



**HAL**  
open science

# Approche multiparamètre de l'analyse du champ de speckle et applications

Christelle Abou Nader

► **To cite this version:**

Christelle Abou Nader. Approche multiparamètre de l'analyse du champ de speckle et applications. Optique [physics.optics]. Université de Bretagne occidentale - Brest; Université Saint-Joseph (Beirut), 2016. Français. NNT: 2016BRES0040 . tel-01478785

**HAL Id: tel-01478785**

**<https://theses.hal.science/tel-01478785v1>**

Submitted on 28 Feb 2017

**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.

**UBO**

université de bretagne  
occidentale



**UNIVERSITE  
BRETAGNE  
LOIRE**



**THÈSE / UNIVERSITÉ DE BRETAGNE OCCIDENTALE**

*sous le sceau de l'Université Bretagne Loire*

**UNIVERSITE SAINT-JOSEPH**

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE BRETAGNE OCCIDENTALE**

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE SAINT-JOSEPH**

*Mention : Physique*

**Ecole doctorale SICMA**

présentée par

**Christelle Abou Nader**

Préparée au Laboratoire de Spectrométrie et  
Optique Laser de l'Université de Bretagne  
Occidentale et au Laboratoire de  
Biophotonique de l'Université Saint-Joseph

# Approche multiparamètre de l'analyse du champ de speckle et applications

**Thèse soutenue le 30 Juin 2016**

devant le jury composé de :

**François GOUDAIL**

Pr., Institut Optique Graduate School / *rapporteur*

**Xavier ORLIK**

Dr., ONERA / *rapporteur*

**Malek TABBAL**

Pr., American University of Beirut / *examineur*

**Nicolas LOUKA**

Pr., Université Saint-Joseph / *examineur*

**Bernard LE JEUNE**

Pr., Université de Bretagne Occidentale / *examineur*

**Fabrice PELLEN**

Dr., Université de Bretagne Occidentale / *examineur*

**Guy LE BRUN**

Dr., Université de Bretagne Occidentale / *Directeur de thèse (France)*

**Marie ABBOUD**

Dr., Université Saint-Joseph / *Directrice de thèse (Liban)*

# Remerciements

Ce travail a été réalisé dans le cadre d'une cotutelle entre le Laboratoire de Spectrométrie et Optique Laser (LSOL) à l'Université de Bretagne Occidentale de Brest (UBO) et le Laboratoire de Biophotonique à l'Université Saint-Joseph de Beyrouth (USJ). L'aboutissement de cette thèse est le résultat de la collaboration entre les deux équipes, Libanaise et Française.

Je tiens à remercier les organismes qui ont financé ce travail : **l'école doctorale SICMA, l'Institut Français, le conseil de la recherche de l'USJ et le programme CEDRE**. Je remercie le Pr. **François Goudail** et le Dr. **Xavier Orilk** d'avoir accepté de rapporter mon travail de thèse. Je voudrais également remercier le Pr. **Nicolas Louka** et le Pr. **Malek Tabbal** de m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail.

J'exprime ma plus profonde gratitude à **Marie Abboud**, ma directrice de thèse au Liban, pour la confiance qu'elle m'a accordée pendant ces trois années, pour son soutien, ses conseils, son amitié, son écoute, son enthousiasme, son encouragement, et les milles autres qualités qu'elle possède. Merci Marie d'avoir été pour moi bien plus qu'une tutrice, un modèle que j'admire tant.

Je remercie mon directeur de thèse en France **Guy Le Brun** pour son soutien, ses conseils, son amitié, son humour, et sa confiance. Merci d'avoir toujours su simplifier les gros problèmes qu'on rencontrait, et d'avoir toujours été un support pour moi.

Je souhaite remercier **Fabrice Pellen**, mon co-directeur de thèse, d'avoir toujours été à l'écoute, même pendant les périodes les plus chargées. Merci pour toutes ces discussions scientifiques qu'on a eu, merci de m'avoir appris à toujours douter de mon travail mais jamais de mon potentiel. Ton encouragement, ton amitié et ton soutien m'ont continuellement poussé vers l'avant.

Je remercie **Bernard Le Jeune**, le directeur du LSOL, de m'avoir accueilli au sein de son Laboratoire, toujours avec la bonne humeur et le sens de l'humour. Merci Bernard d'avoir été un dernier repère à consulter pour trouver des solutions à tous les problèmes.

Durant ces trois années j'ai eu la chance de collaborer avec plusieurs équipes de recherche à l'USJ et à l'UBO, ce qui a largement contribué à enrichir ce travail. Je tiens donc à remercier toutes les équipes en Odontologie, hyper-fréquences, chimie, biologie, rhéologie et imagerie optique, plus particulièrement **Valérie Chevalier, Benjