theta, \varphi) = \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \sum_{n=1}^{N_W^l} \sum_{m=0}^n \frac{1}{1 + \delta_{0m}} \cdot \left\{ \Xi_{mn}^l \cos \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] + i \cdot \Theta_{mn}^l \sin \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] \right\}$$

$$S_2(\theta, \varphi) = \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \sum_{n=1}^{N_W^l} \sum_{m=0}^n \frac{1}{1 + \delta_{0m}} \cdot \left\{ \Psi_{mn}^l \cos \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] + i \cdot \Phi_{mn}^l \sin \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] \right\}$$

$$S_3(\theta, \varphi) = \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \sum_{n=1}^{N_W^l} \sum_{m=0}^n \frac{1}{1 + \delta_{0m}} \cdot \left\{ \Phi_{mn}^l \cos \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] + i \cdot \Psi_{mn}^l \sin \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] \right\}$$

$$S_4(\theta, \varphi) = \sum_{l=1}^{N_l} e^{-i \cdot k \cdot \Delta^l} \sum_{n=1}^{N_W^l} \sum_{m=0}^n \frac{1}{1 + \delta_{0m}} \cdot \left\{ \Theta_{mn}^l \cos \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] + i \cdot \Xi_{mn}^l \sin \left[(m-1)\varphi + \beta_p \right] \right\}$$

avec

$$\Psi_{mn}^l = a_{mn}^l \tilde{\tau}_{mn} + b_{mn}^l \tilde{\pi}_{mn} + (-1)^m \left(a_{-mn}^l \tilde{\tau}_{mn} - b_{-mn}^l \tilde{\pi}_{mn} \right)$$

$$\Phi_{mn}^l = a_{mn}^l \tilde{\tau}_{mn} + b_{mn}^l \tilde{\pi}_{mn} - (-1)^m \left(a_{-mn}^l \tilde{\tau}_{mn} - b_{-mn}^l \tilde{\pi}_{mn} \right)$$

V

$$\begin{aligned}\Theta_{mn}^l &= a_{mn}^l \tilde{\pi}_{mn} + b_{mn}^l \tilde{\tau}_{mn} - (-1)^m (a_{-mn}^l \tilde{\pi}_{mn} - b_{-mn}^l \tilde{\tau}_{mn}) \\ \Xi_{mn}^l &= a_{mn}^l \tilde{\pi}_{mn} + b_{mn}^l \tilde{\tau}_{mn} + (-1)^m (a_{-mn}^l \tilde{\pi}_{mn} - b_{-mn}^l \tilde{\tau}_{mn})\end{aligned}$$

et δ_m est le symbole de Krönecker :

$$\delta_{nm} = 0, \text{ si } n \neq m \text{ and } \delta_{nm} = 1, \text{ if } n = m$$

$\tilde{\pi}_{mn}$ et $\tilde{\tau}_{mn}$ sont les fonctions angulaires définies en (A.39) et (A.40) mais normalisées comme suit

$$\tilde{\pi}_{mn} = C_{mn} \pi_{mn}, \quad \tilde{\tau}_{mn} = C_{mn} \tau_{mn}$$

où

$$C_{mn} = \sqrt{\frac{(2n+1)(n-m)!}{n(n+1)(n+m)!}}, \quad C_{mn} = i^{-n} \frac{E_{mn}}{|E_0|}$$

Annexe B.II.

➤ Programme sous Dephi6

Un agrégat comportant un nombre de particules primaires supérieur à deux et ayant les caractéristiques ci dessous (*Annexe Tableau 3*) entraîne une non-résolution du problème de diffusion multiple, à savoir un paramètre d'asymétrie négatif ou largement supérieur à un.

Longueur d'onde	Diamètre (particule primaire)	Indice de la sphère	Indice du milieu
652.1 nm	0.35 μm	2.71581	1.33074

Annexe Tableau 3: Caractéristiques des particules primaires ne permettant pas une résolution sous Delphi

Nous avons dès lors cherché l'origine du problème ; sachant que pour un agrégat identique mais fait de particules primaires ayant un indice plus faible, nous obtenons des résultats acceptables.

➤ Comparaison des programmes Scataggl et MeGMM avec celui de Xu (gmm01s)

	MeGMM			XU			Scataggl		
diamètre	0,01	0,5	1	0,01	0,5	1	0,01	0,5	1
$C_{ext}(\mu\text{m}^2)$	6,5034E-11	2,1442E-01	3,6533E+00	6,5034E-11	2,1442E-01	3,6533E+00	6,8871E-11	1,3845E-01	1,6223E+00
$C_{scat}(\mu\text{m}^2)$	6,5034E-11	2,1442E-01	3,6533E+00	6,5034E-11	2,1442E-01	3,6533E+00	6,8871E-11	1,3845E-01	1,6223E+00
$C_{abs}(\mu\text{m}^2)$	-3,3191E-23	-5,5511E-17	8,8818E-16	0,0000E+00	0,0000E+00	0,0000E+00	0,0000E+00	0,0000E+00	0,0000E+00
$\cos \theta$	2,4464E-03	8,4005E-01	9,2708E-01	2,4464E-03	8,4005E-01	9,2708E-01	2,3455E-03	8,3130E-01	8,8220E-01
$C_{pr}(\mu\text{m}^2)$	6,4875E-11	3,4296E-02	2,6639E-01	6,4875E-11	3,4296E-02	2,6639E-01	6,8710E-01	2,3355E-02	1,9111E-01

Annexe Tableau 4: Tests effectués pour un doublet aligné dans le sens du vecteur d'onde, avec $\lambda=632.8\mu\text{m}$, $n_p=1.57$, $n_m=1.332$

➤ Comparaison pour un agrégat entre nos valeurs et celles obtenues par Xu et Auger (Auger and Stout 2003)

	Jacquier		XU		Auger		Notre erreur par rapport à Xu en TE	Notre erreur par rapport à Xu en TM
	TE	TM	TE	TM	TE	TM		
$C_{ext}(\mu\text{m}^2)$	66,22262	69,21078	66,217	69,860	66,217300	69,860400	-0,01%	0,93%
$C_{scat}(\mu\text{m}^2)$	48,66884	37,29122	51,785	54,893	51,785100	54,893100	6,02%	32,07%
$C_{abs}(\mu\text{m}^2)$	17,55379	31,91956	14,432	14,967	14,432200	14,967400	-21,63%	-113,27%
$\cos \theta$	0,57748	0,89977	0,556	0,550	0,555904	0,550417	-3,88%	-63,47%
$C_{pr}(\mu\text{m}^2)$	38,11715	35,65718	37,430	39,646			-1,84%	10,06%

Annexe Tableau 5: Comparaison faite pour une longueur d'onde $\lambda=3.14$, $n_m=1$ dans le cas de 9 sphères dans une configuration C1 ci dessous.

N° de sphères	1	2	3	4	5	6	7	8	9
X	0	0	0	6,4	-6,4	-6,4	-6,4	6,4	6,4
Y	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Z	0	6,4	-6,4	0	0	6,4	-6,4	6,4	-6,4
rayon (μm)	1	1	1	1	1	1	1	1	1
$R(n_p)$	2,516	1,625	1,625	1,625	1,625	1,3	1,3	1,3	1,3
$Im(n_p)$	0,12	0,015	0,015	0,015	0,015	0,08	0,08	0,08	0,08

Annexe Tableau 6: Configuration C1 voir Figure B- II-1

Annexe B.III.

➤ Détermination du paramètre de taille limite:

Nous nous proposons d'évaluer le paramètre de taille limite c'est-à-dire le paramètre de taille à partir duquel le rapport R_{Xu} devient inférieur à l'unité. Nous avons fixé dans la Partie B.Chapitre III, sa valeur à 2 en première approximation, mais nous avons également précisé que celui-ci variait en fonction de la forme de l'agrégat et du type de matériau constituant les particules primaires.

Dans le tableau ci-dessous est répertorié l'ensemble des agrégats traités; pour chacun d'eux les valeurs du paramètre de taille (borne 1 et borne 2), encadrant le passage de R_{Xu} à l'unité suivant le type de matériau, ont été relevées.

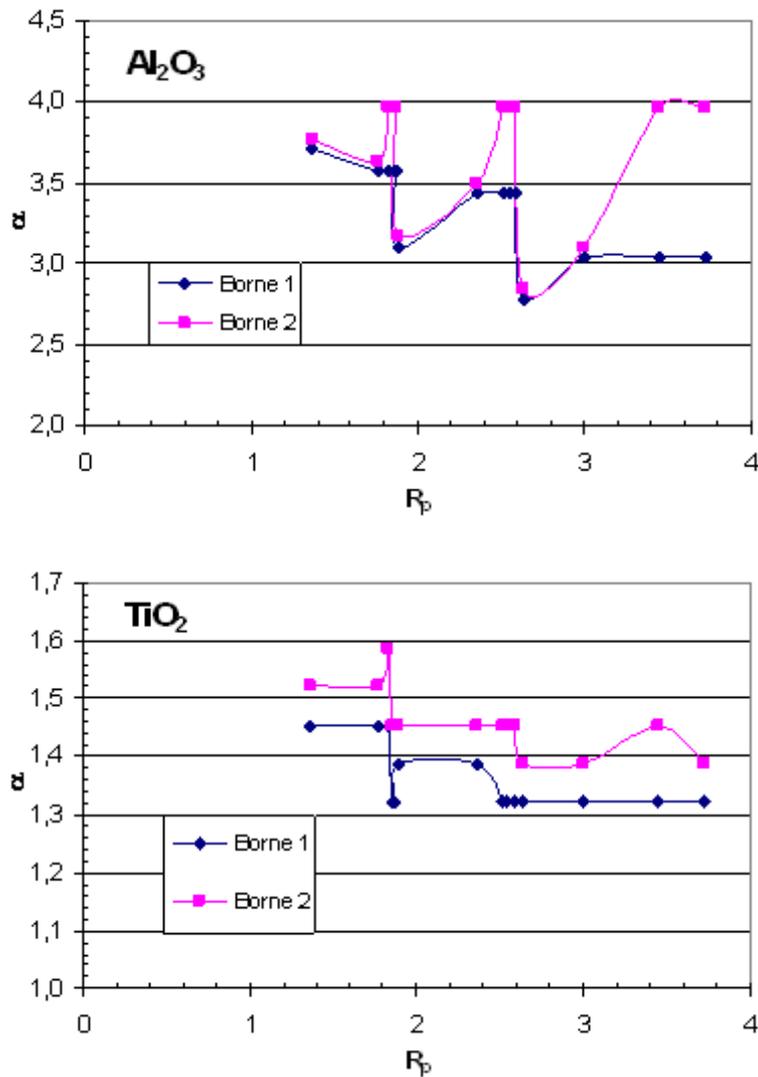
La borne 1 correspond au premier paramètre de taille pour lequel R_{Xu} est juste supérieur à 1 ; tandis que la borne 2 est le premier paramètre de taille pour lequel R_{Xu} est légèrement inférieur à 1. Ainsi le paramètre de taille limite, α_l , est encadré par ces deux valeurs :borne $1 < \alpha_l < \text{borne 2}$.

De plus pour rendre compte de la variation de ce paramètre de taille limite, en fonction de la forme de l'agrégat, nous avons ordonné ces derniers en fonction de leur rayon projeté respectif normalisé par celle d'une particule primaire R_p (B.23).

	R_p	Al_2O_3		TiO_2	
		Borne 1	Borne 2	Borne 1	Borne 2
2 sphères en configuration chaîne	1,365	3,70	3,77	1,45	1,52
4 sphères en configuration compacte	1,767	3,57	3,64	1,45	1,52
4 sphères en configuration plan	1,826	3,57	3,97	1,45	1,59
4 sphères en configuration p1	1,857	3,57	3,97	1,32	1,45
4 sphères en configuration p2	1,872	3,57	3,97	1,32	1,45
4 sphères en configuration chaîne	1,891	3,11	3,17	1,39	1,45
8 sphères en configuration compacte	2,358	3,44	3,50	1,39	1,45
8 sphères en configuration plan	2,514	3,44	3,97	1,32	1,45
8 sphères en configuration p82	2,548	3,44	3,97	1,32	1,45
8 sphères en configuration p83	2,591	3,44	3,97	1,32	1,45
8 sphères en configuration chaîne	2,635	2,78	2,84	1,32	1,39
16 sphères en configuration compacte	2,995	3,04	3,11	1,32	1,39
16 sphères en configuration plan	3,444	3,04	3,97	1,32	1,45
16 sphères en configuration chaîne	3,721	3,04	3,97	1,32	1,39

Annexe Tableau 7: Borne supérieure et inférieure du paramètre de taille limite α_l .

Rappelons que R_{Xu} a été déterminé pour des paramètres de taille compris entre 0.01 et 9.25, il n'a donc pas été possible de déterminer l'encadrement de la valeur limite si cette dernière excède 9.25(cas de SiO_2).



Annexe Figure 1: Encadrement du paramètre de taille limite α_l en fonction du rayon projeté R_p , et en fonction du type de matériau (Al_2O_3 , TiO_2)

Sur la figure ci-dessus est présenté l'encadrement du paramètre de taille limite en fonction du rayon projeté et suivant le type de matériau (Al_2O_3 , TiO_2).

Ces résultats ne nous permettent pas de dégager une loi de variation du paramètre de taille limite suivant l'agrégat. Des simulations complémentaires seraient nécessaires pour affiner les encadrements.

Avec les données dont nous disposons, le paramètre de taille limite, pour un rayon projeté normalisé inférieur à 4, est dépendant de la nature des particules primaires :

- pour SiO_2 : $\alpha_{\text{lim}} \rightarrow \infty$
- pour Al_2O_3 : $3 < \alpha_{\text{lim}} < 4$,
- pour TiO_2 : $1.3 < \alpha_{\text{lim}} < 1.6$.

Le paramètre de taille limite est une fonction décroissante de l'indice de réfraction relatif.

➤ 64 et 100 particules primaires :variation de Cscat suivant la forme, sur l'ensemble des paramètres de taille $\alpha \in [0;6]$

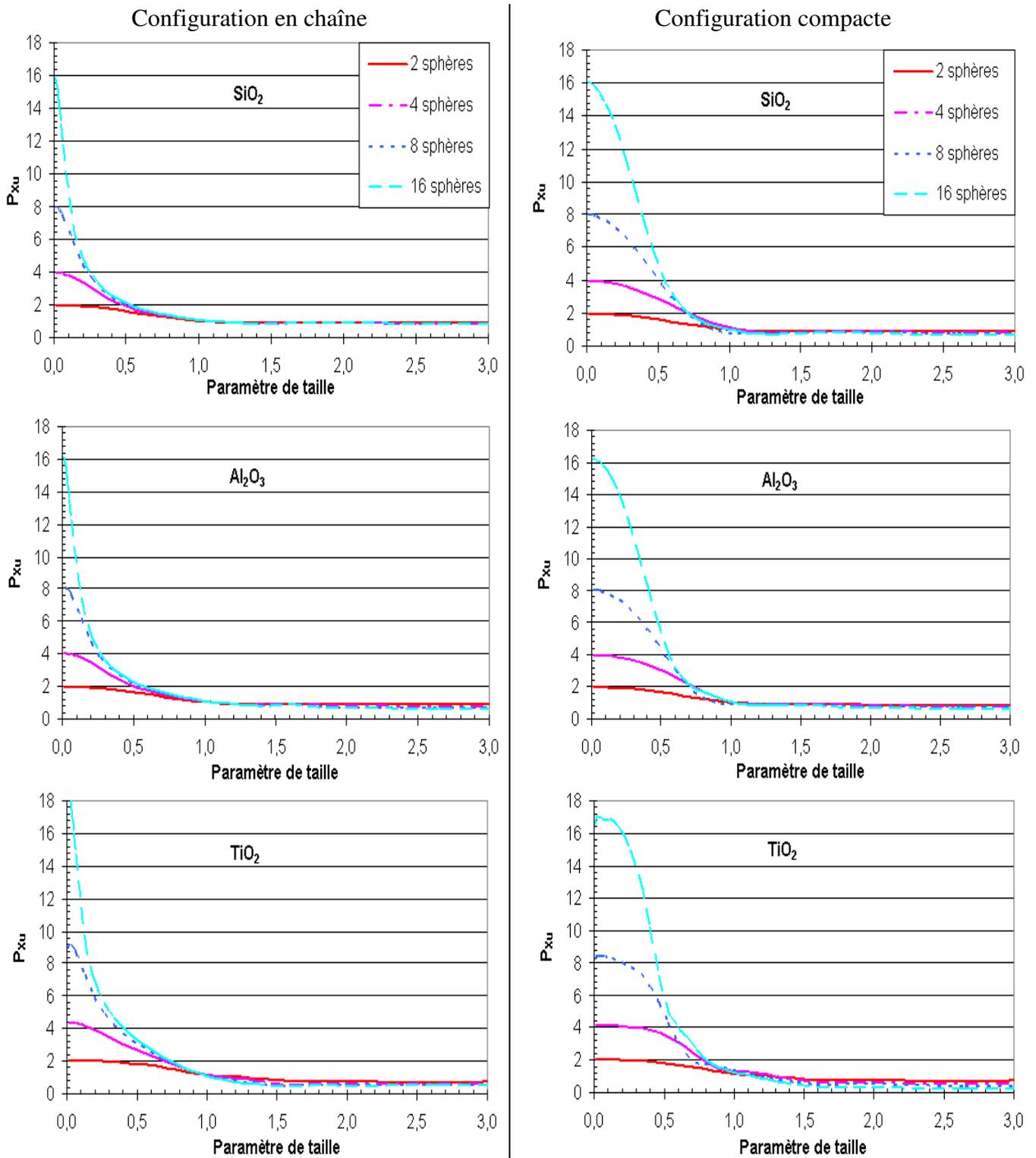
α	SiO ₂			Al ₂ O ₃			TiO ₂		
	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube
0,01	3,045E-12			3,792E-11			2,455E-10		
0,05	5,613E-09	1,318E-08	1,383E-08	7,251E-08	1,716E-07	1,748E-07	4,962E-07	1,191E-06	1,079E-06
0,53	6,675E-04	1,794E-03	2,733E-03	9,427E-03	2,626E-02	4,008E-02	8,057E-02	2,052E-01	2,870E-01
1,59	1,162E-01	2,092E-01	2,959E-01	1,665E+00	1,986E+00	2,972E+00	9,328E+00	5,980E+00	2,764E+00
5,29	1,564E+01	1,679E+01	2,620E+01	1,005E+02	5,597E+01	3,216E+01	8,109E+01	5,597E+01	3,096E+01

Annexe Tableau 8:64 particules primaires (Cscat en μm^2)

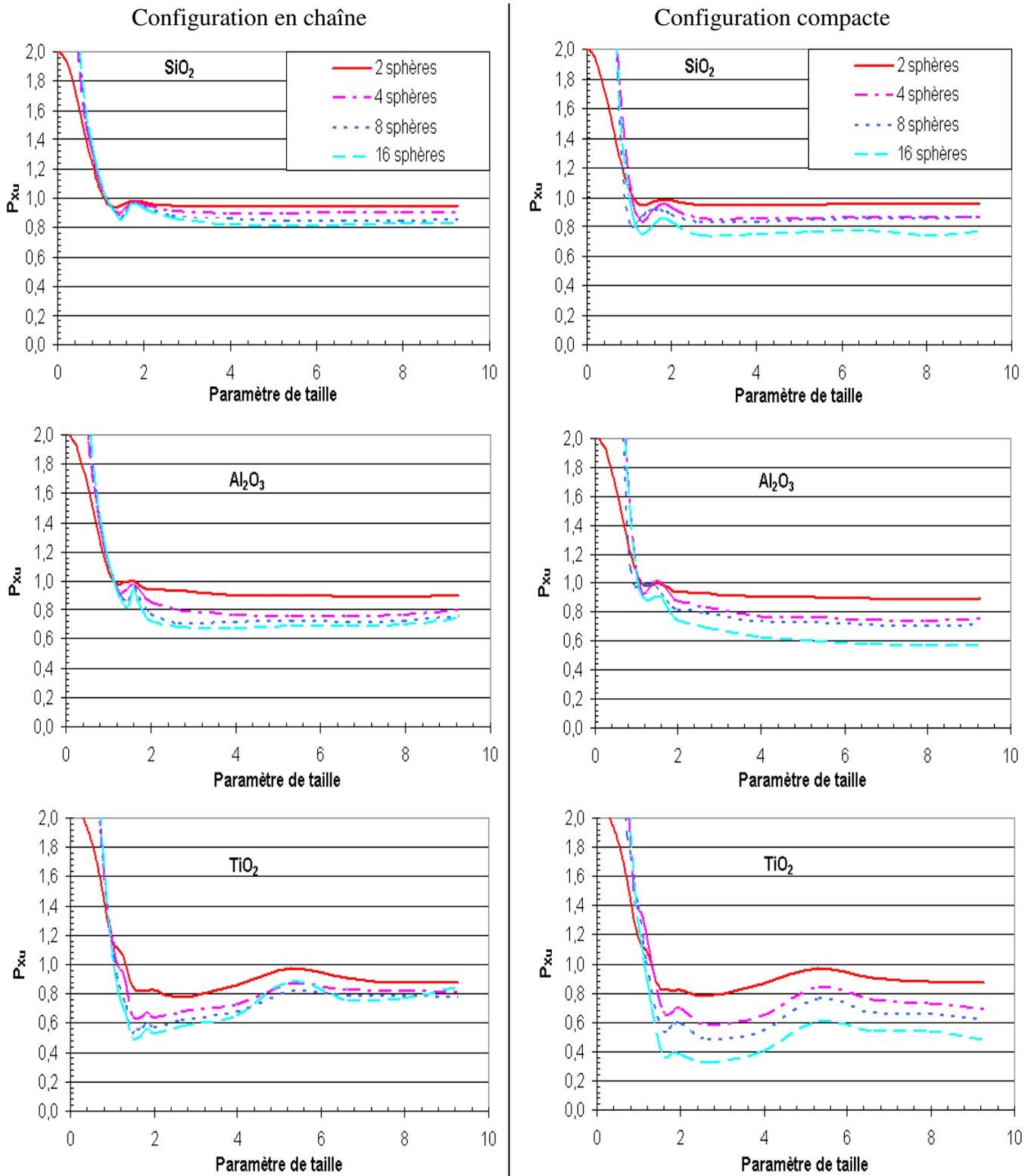
α	SiO ₂			Al ₂ O ₃			TiO ₂		
	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube
0,01	6,345E-12			7,902E-11			5,159E-10		
0,05	9,386E-09	3,086E-08	3,341E-08	1,235E-07	4,048E-07	4,241E-07	8,773E-07	2,877E-06	2,644E-06
0,53	1,046E-03	3,171E-03	5,263E-03	1,490E-02	4,643E-02	7,509E-02	1,295E-01	3,309E-01	4,920E-01
1,59	1,930E-01	3,487E-01	5,288E-01	2,443E+00	2,922E+00	4,529E+00	1,465E+01	9,233E+00	4,113E+00
5,29	2,339E+01	2,527E+01	4,089E+01	1,569E+02	1,095E+02	4,379E+01	1,290E+02	9,568E+01	4,920E-01

Annexe Tableau 9: 100 particules primaires (Cscat en μm^2)

➤ Variation de Cpr suivant le nombre de particules primaires



Annexe Figure 2: idem que Figure B- III-12 (page - 132 -) mais pour un paramètre de taille maximal de 3



Annexe Figure 3: idem que la Figure B- III-12 (page - 132 -) mais avec P_{xu} compris entre 0 et 2

➤ Variation de C_{pr} suivant la forme, sur l'ensemble des paramètres de tailles $\alpha \in [0;10]$

Rapport des configurations	Chaîne/ Compacte	Chaîne/ Plan	Chaîne/ P1	Chaîne/ P2	Compacte/ Plan	Compacte/ P1	Compacte/ P2	Plan/ P1	Plan/ P2	P1/ P2
SiO ₂	10,9%	7,2%	4,9%	5,0%	6,3%	10,8%	10,6%	4,2%	4,1%	0,9%
Al ₂ O ₃	9,5%	7,1%	5,5%	5,2%	6,2%	10,3%	9,6%	4,4%	3,6%	1,3%
TiO ₂	11,9%	6,7%	4,4%	4,2%	6,8%	12,1%	10,9%	5,5%	4,2%	1,8%
moyenne	10,8%	7,0%	4,9%	4,8%	6,5%	11,1%	10,4%	4,7%	4,0%	1,3%

Annexe Tableau 10: Différence entre les configurations de C_{pr} pour un agrégat de 4 sphères

Rapport des configurations	Chaîne/ Compacte	Chaîne/ P82	Chaîne/ Plan	Chaîne/ P83	Compacte/ P82	Compacte/ Plan	Compacte/ P83	Plan/ P82	Plan/ P83	P82/ P83
SiO ₂	17,2%	7,6%	10,9%	6,2%	15,6%	9,5%	18,8%	5,5%	9,1%	2,9%
Al ₂ O ₃	14,9%	7,4%	10,7%	6,7%	14,0%	8,9%	16,7%	6,0%	9,9%	3,6%
TiO ₂	15,9%	8,4%	10,8%	7,5%	13,1%	9,8%	14,1%	7,5%	10,8%	3,5%
moyenne	16,0%	7,8%	10,8%	6,8%	14,2%	9,4%	16,5%	6,3%	10,0%	3,4%

Annexe Tableau 11: Différence entre les configurations de C_{pr} pour un agrégat de 8 sphères

Rapport des configurations	Chaîne/ Compacte	Chaîne/ Plan	Chaîne/ Cube	Plan/ Cube	Compacte/ Cube	Plan/ Cube
SiO ₂	23,3%	16,7%	22,7%	12,4%	7,4%	9,0%
Al ₂ O ₃	20,8%	20,1%	20,1%	13,2%	7,2%	9,3%
TiO ₂	31,0%	26,4%	24,2%	19,9%	10,0%	12,0%
moyenne	25,0%	21,1%	22,4%	15,1%	8,2%	10,1%

Annexe Tableau 12: Différence entre les configurations de C_{pr} pour un agrégat de 16 sphères

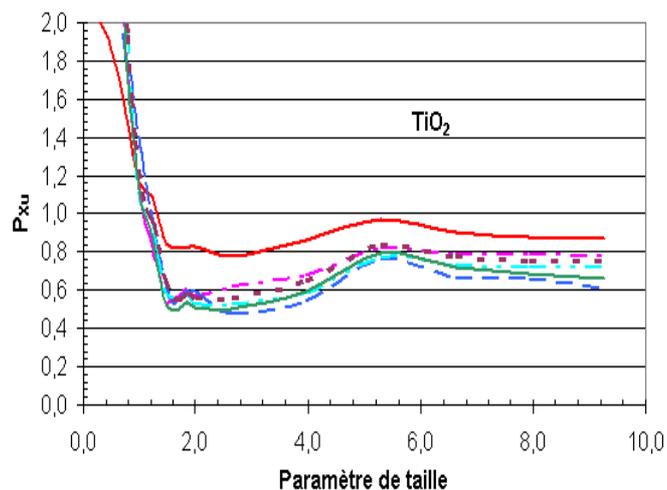
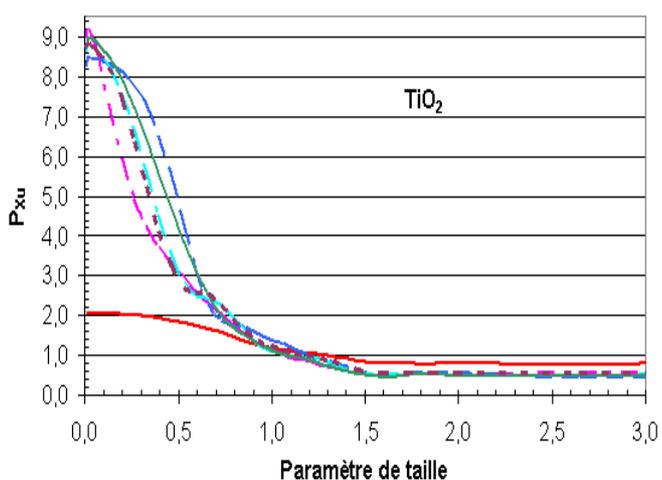
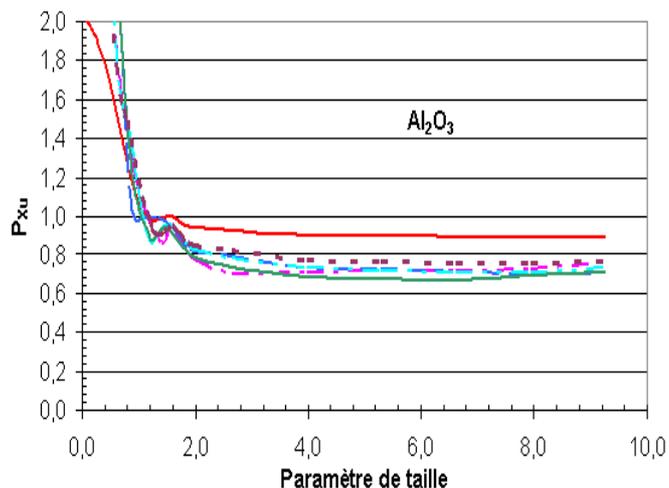
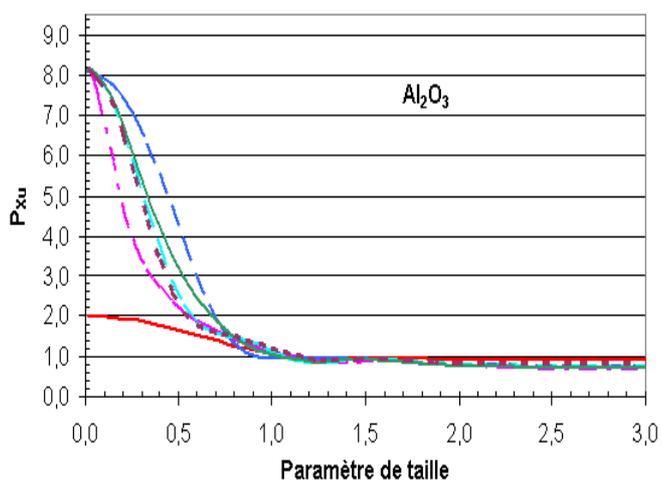
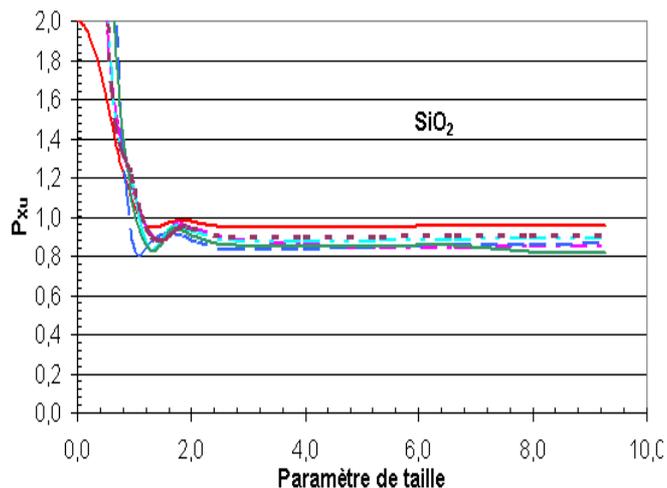
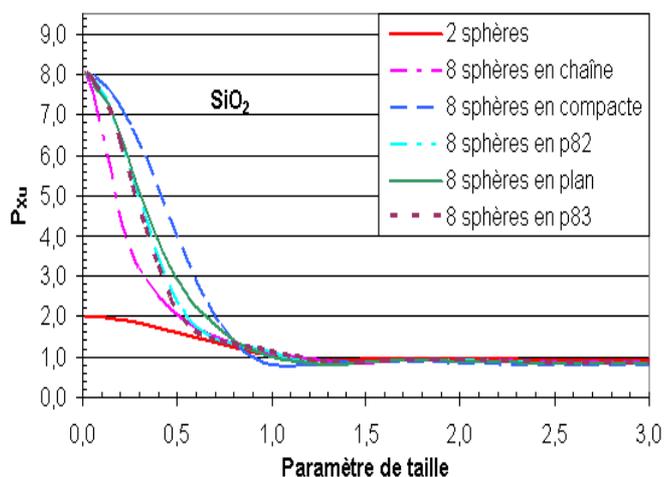
➤ 64 et 100 particules primaires :variation de Cpr suivant la forme, sur l'ensemble des paramètres de taille $\alpha \in [0;6]$

α	SiO ₂			Al ₂ O ₃			TiO ₂		
	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube
0,01	2,897E-12			3,578E-11			2,337E-10		
0,05	4,150E-09	1,276E-08	1,366E-08	5,410E-08	1,664E-07	1,726E-07	3,826E-07	1,151E-06	1,063E-06
0,53	3,693E-04	5,340E-04	6,499E-04	5,665E-03	8,103E-03	1,004E-02	4,992E-02	6,973E-02	8,410E-02
1,59	3,530E-02	3,308E-02	3,157E-02	4,549E-01	3,058E-01	4,313E-01	2,726E+00	1,322E+00	1,397E+00
5,29	8,794E-01	6,387E-01	7,289E-01	1,205E+01	1,835E+01	7,198E+00	2,338E+01	1,835E+01	1,348E+01

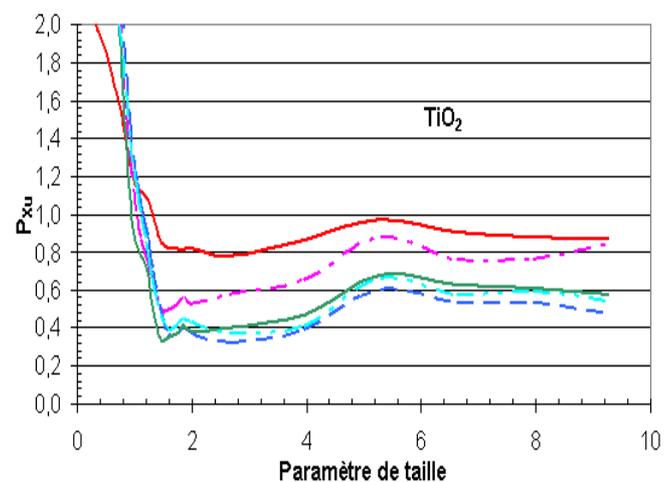
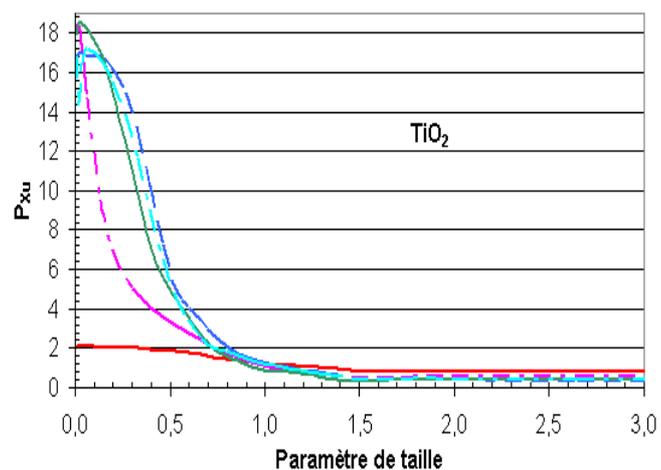
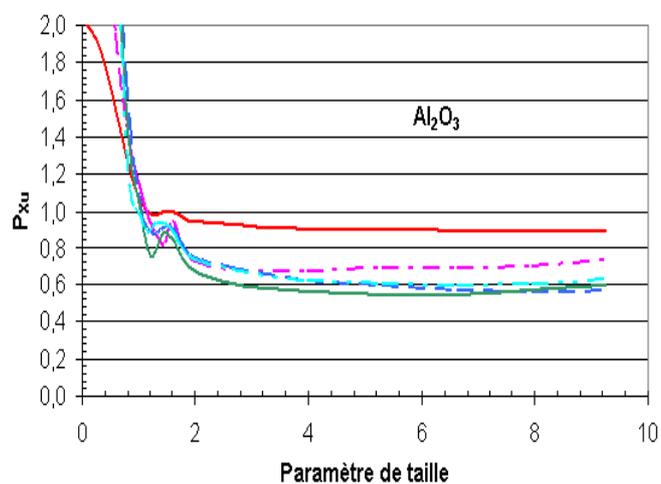
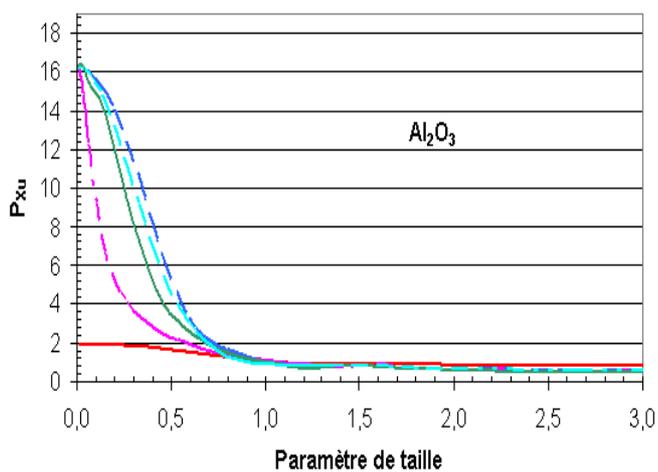
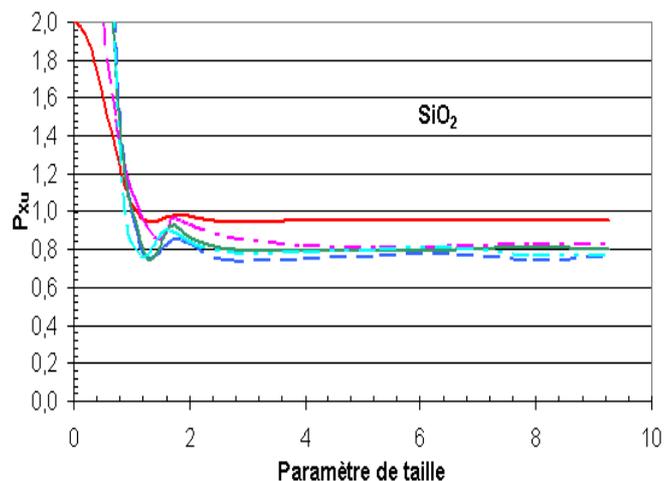
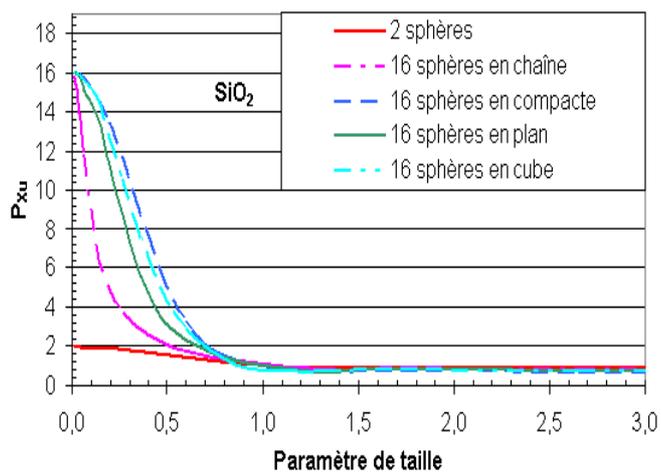
Annexe Tableau 13: 64 particules primaires (Cpr en μm^2)

α	SiO ₂			Al ₂ O ₃			TiO ₂		
	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube	chaîne	plan	cube
0,01	5,675E-12			6,981E-11			4,633E-10		
0,05	6,311E-09	2,933E-08	3,286E-08	8,857E-08	3,859E-07	4,170E-07	6,595E-07	2,739E-06	2,593E-06
0,53	6,220E-04	8,400E-04	1,087E-03	9,107E-03	1,254E-02	1,571E-02	8,109E-02	1,014E-01	1,221E-01
1,59	5,722E-02	5,096E-02	4,725E-02	6,404E-01	4,302E-01	6,363E-01	3,978E+00	1,760E+00	1,755E+00
5,29	1,412E+00	9,241E-01	1,075E+00	1,898E+01	1,237E+01	1,001E+01	3,761E+01	2,716E+01	1,912E+01

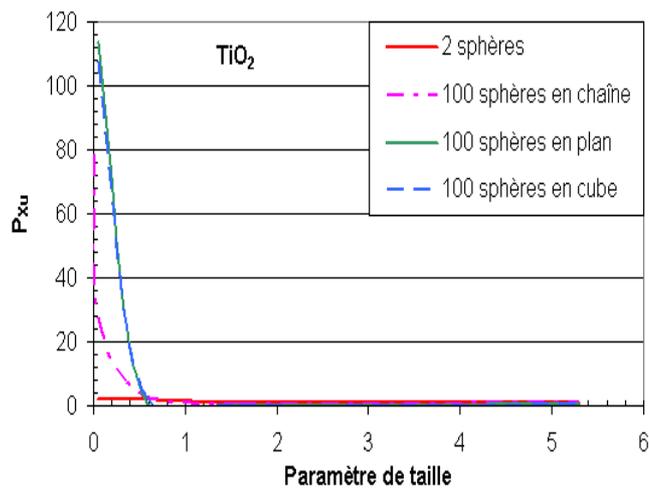
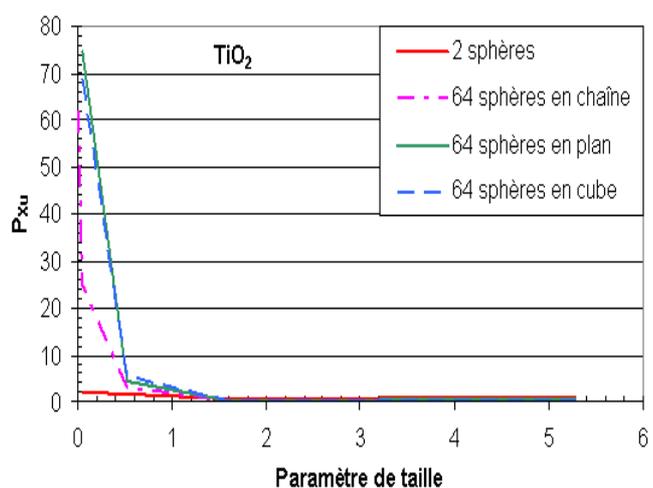
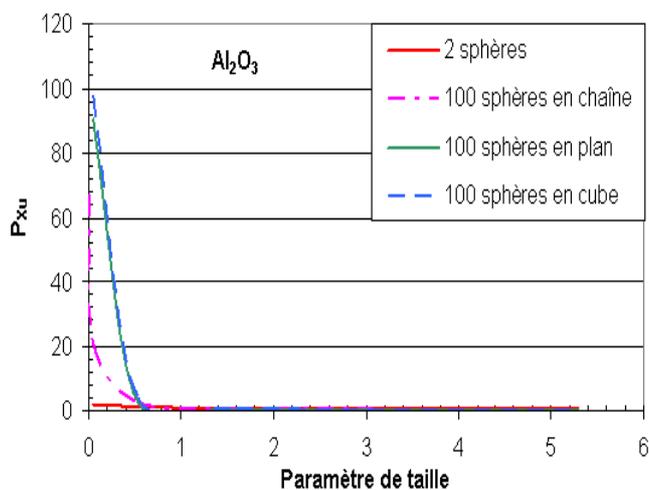
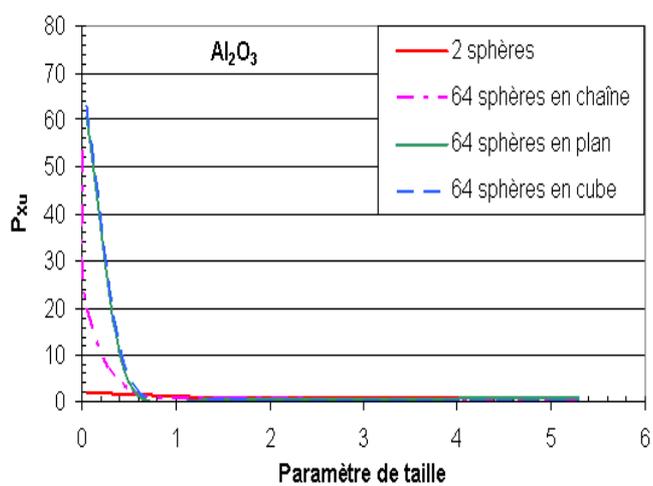
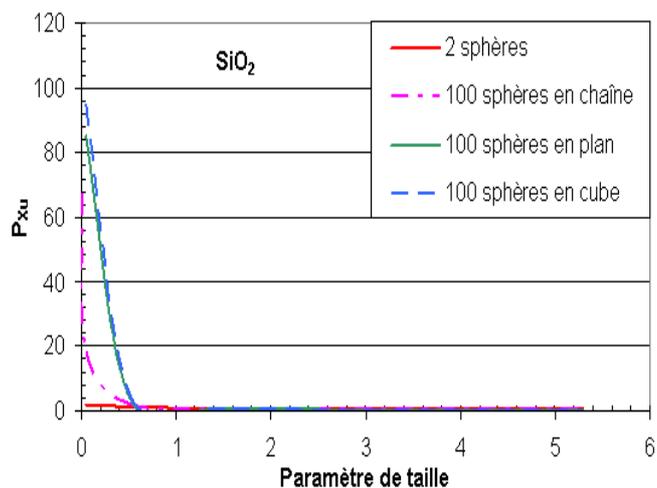
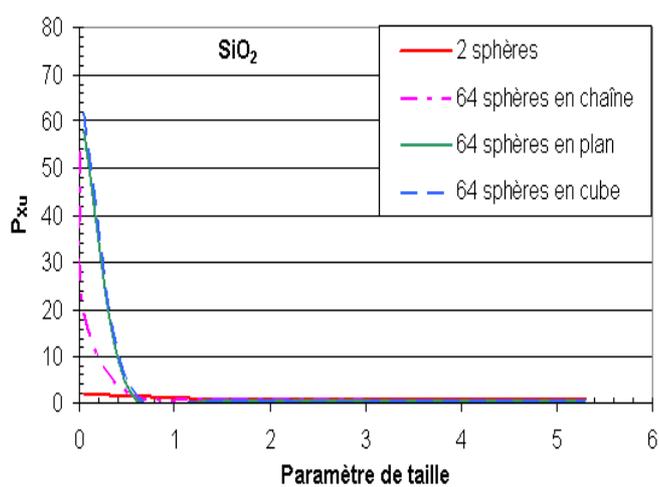
Annexe Tableau 14: 100 particules primaires (Cpr en μm^2)



Annexe Figure 4 : Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 8 sphères primaires.



Annexe Figure 5: Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 16 sphères primaires.



Annexe Figure 6: Variation de la section efficace de pression de radiation en fonction de la configuration pour un agrégat composé de 64 sphères primaires et 100 sphères primaires.

➤ Détermination du facteur de proportionnalité entre $C_{pr_{Xu,N}}$ et $C_{pr_{Xu,1}}$ ou $C_{pr_{Xu,2}}$

Nous avons remarqué dans la partie B.III.2 que P_{Xu} était, pour des paramètres de taille supérieurs à 1.5, constant pour un agrégat dans une configuration donnée. Cette constante, notée p , est également fonction du type de matériau (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2). Sa dépendance envers la morphologie de l'agrégat peut s'exprimer à l'aide de N et d_1 qui sont respectivement le nombre de particules primaires au sein de l'agrégat et la distance inter particule primaire moyenne (B.22).

Soit pour $\alpha > 1.5$ $P_{Xu} = \frac{C_{pr_{Xu,N}}}{NC_{pr_{Mie,1}}} = p$ conformément à l'équation (B.26)

Nous allons examiner successivement deux méthodes approchées :

- $C_{pr_{Xu,N}}$ proportionnel au C_{pr} d'une particule primaire : $C_{pr_{Mie,1}}$

Dans un premier temps nous avons évalué p , que nous appellerons p_1 , en fonction du type de matériau et de la morphologie de l'agrégat.

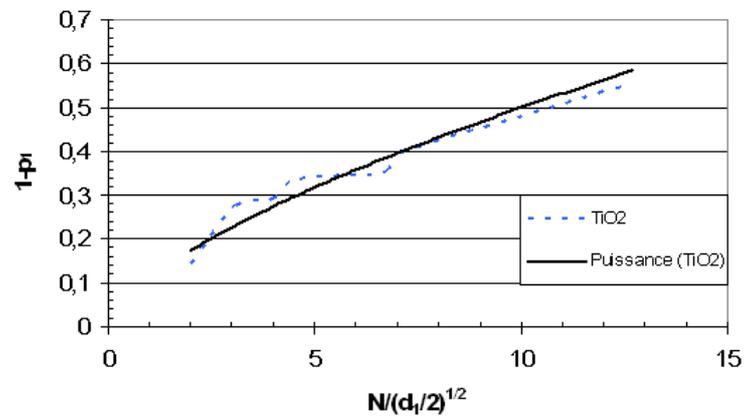
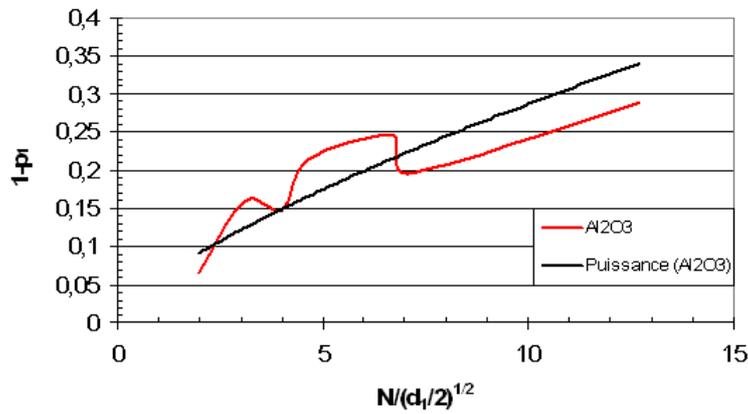
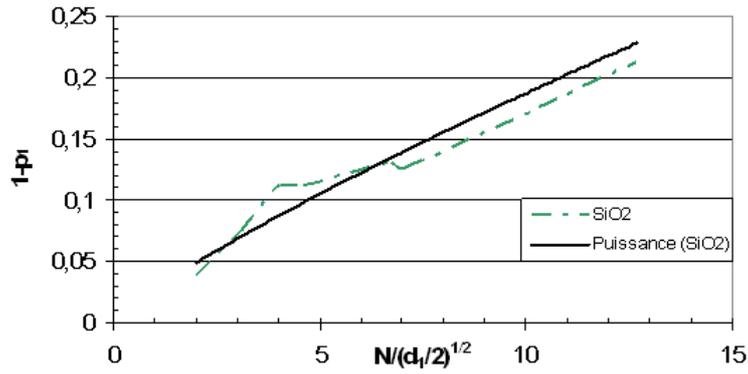
La figure ci-dessous présente l'évolution de p_1 en fonction de N et d_1 pour les trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2).

Ceci nous conduit à exprimer p_1 comme suit :

- pour SiO_2 : $p_1 = 1 - 0.027 \left(\frac{N}{\sqrt{d_1/2}} \right)^{0.8}$ avec une erreur moyenne de 13%

- pour Al_2O_3 : $p_1 = 1 - 0.056 \left(\frac{N}{\sqrt{d_1/2}} \right)^{0.7}$ avec une erreur moyenne de 18%

- pour TiO_2 : $p_1 = 1 - 0.1 \left(\frac{N}{\sqrt{d_1/2}} \right)^{0.65}$ avec une erreur moyenne de 13%



Annexe Figure 7: Evolution de $1-p_1$ en fonction de N et d_1 pour des agrégats constitués de particules primaires de différents matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2).

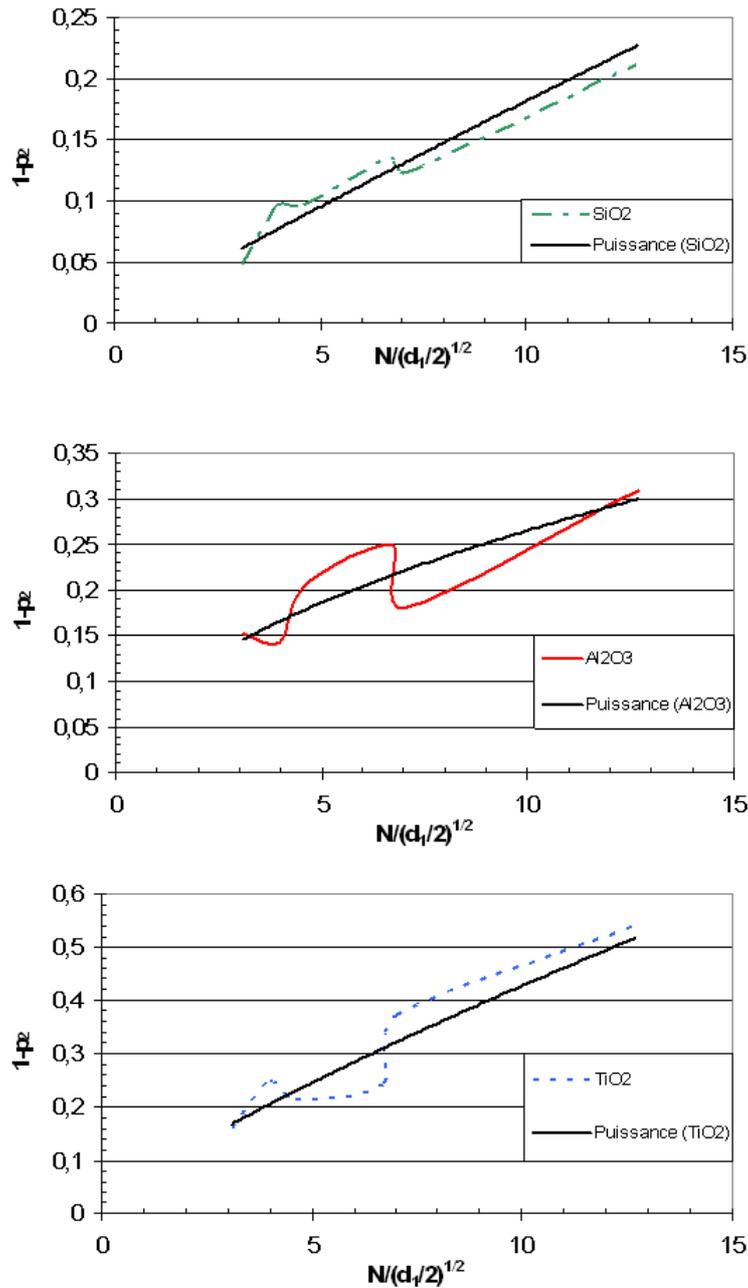
- $C_{pr_{Xu,N}}$ proportionnel au C_{pr} d'un doublet: $C_{pr_{Xu,2}}$

Mais il est également possible d'évaluer $C_{pr_{Xu,N}}$ en fonction de la section efficace de pression de radiation d'un doublet ; en effet, dans B.III.2 nous avons aussi noté que pour un paramètre

de taille supérieur à 1.5, la courbe $Cpr(\alpha)$ d'un agrégat suivait la même allure que la section efficace de pression de radiation d'un doublet et ce, quelque soit le matériau d'où

$$\frac{Cpr_{Xu,N}}{Cpr_{Xu,2}} = \frac{N}{2} p_2.$$

les trois matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2).



Annexe Figure 8: Evolution de $1-p_2$ en fonction de N et d_1 pour des agrégats constitués de particules primaires de différents matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2).

On obtient alors les expressions suivantes :

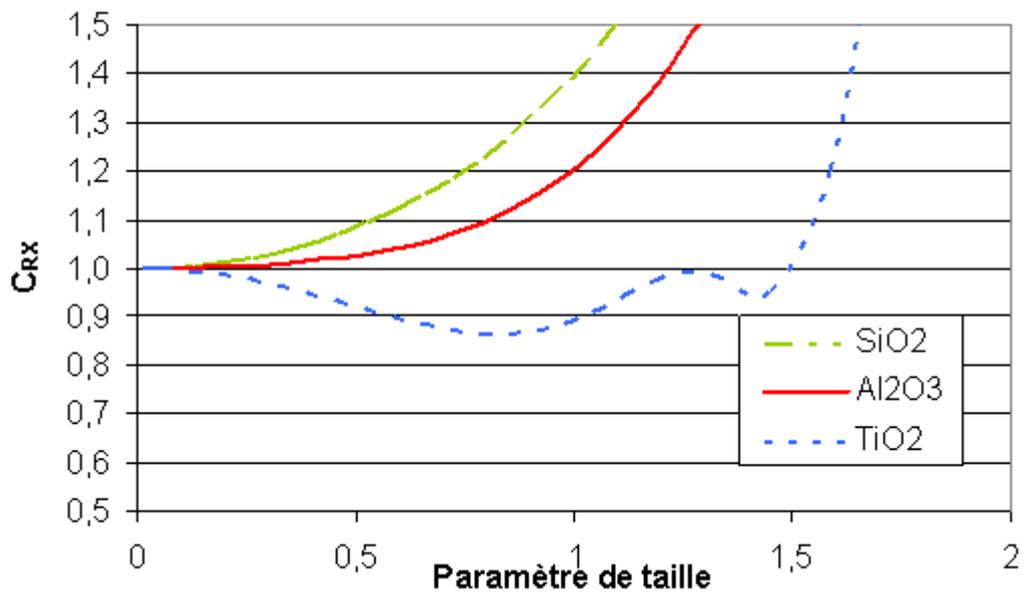
- pour SiO_2 : $p_2 = 1 - 0.021 \left(\frac{N}{\sqrt{d_1/2}} \right)^{0.9}$ avec une erreur moyenne de 23%

- pour Al_2O_3 : $p_2 = 1 - 0.08 \left(\frac{N}{\sqrt{d_1/2}} \right)^{0.51}$ avec une erreur moyenne de 22%

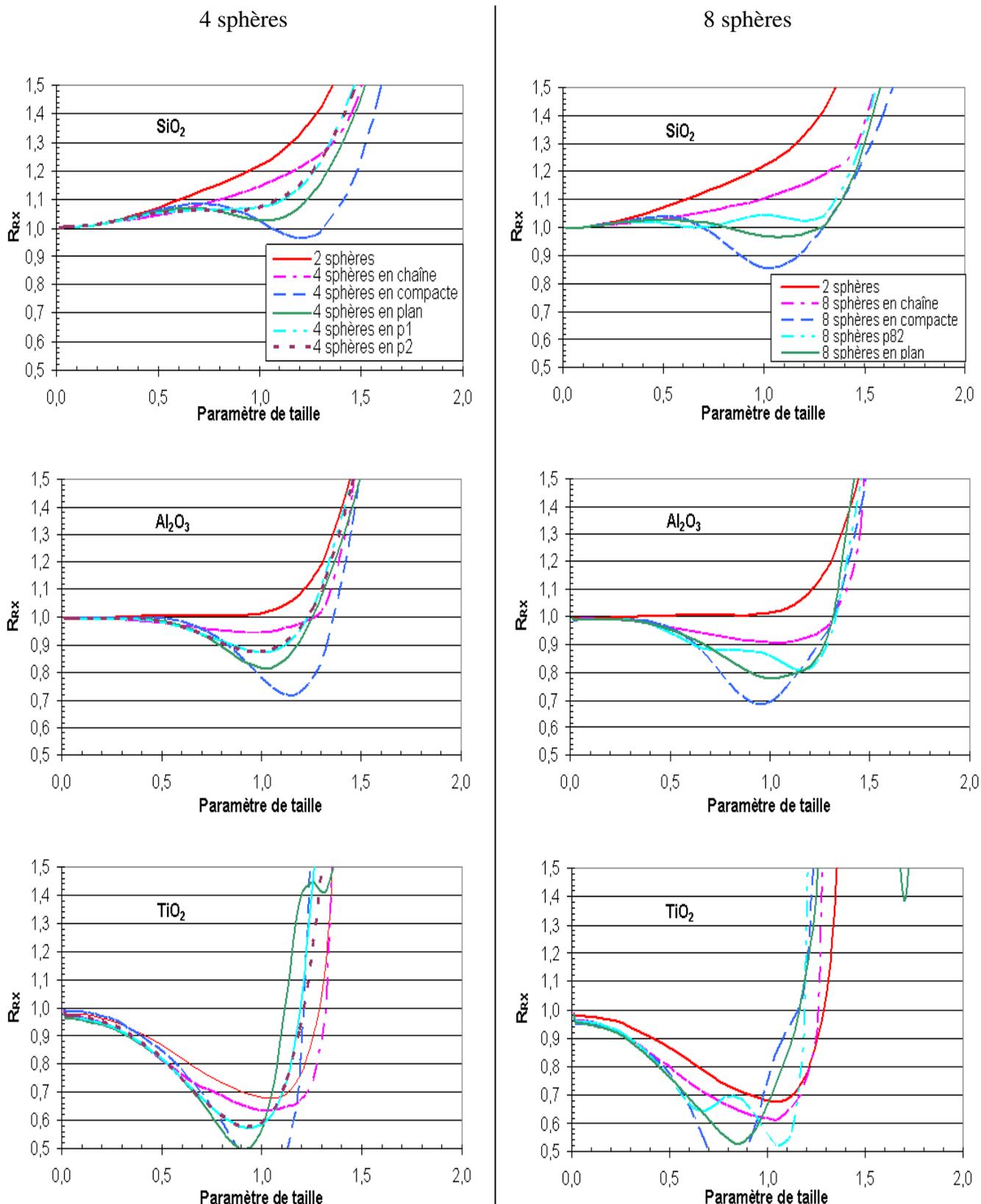
- pour TiO_2 : $p_2 = 1 - 0.07 \left(\frac{N}{\sqrt{d_1/2}} \right)^{0.8}$ avec une erreur moyenne de 21%

Annexe B.IV.

➤ Approximation de Rayleigh



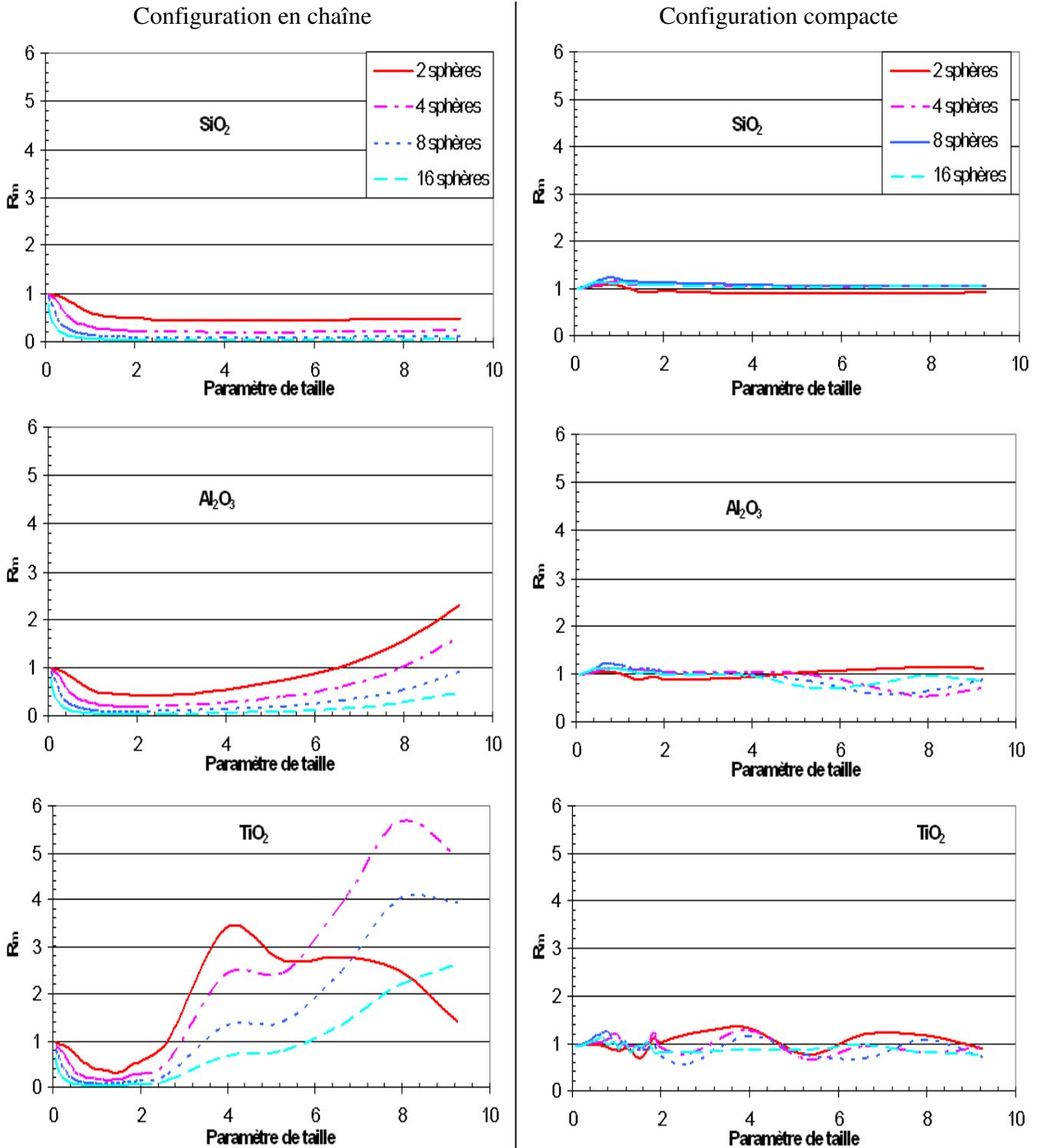
Annexe Figure 9: Domaine de validité de l'approximation de Rayleigh pour une sphère pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2).



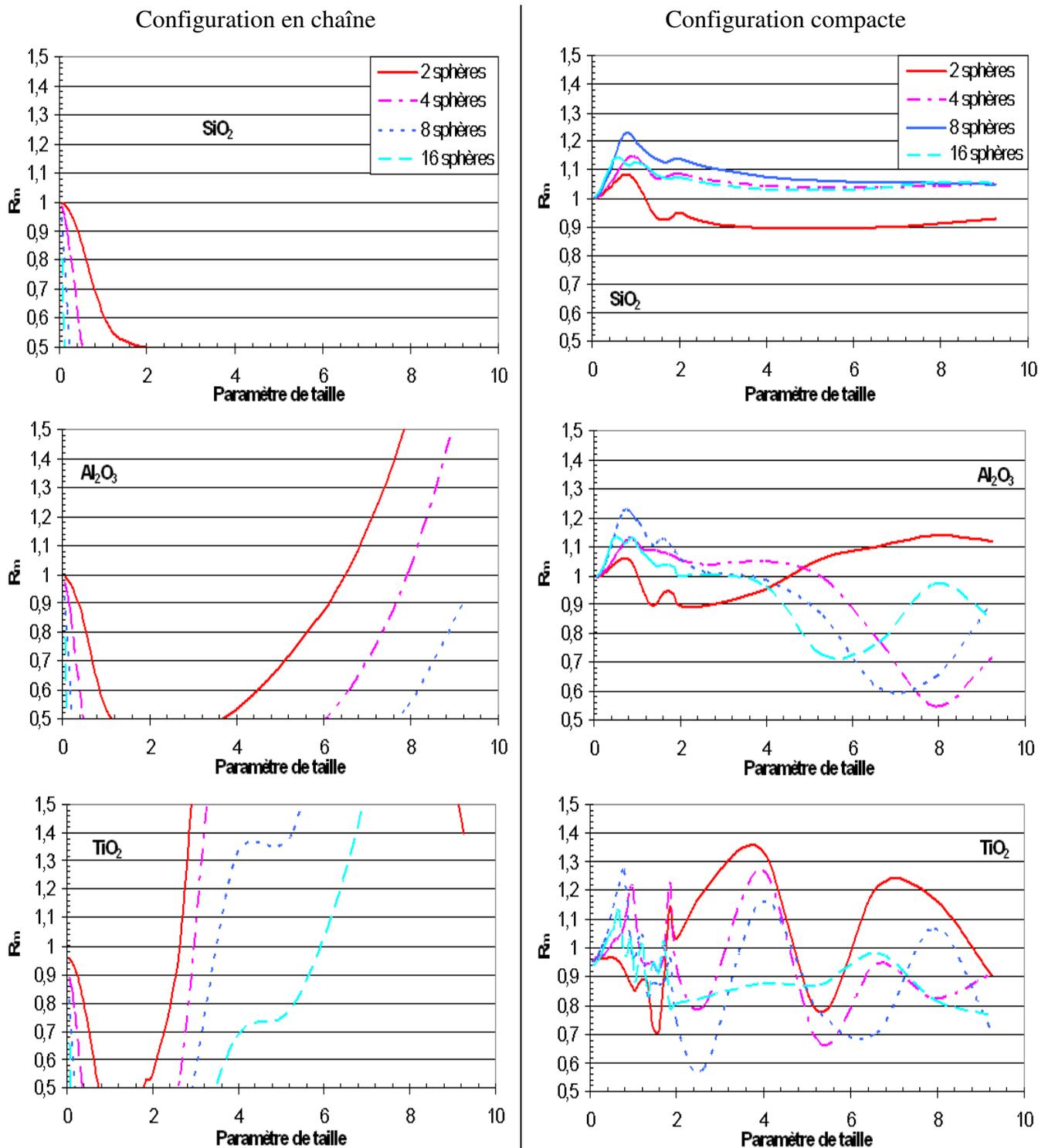
Annexe Figure 10: Domaine de validité de l'approximation de Rayleigh pour des agrégats de 4 et 8 sphères pour les 3 matériaux.

Annexe B.V.

➤ Méthode Fractal

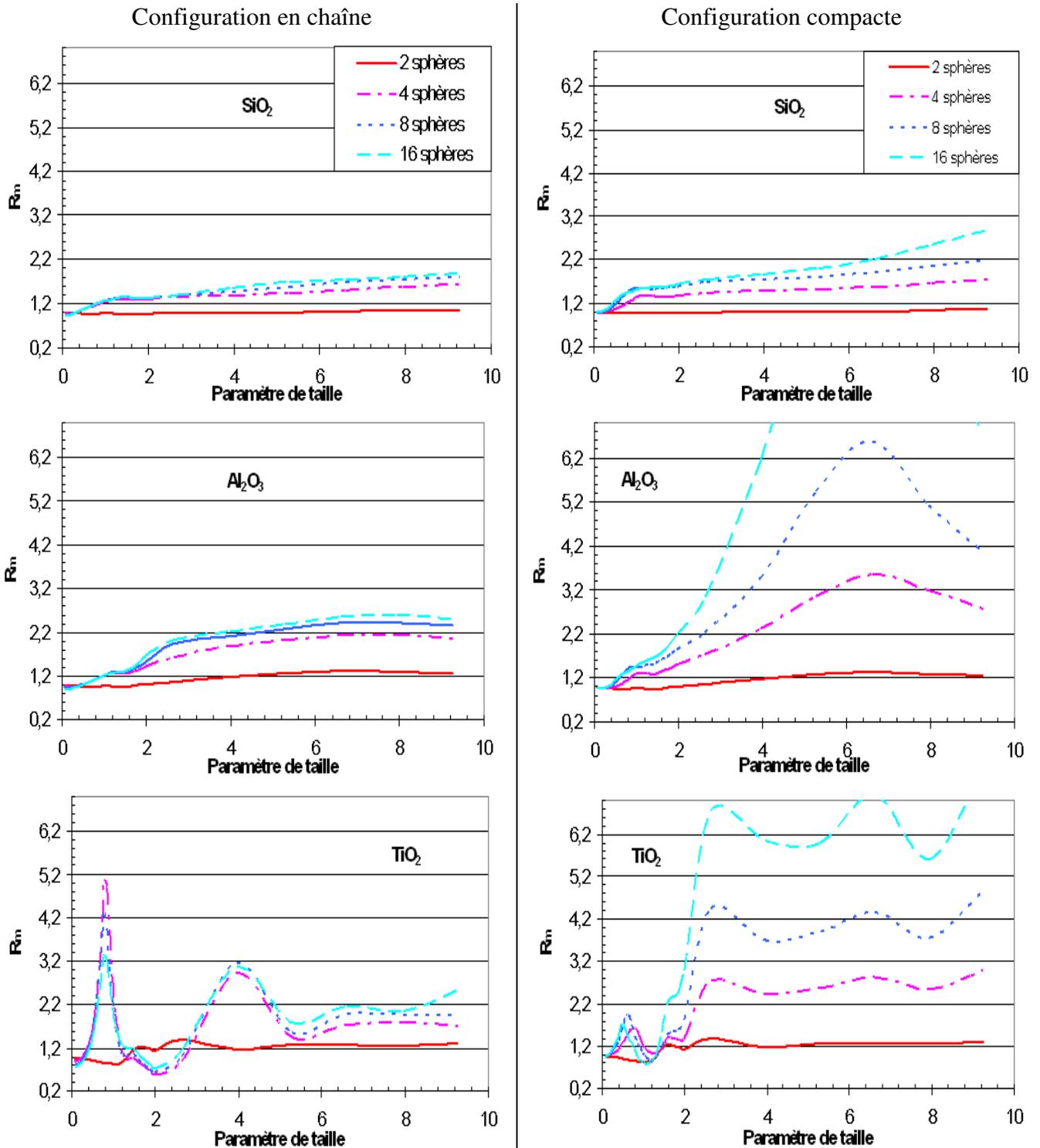


Annexe Figure 11: Méthode Fractal : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

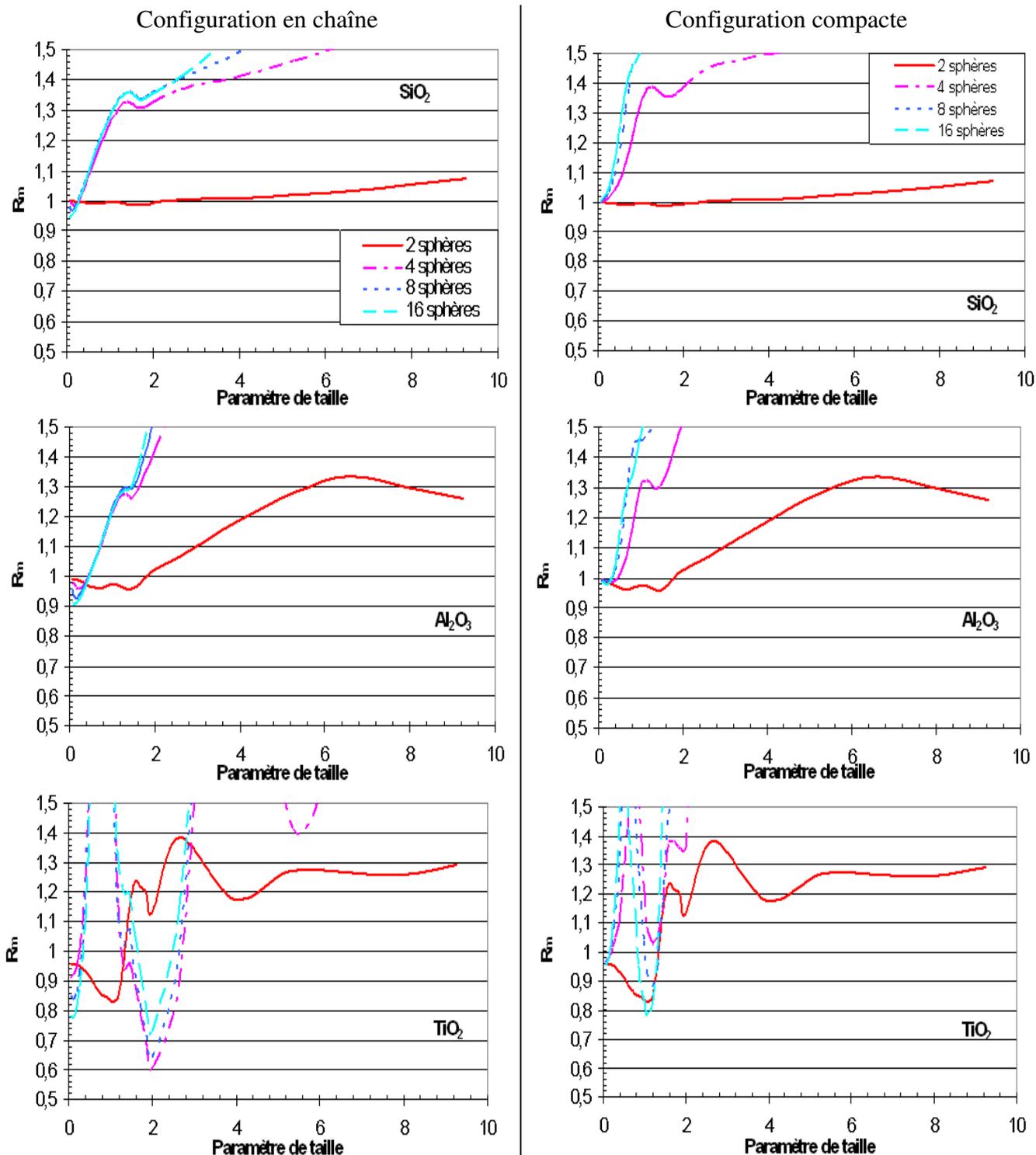


Annexe Figure 12: Méthode Fractal : Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

➤ Méthode Khlebtsov

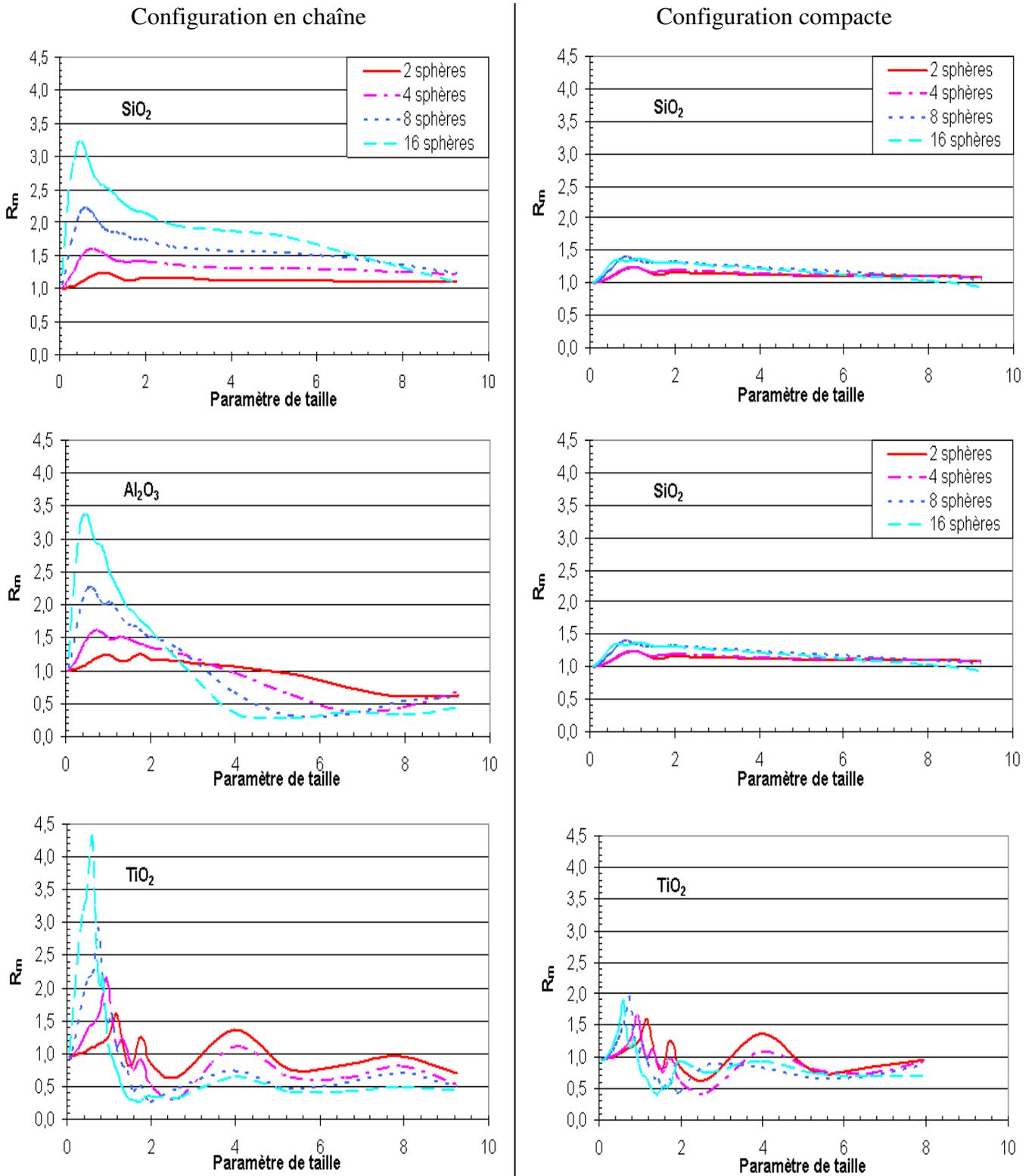


Annexe Figure 13: Méthode Khlebtsov : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

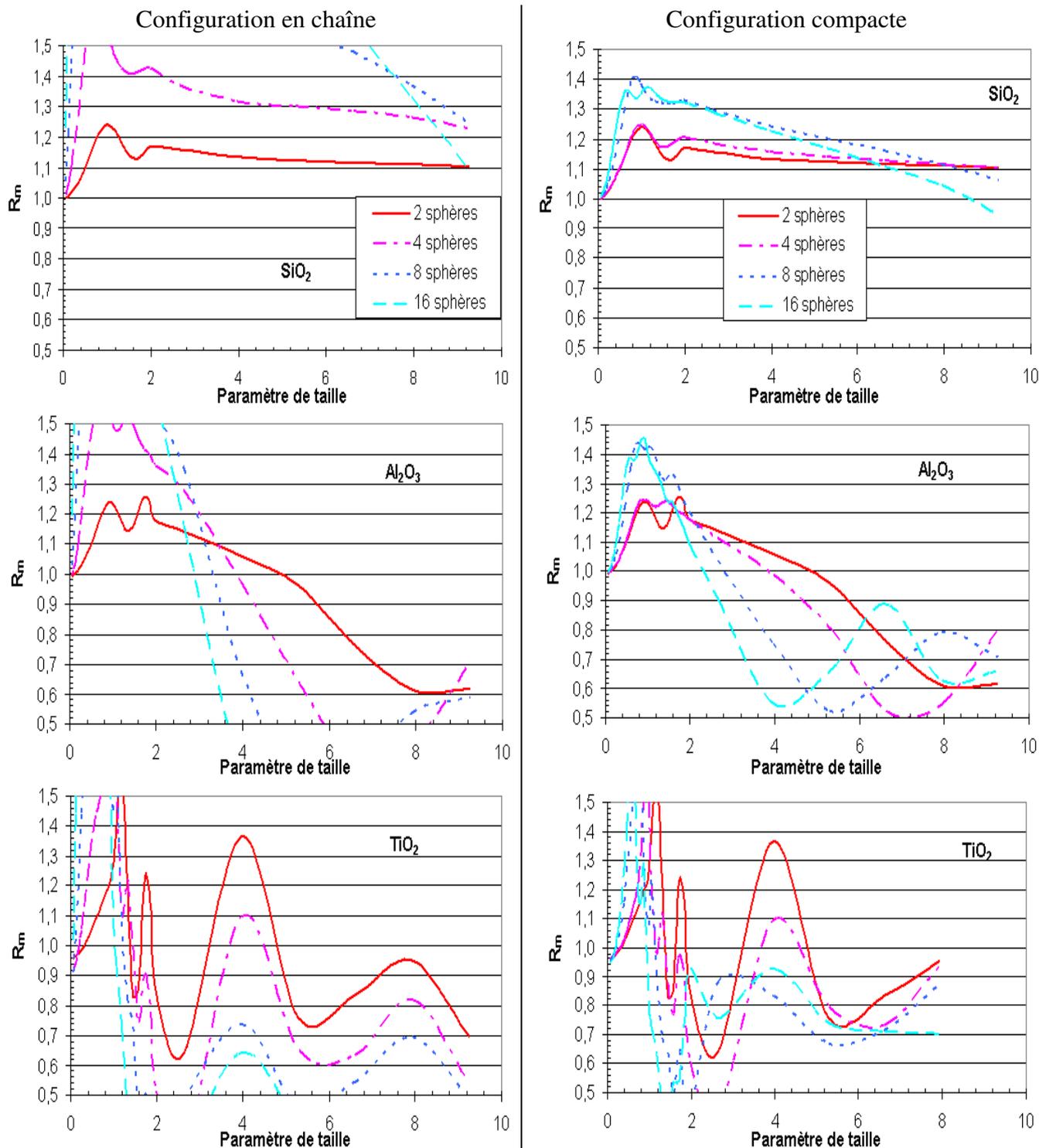


Annexe Figure 14: Méthode Khlebtsov : Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

➤ Sphère compacte (SC)

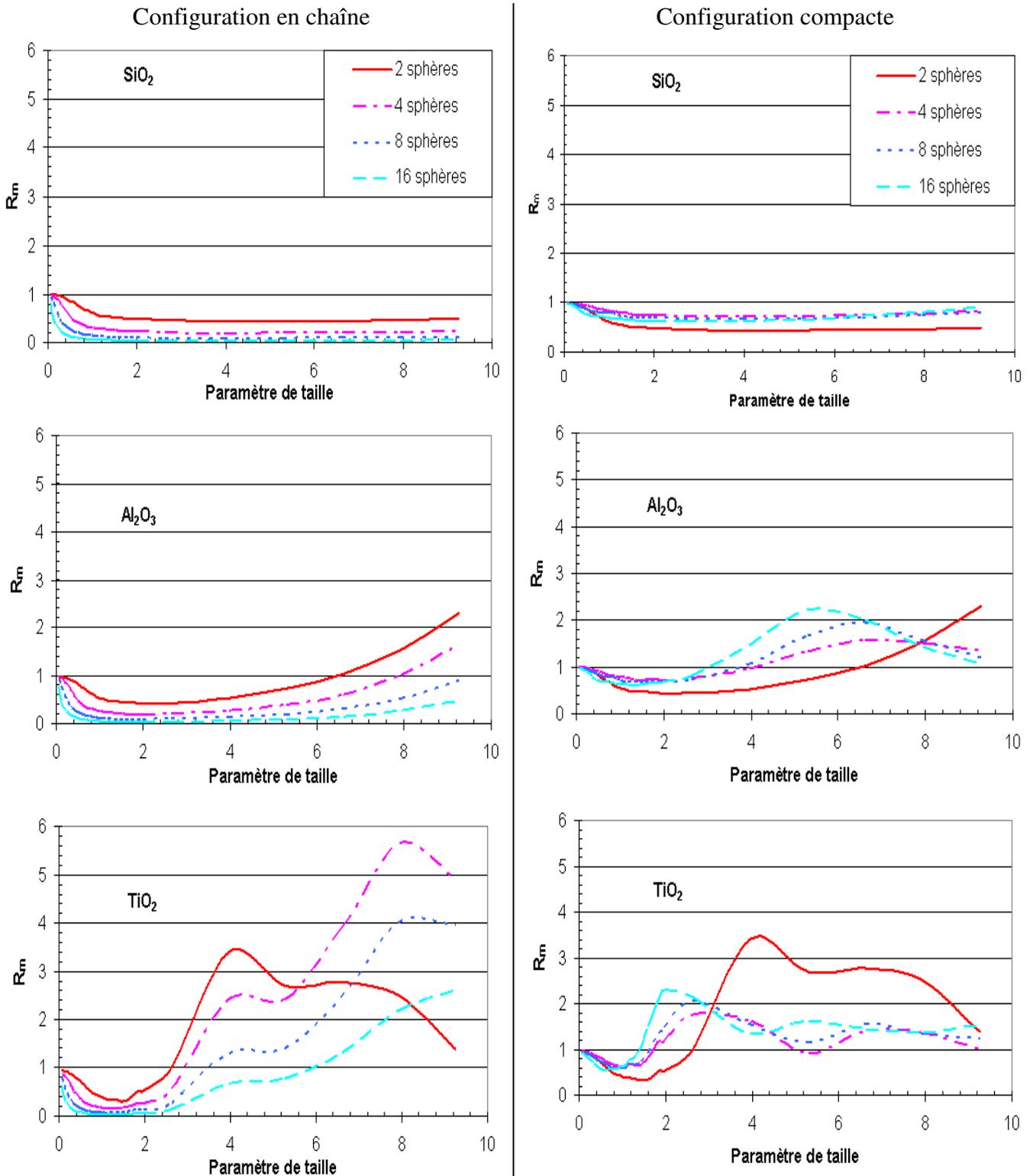


Annexe Figure 15: Méthode de la sphère compacte : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

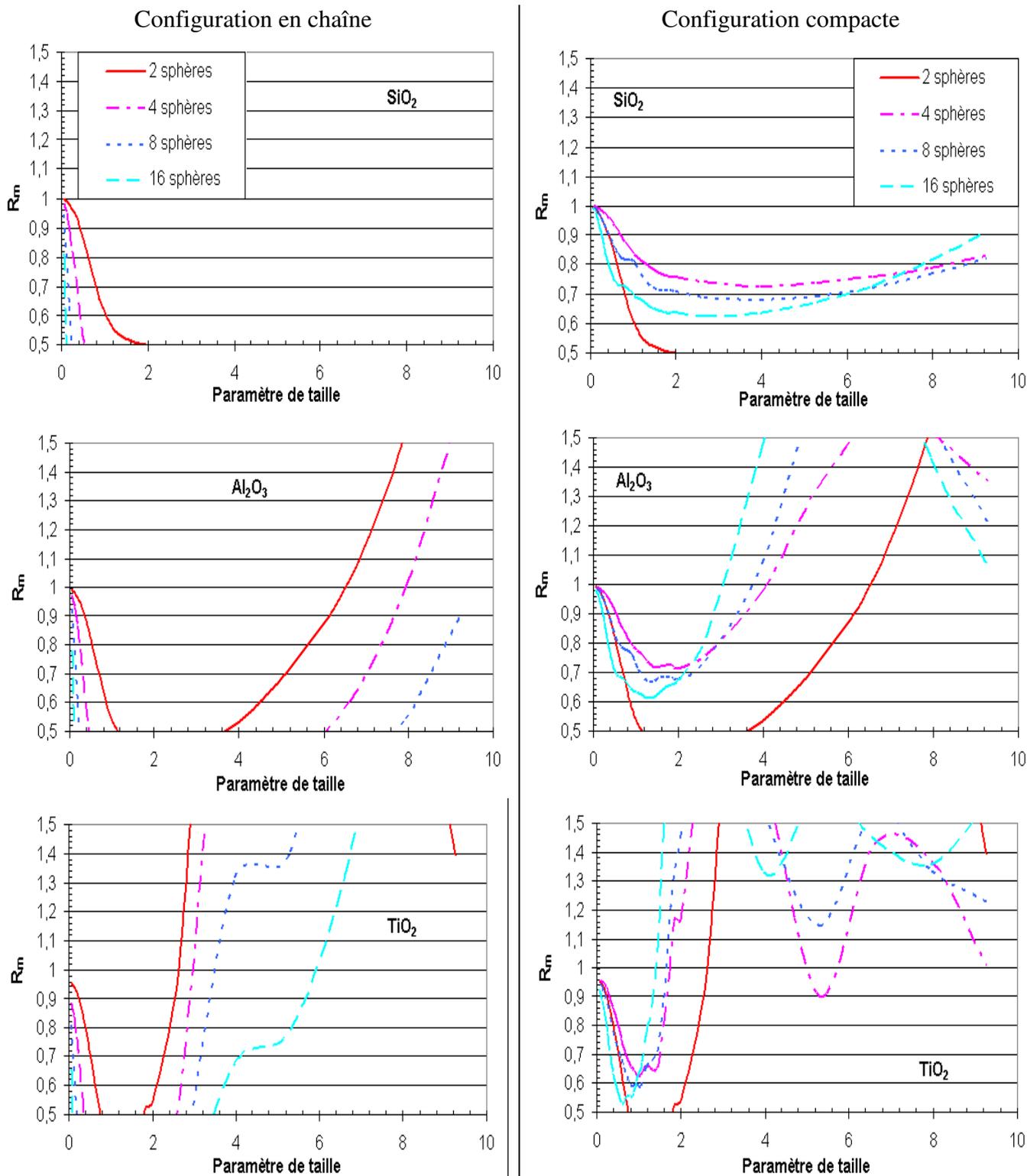


Annexe Figure 16: Méthode de la sphère compacte : Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO₂, Al₂O₃, TiO₂) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ère} colonne) et compacte (2^{ème} colonne).

➤ Sphère creuse



Annexe Figure 17: Méthode de la sphère creuse : Vue générale de R_m en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).



Annexe Figure 18: Méthode de la sphère creuse : Avec $R_m \in [0.5, 1.5]$ en fonction du paramètre de taille, pour les 3 matériaux (SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2) et suivant 2 configurations : en chaîne (1^{ière} colonne) et compacte (2^{ième} colonne).

➤ Comparaison entre DA et DAr

La comparaison de la moyenne et de l'écart type de $R_{m,c}$ des méthodes approchées DA et DAr montre que DA est plus proche de la méthode exacte que ne l'est DAr.

0 < α < 2												
configuration	chaîne						compacte					
indice	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂	
methode	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ
DA	0,60	0,45	0,57	0,48	0,57	0,53	0,56	0,50	0,53	0,52	0,51	0,57
DAr	0,56	0,49	0,56	0,50	0,57	0,53	0,51	0,54	0,48	0,56	0,49	0,59

Annexe Tableau 15 : Performance de DA et DAr suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 0 et 2

2 < α < 10												
configuration	chaîne						compacte					
indice	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂	
methode	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ
DA	0,96	0,07	1,04	0,06	1,07	0,08	0,94	0,07	1,05	0,12	1,11	0,15
DAr	0,90	0,12	1,07	0,09	1,12	0,13	0,85	0,18	1,01	0,13	1,07	0,10

Annexe Tableau 16: Performance de DA et DAr suivant l'indice de réfraction et un paramètre de taille compris entre 2 et 10

Annexe B.VI.

➤ Evaluation des méthodes approchées permettant de calculer Cpr

Soit $Pp_1 = \frac{p_1 N Cpr_{Mie,1}}{Cpr_{Xu,N}}$ et $Pp_2 = \frac{p_2 (N/2) Cpr_{Mie,2}}{Cpr_{Xu,N}}$ permettant d'évaluer les deux méthodes

approchées figurant aux numérateurs (p_1 et p_2 ont été déterminés en Annexe B.III, page XXI-XXII). Elles évaluent la section efficace de pression de radiation d'un agrégat à l'aide de C_{pr} d'une particule primaire ou d'un doublet. L'évaluation de ces méthodes est réalisée en comparant la moyenne et l'écart type σ sur l'ensemble des configurations compactes et chaîne avec 2, 4, 8, 16 particules primaires pour des paramètre de taille compris entre 1.5 et 10.

ERI/G est une autre méthode approchée abordée en B.VI.1.2.b).

		1,5< α <10											
configuration	chaîne						compacte						
indice	SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		SiO ₂		Al ₂ O ₃		TiO ₂		
méthode	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	moyenne	σ	
Pp ₁	1,01	0,05	1,05	0,11	1,06	0,17	1,01	0,04	1,00	0,11	1,08	0,17	
Pp ₂	0,98	0,04	0,96	0,08	0,94	0,12	0,97	0,04	0,93	0,10	0,93	0,11	
ERI/G	0,93	0,17	0,90	0,15	1,07	0,23	0,92	0,13	0,90	0,11	1,06	0,30	

Annexe Tableau 17: Performance des méthodes approchées permettant de calculer Cpr pour un paramètre de taille compris entre 1.5 et 10.

La méthode approchée Pp₂ est la plus performante des trois.

➤ Comparaison entre les deux méthodes (n°1 et 2)

Cette comparaison permet d'obtenir les dimensions d'un sphéroïde correspondant à des agrégats en configuration compacte (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) et chaîne (de 2 et 4 particules primaires).

		C_{sca}		C_{pr}	
	Objet équivalent	Sphéroïde équivalent méthode n°1	Sphéroïde équivalent méthode n°2	Sphéroïde équivalent méthode n°1	Sphéroïde équivalent méthode n°2
SiO ₂	erreur moyenne	3,8%	3,7%	15,0%	14,8%
	écart type	3,3%	3,2%	14,6%	12,1%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	6,1%	4,0%	15,2%	13,2%
	écart type	4,7%	2,6%	13,9%	11,4%
TiO ₂	erreur moyenne	10,1%	8,1%	10,5%	8,6%
	écart type	8,2%	7,6%	8,3%	8,1%

Annexe Tableau 18: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration compacte (de 2, 4, 8 et 16 particules primaires) pour $\alpha \in [0,4]$ et les trois matériaux (SiO₂, Al₂O₃, TiO₂)

		C_{sca}		C_{pr}	
	Objet équivalent	Sphéroïde équivalent méthode n°1	Sphéroïde équivalent méthode n°2	Sphéroïde équivalent méthode n°1	Sphéroïde équivalent méthode n°2
SiO ₂	erreur moyenne	8,2%	6,1%	16,1%	14,3%
	écart type	6,1%	4,8%	9,7%	8,5%
Al ₂ O ₃	erreur moyenne	6,7%	5,8%	14,0%	13,0%
	écart type	5,2%	4,2%	8,3%	7,6%
TiO ₂	erreur moyenne	9,1%	10,5%	12,5%	14,6%
	écart type	5,7%	5,6%	8,6%	9,8%

Annexe Tableau 19: C_{sca} et C_{pr} pour un agrégat en configuration chaîne (de 2 et 4 particules primaires) pour $\alpha \in [0,2]$ et les trois matériaux (SiO₂, Al₂O₃, TiO₂).

➤ Dimension du sphéroïde équivalent (méthode n°2):

configuration	agrégat			
	Nombre de particule primaire	Type	a	b
Chaîne	2	oblong	2,00	1,08
	4	oblong	4,00	1,18
	8	oblong	8,00	1,31
	16	oblong	16,00	1,50
compacte	4	sphère	1,72	1,72
	8	oblong	2,41	2,18
	16	oblong	3,57	2,65
Plan	4	aplatis	1,00	2,36
	16	aplatis	1,00	5,37
	64	aplatis	1,00	12,00

Annexe Tableau 20: Valeurs des longueurs des demi-axes du sphéroïde équivalent pour chaque agrégat avec la méthode n°2.

➤ BPCA et BCCA

• Indice de réfraction réel

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40
0,066	0,99	0,99	0,99	1,00	1,02	0,96	0,95	0,95	0,95	0,97	0,94	0,94	0,94	0,93	0,95
0,264	1,04	1,11	1,15	1,24	1,39	1,01	1,11	1,11	1,20	1,28	0,99	1,04	1,07	1,19	1,26
0,529	1,07	1,24	1,24	1,32	1,30	1,05	1,19	1,19	1,21	1,21	0,97	1,05	1,07	1,07	1,13
0,925	1,10	1,12	1,12	1,19	1,15	1,06	1,03	1,06	1,07	1,02	0,98	0,95	0,93	0,93	0,91
1,322	1,04	1,10	1,10	1,14	1,15	1,00	0,99	0,99	1,00	0,98	0,84	0,89	0,90	0,90	0,93
2,644	0,97	1,01	1,02	1,02	1,03	0,91	0,94	0,97	0,99	1,04	1,05	0,79	0,80	0,65	0,52
5,288	0,95	0,98	0,99	0,99	1,01	1,01	0,97	1,00	0,90	0,83	1,06	0,91	0,80	0,72	0,60

Annexe Tableau 21: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction réel.

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40
0,066	0,99	0,99	0,99	1,01	1,04	0,96	0,95	0,96	0,96	0,99	0,94	0,94	0,94	0,94	0,97
0,264	1,06	1,17	1,24	1,39	1,62	1,03	1,17	1,19	1,36	1,49	1,01	1,10	1,14	1,31	1,44
0,529	1,17	1,49	1,43	1,49	1,01	1,11	1,33	1,36	1,26	0,94	1,02	1,11	1,11	1,00	1,02
0,925	1,40	1,12	1,07	1,09	0,78	1,19	0,98	1,03	0,98	0,71	0,96	1,09	0,99	0,81	0,62
1,322	1,05	1,16	1,08	0,93	0,87	1,03	0,99	0,91	0,87	0,76	1,17	1,13	1,11	0,95	0,87
2,644	1,03	0,95	0,89	0,83	0,78	0,82	0,77	0,77	0,71	0,67	1,04	0,85	0,90	0,82	0,71
5,288	0,87	0,77	0,73	0,67	0,65	0,83	0,75	0,72	0,68	0,67	1,24	0,79	0,77	0,78	0,68

Annexe Tableau 22: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction réel.

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40
0,066	0,99	0,99	1,00	1,01	1,03	0,95	0,94	0,95	0,96	0,98	0,94	0,92	0,92	0,92	0,95
0,264	1,05	1,15	1,20	1,10	1,72	1,00	1,11	1,16	1,06	1,65	0,98	1,06	1,15	0,75	1,59
0,529	1,09	1,23	1,30	1,34	1,41	1,04	1,15	1,22	1,23	1,32	0,98	1,00	1,09	1,10	1,15
0,925	1,15	1,17	1,18	1,27	1,32	1,02	1,05	1,09	1,12	1,15	0,96	0,99	0,93	0,93	0,91
1,322	1,02	1,11	1,13	1,14	1,21	1,00	0,95	0,99	1,01	1,04	0,84	0,89	0,87	0,88	0,89
2,644	0,97	1,06	1,00	1,03	1,10	0,91	1,01	0,97	1,01	1,05	1,03	1,00	0,84	0,64	0,45
5,288	0,93	0,96	1,01	1,03	1,00	1,02	1,04	0,95	0,88	1,00	1,05	1,01	0,88	0,80	1,00

Annexe Tableau 23: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction réel.

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40
0,066	0,99	1,00	1,00	1,03	1,06	0,95	0,95	0,96	0,97	1,00	0,94	0,92	0,93	0,93	0,97
0,264	1,08	1,23	1,33	1,65	2,51	1,03	1,21	1,28	1,57	2,40	1,00	1,14	1,27	1,47	2,21
0,529	1,25	1,45	1,56	1,52	1,04	1,16	1,38	1,42	1,29	0,98	1,06	1,08	1,17	0,97	0,89
0,925	1,56	1,28	1,17	1,22	0,86	1,17	1,04	1,07	1,07	0,76	0,88	1,01	0,95	0,78	0,60
1,322	0,99	1,12	1,02	0,93	0,79	1,00	0,96	0,89	0,88	0,73	1,12	1,09	1,02	0,91	0,80
2,644	1,01	0,97	0,86	0,82	0,81	0,78	0,77	0,73	0,70	0,67	0,97	0,84	0,82	0,79	0,73
5,288	0,84	0,75	0,72	0,67	4,04	0,81	0,69	0,68	0,63	3,72	1,17	1,07	0,88	0,94	2,62

Annexe Tableau 24: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction réel.

- Indice de réfraction complexe

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40
0,066	0,98	0,98	0,98	0,99	1,01	0,96	0,95	0,95	0,95	0,96	0,95	0,94	0,93	0,94	0,94
0,264	1,03	1,12	1,17	1,21	1,40	1,00	1,07	1,13	1,17	1,34	0,99	1,05	1,09	1,14	1,30
0,529	1,06	1,20	1,21	1,28	1,30	1,04	1,16	1,16	1,19	1,24	0,99	1,08	1,05	1,10	1,18
0,925	1,09	1,11	1,12	1,15	1,16	1,01	1,03	1,05	1,06	1,05	0,99	0,96	0,92	0,93	0,92
1,322	1,04	1,09	1,08	1,11	1,14	0,99	1,00	1,01	1,02	1,04	0,88	0,93	0,95	0,99	1,01
2,644	1,01	1,04	1,04	1,06	1,08	0,99	1,03	1,04	1,05	1,06	1,03	0,88	0,90	0,65	0,55
5,288	1,02	1,04	1,04	1,05	1,07	1,02	0,97	0,97	0,86	0,71	1,09	0,98	0,96	0,79	0,66

Annexe Tableau 25: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction complexe.

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40	4	8	10	16	40
0,066	0,98	0,98	0,98	0,98	0,97	0,97	0,95	0,95	0,95	0,94	1,01	0,99	0,98	0,99	0,98
0,264	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,97	0,97	0,97	0,99	1,03	1,00	1,04	1,06	1,12	1,28
0,529	0,91	0,92	0,90	0,94	0,94	0,93	0,97	0,94	0,97	0,94	0,99	1,07	0,99	1,00	1,04
0,925	0,94	0,92	0,91	0,90	0,87	0,91	0,86	0,84	0,84	0,77	0,87	0,84	0,75	0,70	0,59
1,322	0,95	0,94	0,93	0,92	0,89	0,87	0,81	0,78	0,77	0,72	0,81	0,72	0,69	0,65	0,57
2,644	0,94	0,92	0,91	0,90	0,87	0,82	0,78	0,75	0,74	0,70	0,82	0,71	0,69	0,64	0,57
5,288	0,95	0,92	0,91	0,89	0,81	0,87	0,82	0,80	0,79	0,69	0,91	0,82	0,80	0,77	0,63

Annexe Tableau 26: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 8, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BPCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction complexe.

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40
0,066	0,98	0,99	1,00	0,99	0,80	0,95	0,95	0,95	0,95	0,96	0,95	0,90	0,92	0,75	0,94
0,264	1,05	1,07	1,24	1,20	1,02	1,02	1,03	1,20	1,17	1,34	0,97	1,02	1,15	0,93	1,30
0,529	1,08	1,21	1,25	1,28	0,97	1,05	1,19	1,16	1,19	1,24	0,95	1,14	0,98	0,89	1,18
0,925	1,12	1,12	1,16	1,13	0,88	1,02	1,05	1,07	1,06	1,05	0,96	0,95	0,90	0,80	0,92
1,322	1,03	1,09	1,10	1,11	0,91	1,00	1,04	1,00	1,02	1,04	0,90	0,96	0,95	0,97	1,01
2,644	1,03	1,05	1,06	1,06	1,16	1,01	1,03	1,04	1,05	1,06	1,07	1,05	0,88	0,86	0,55
5,288	1,02	1,04	1,05	1,05	1,07	1,00	0,99	0,99	0,86	0,71	1,11	1,03	0,99	1,80	0,66

Annexe Tableau 27: $\langle R_m \rangle$ pour C_{sca} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction complexe.

α	SiO ₂					Al ₂ O ₃					TiO ₂				
	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40	4	7	10	16	40
0,066	0,98	0,97	0,97	0,98	0,97	0,96	0,95	0,94	0,95	0,94	1,00	0,95	0,97	0,99	0,98
0,264	0,98	0,98	0,96	0,98	0,98	0,97	0,97	0,96	0,99	1,03	0,98	1,02	1,07	1,12	1,28
0,529	0,88	0,95	0,81	0,94	0,94	0,91	1,01	0,84	0,97	0,94	0,94	1,16	0,86	1,00	1,04
0,925	0,93	0,91	0,91	0,90	0,87	0,90	0,83	0,83	0,84	0,77	0,80	0,74	0,70	0,70	0,59
1,322	0,95	0,94	0,92	0,92	0,89	0,85	0,84	0,76	0,77	0,72	0,77	0,76	0,64	0,65	0,57
2,644	0,94	0,92	0,90	0,90	0,87	0,81	0,75	0,73	0,74	0,70	0,78	0,64	0,62	0,64	0,57
5,288	0,95	0,91	0,90	0,89	0,81	0,84	0,78	0,78	0,79	0,69	0,91	0,81	0,77	0,77	0,63

Annexe Tableau 28: $\langle R_m \rangle$ pour C_{pr} d'agrégats (de 4, 7, 10, 16 ou 40 particules primaires) construits suivant le mécanisme BCCA pour des matériaux (SiO₂, Al₂O₃ et TiO₂) ayant un indice de réfraction complexe.

Bibliographie

- Abramoowitz, M. and I. A. Stegun (1965). Handbook of mathematical functions, Dover Publications.
- Akkermans, G., P. E. Wolf, et al. (1988). Journal de Physique de France **49**: 77.
- Asano, S. (1979). "Light scattering properties of spheroidal particles." Applied optics **18**(5): 712-723.
- Asano, S. and G. Yamamoto (1975). "Light scattering by spheroidal particle." Applied optics **14**(1): 29-49.
- Auger, J.-C., R. G. Barrera, et al. (2002). "Scattering efficiency of clusters composed by aggregated spheres." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **79-80**: 521-531.
- Auger, J.-C. and B. Stout (2003). "A recursive centered T-matrix algorithm to solve the multiple scattering equation: numerical validation." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **79-80**: 533-547.
- Auger, J.-C., B. Stout, et al. (2005). "Scattering efficiency of aggregated clusters of spheres: dependence on configuration and composition." Journal of optical society of america **22**(12): 2700-2708.
- Berry, M. V. and I. C. Percival (1986). "Optics of fractal clusters such as smoke." Optica Acta **33**(5): 577-591.
- Berthier, S. (1993). Optique des milieux composites, Polytechnica.
- Bohren, C. F. and D. R. Huffman (1998). Absorption and scattering of light by small particles.
- Brochette, P. (TI,J2150). Emulsification:Elaboration et étude des émulsions. Techniques de l'ingénieur: 1-18.
- Bruning, J. H. and Y. T. Lo (1971). "Multiple scattering of EM waves by spheres Part I- Multipole expansion and ray-optical solutions." IEEE Transactions on antennas and propagation **ap-19**(3): 378-390.

- Chatelet, J. (TI ,E4410). Systèmes optroniques semi-actifs. Application du laser à la granulométrie. Techniques de l'ingénieur. **E4 410**: 1-6.
- Chylek, P. and J. D. Klett (1991). "Absorption and scattering of electromagnetic radiation by prismatic columns: anomalous diffraction approximation." Journal of optical society of america **8**: 274-281.
- Coccioli, R., T. Itoh, et al. (1996). "Finite elements methods in microwaves: a selected bibliography." Antennas Propag Mag **38**: 34-48.
- Curzan, O. R. (1961). Translational addition theorems for spherical vector wave functions. **XX**: 33-40.
- Draine, B. T. and P. J. Flatau (1994). "Discrete-dipole approximation for scattering calculations." Journal of optical society of america **11**(4): 1491-1499.
- Farafonov, V. G., V. B. Il'in, et al. (1999). "A new solution of the light scattering problem for axisymmetric particles." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **63**: 205-215.
- G. J. Streekstra, A. G. Hoekstra, et al. (1994). "Anomalous diffraction by arbitrarily oriented ellipsoids: applications in ektacytometry." Applied optics **33**: 7288-7296.
- Gmachowski, L. (1996). "Hydrodynamics of aggregated media." Journal of colloid and interface science **178**: 80-86.
- Goncharenko, A. V., V. Z. Lozovski, et al. (2000). "Lichtenecker's equation: applicability and limitations." Optics Communications **174**: 19-32.
- Gruy, F. (2001). "Formation of small silica aggregates by turbulent aggregation." Journal of colloid and interface science **237**: 28-39.
- Hackley, V. A. and C. F. Ferraris (2001). The use of nomenclature in dispersion science and technology, NIST recommended particle guide.
- Harrington, R. F. (1968). Field computation by moment methods. New York: Macmillan.
- Hovenier, J. W., K. Lumme, et al. (1996). "Computations of scattering matrices of four types of non-spherules using diverse methods." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **55**(6): 695-705.

- Hulst, H. C. v. d. (1981). Light scattering by small particles, Dover publications, Inc. New York.
- Jillavenkatesa, A., S. J. Dapkunas, et al. (2001). Particle size characterization.
- Jones, A. R. (1999). "Light scattering for particle characterization." Progress in energy and combustion science **25**: 1-53.
- Kahnert, F. M. (2003). "Numerical methods in electromagnetic scattering theory." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **79**(80): 775-824.
- Kätzel, U. (2003). Studying particle clusters with optical particle measurement techniques. Diploma Thesis, Ecole des Mines de Saint-Etienne, Technical University of Dresden.
- Khlebtsov, N. G. (1996). "Spectroturbidimetry of fractal clusters: test of density correlation function cutoff." Applied optics **35**(21): 4261-4270.
- Kolokolova, L. and B. A. S. Gustafson (2001). "Scattering by inhomogeneous particles: microwave analog experiments and comparison to effective medium theories." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **70**: 611-625.
- Liu, C.-L. (1998). "Validity of anomalous diffraction approximation in m-X domain." Atmospheric Research **49**: 81-86.
- Liu, Y., P. Arnott, et al. (1998). "Anomalous diffraction theory for arbitrarily oriented finite circular cylinders and comparison with exact T-matrix results." Applied optics **37**(21): 5019-5030.
- Looyenga, H. (1965). "Dielectric constants of heterogeneous mixtures." Physica **31**: 401-406.
- Mackowski, D. W. (1991). Analysis of radiative scattering for multiple sphere configurations.
- Mallet, P., C. A. Guérin, et al. (2005). "Maxwell-Garnett mixing rule in the presence of multiple scattering: Derivation and accuracy." physical review **72**(B): 014205-1-9.
- Mishchenko, M. I., D. W. Mackowski, et al. (1995). "Scattering of light by bispheres with touching and separated components." Applied optics **34**(21): 4589-4599.

- Mishchenko, M. I., L. D. Travis, et al. (2004). Scattering, absorption, and emission of light by small particles.
- Mishchenko, M. I., G. Videen, et al. (2004). "T-matrix theory of electromagnetic scattering by particles and its applications: a comprehensive reference database." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **88**: 357-406.
- Priou, A. (TI,AF3371). Modélisation des matériaux composites. Techniques de l'ingénieur. AF 3 371.
- Quinten, M., R. Friehmelt, et al. (2000). "Sizing of aggregates of spheres by a white-light optical particle counter with 90° scattering angle." Journal of Aerosol Science **32**: 63-72.
- Quirantes, A., F. Arroyo, et al. (2001). "Multiple light scattering by spherical particle systems and its dependence on concentration; a T-matrix study." Journal of colloid and interface science **240**: 78-82.
- Saad, Y. (2000). Iterative methods for sparse linear systems.
- Stratton, J. A. (1941). Electromagnetic Theory. New York, McGraw-Hill Book Co.
- Sun, W. and Q. Fu (1999). "Anomalous diffraction theory for arbitrarily oriented hexagonal crystals." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **63**: 727-737.
- Sun, W. and Q. Fu (2001). "Anomalous diffraction theory for randomly oriented nonspherical particles: a comparison between original and simplified solutions." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **70**: 737-747.
- Videen, G. and P. Chylek (1998). "Anomalous diffraction approximation limits." Atmospheric Research **49**: 77-80.
- Voshchinnikov, N. V. and V. G. Farafonov (1992). "Optical properties of spheroidal particles." Astrophysics and space science **204**: 19-86.
- Wiscombe, W. J. (1980). "Improved Mie scattering algorithms." Applied optics **19**(9): 1505-1509.
- Wriedt, T. (1998). "A review of elastic light scattering theories." Part. Part. Syst. Charact **15**: 67-74.

- Xu, Y.-l. (1995). "Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres." Applied optics **34**(21): 4573-4588.
- Xu, Y.-L. (1996). "Calculation of the addition coefficients in electromagnetic multisphere-scattering theory." Journal of computational physics **127**: 285-298.
- Xu, Y.-l. (1997). "Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres: far field." Applied optics **36**(36): 9496-9508.
- Xu, Y.-l. (1997). "Fast evaluation of gaunt coefficients: recursive approach." Journal of computational and applied mathematics **85**: 53-65.
- Xu, Y.-l. (1998). "Efficient evaluation of vector translation coefficients in multiparticle light-scattering theories." Journal of computational physics **139**: 137-165.
- Xu, Y.-l. (1998). "Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres: asymmetry parameter." Physics letters A **249**: 30-36.
- Xu, Y.-l. (2003). "Radiative scattering properties of an ensemble of variously shaped small particles." physical review E **67**(046620): 1-9.
- Xu, Y.-l. and B. A. S. Gustafson (1997). "Experimental and theoretical results of light scattering by aggregates of spheres." Applied optics **36**(30): 8026-8030.
- Xu, Y.-l. and B. A. S. Gustafson (2001). "A generalized multiparticle Mie-solution: further experimental verification." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **70**: 395-419.
- Xu, Y.-l. and N. G. Khlebtsov (2003). "Orientation-averaging radiative properties of an arbitrary configuration of scatterers." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **79-80**: 1121-1137.
- Yang, P. and K. Liou (2000). Finite difference time domain method for light scattering by nonspherical and inhomogeneous particles. In Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements, and Applications, eds. M. I. Mishchenko, J. W. Hovenier, and L. D. Travis., Academic Press, San Diego.
- Yang, P., Z. Zhang, et al. (2004). "A new look at anomalous diffraction theory (ADT): Algorithm in cumulative projected-area distribution domain and modified ADT." Journal of quantitative spectroscopy & radiative transfer **89**: 421-442.

**Ecole Nationale Supérieure des Mines
de Saint-Étienne**

N° d'ordre : 425 GP

Sandra Jacquier

Approximated methods for the optical properties of spherical non-absorbent aggregated particles.

Process engineering

Keywords: granulometry, scattering light, radiation pressure, approximations, Anomalous Diffraction, Effective Refractive Index

Abstract:

Many industrial processes involve solid-liquid suspensions (i.e.:paintings). These suspensions, initially made up of solid primary particles, contain many aggregates which modify their properties of use. The characterization methods of these suspensions use the scattered light (Mie theory). However, the Mie theory (1908) is seldom applicable to the practical problems since the scattering object must be a sphere. The traditional granulometers which use this theory do not make it possible to measure the aggregates. An extension of the latter to the aggregates, was given by Xu (1995-2003): GMM (Generalized Multiparticle Mie solution). But the computing times of the optical properties via this exact theory do not make it possible to consider its use in real time in the immediate future. The PhD subject was thus directed towards the search of approximated methods for the optical properties of spherical non-absorbent aggregated spherical particles.

Initially, the study of the parameters influencing, scattering (C_{sca}) and radiation pressure (C_{pr}) cross sections of aggregates obtained with the exact method, revealed that:

- various aggregate configurations, following its form or the number of primary particles which it contains, are perfectly discernible,
- the number of primary particles is the relevant parameter in the case of the small size parameters α ($\alpha \rightarrow 0, C_{Xu,N} \propto N^2 C_{Mie,1}$)
- there exists, for an aggregate made up of a given number of primary particles, two extreme configurations (linear and compact) between which the cross sections of the others evolve. Thereafter, it was evaluated with respect to the exact method, seven approximated methods (selected according to the preceding remarks) making it possible to obtain the scattering cross section in a short computation time.
 - the methods assimilating the aggregate to a compact sphere (CS) or porous (PS) are inappropriate
 - the methods using a fractal dimension are as for them not very conclusive on aggregates containing a low number of primary particles.
 - the PBK (Percival-Berry-Khlebtsov) method is valid for $0 < \alpha < 2$ with an error which increases with the material refractive index.
 - the DA (Anomalous Diffraction) method is correct for $2 < \alpha < 10$ and is less sensitive to the refractive index increase.
 - the ERI (Effective Refractive Index) method is the approximated method being able to be efficient on the whole size parameters and was the subject of a complementary study (correction function, object equivalent shape).

**Ecole Nationale Supérieure des Mines
de Saint-Étienne**

N° d'ordre : 425 GP

Sandra Jacquier

Méthodes approchées pour les propriétés optiques d'agrégats de particules sphériques non absorbantes

Génie des procédés

Mots clefs : granulométrie, diffusion de la lumière, pression de radiation, approximations, Diffraction Anormale, Indice de Réfraction Effectif

Résumé :

De nombreux processus industriels mettent en œuvre des suspensions solides-liquides (eg : les peintures). Ces suspensions, constituées initialement de particules primaires solides, contiennent de nombreux agrégats modifiant leurs propriétés d'usage. Les méthodes de caractérisation de ces suspensions font intervenir la diffusion de la lumière (théorie de Mie). Or, la théorie de Mie (1908) est rarement applicable aux problèmes pratiques puisque l'objet diffusant doit être une sphère. Les granulomètres traditionnels qui utilisent cette théorie, ne permettent pas de mesurer les agrégats. Une extension de cette dernière, aux agrégats, a été donnée par Xu (1995-2003) : GMM (Generalized Multiparticle Mie solution). Mais les temps de calcul des propriétés optiques via cette théorie (exacte) ne permettent pas d'envisager dans l'immédiat une utilisation en temps réel. Ce sujet de thèse s'est donc orienté sur la recherche de méthodes approchées pour les propriétés optiques d'agrégats de particules sphériques non absorbantes.

Dans un premier temps, l'étude des paramètres influençant les sections efficaces de diffusion (C_{sca}) et de radiation de pression (C_{pr}) d'agrégats obtenues avec la méthode exacte, a révélé:

- que les différentes configurations d'un agrégat suivant sa forme ou le nombre de particules primaires qu'il contient sont parfaitement discernables,
- que le nombre de particules primaires est le paramètre pertinent dans le cas des faibles paramètres de taille α ($\alpha \rightarrow 0, C_{Xu,N} \propto N^2 C_{Mie,1}$),
- qu'il existe, pour un agrégat constitué d'un nombre donné de particules primaires, deux configurations extrêmes (chaîne et compacte) entre lesquelles les sections efficaces des autres évoluent.

Par la suite, il a été évalué vis-à-vis de la méthode exacte, sept méthodes approchées (choisies en fonction des remarques précédentes) permettant d'obtenir la section efficace de diffusion :

- les méthodes assimilant l'agrégat à une sphère compacte (CS) ou creuse (SP) sont inappropriées
- les méthodes utilisant une dimension fractale sont quant à elles peu concluantes sur des agrégats contenant un faible nombre de particules primaires.
- la méthode PBK (Percival-Berry-Khlebtsov) est valable pour $0 < \alpha < 2$ avec une erreur qui augmente avec l'indice du matériau.
- la méthode DA (ou DAr, Diffraction Anormale) est correcte pour $2 < \alpha < 10$ et est moins sensible à l'augmentation de l'indice de réfraction.
- la méthode IRE (Indice de Réfraction Effectif), est la méthode approchée pouvant être envisagée sur l'ensemble des paramètres de taille et a fait l'objet d'une étude complémentaire (fonction de correction, forme de l'objet équivalent).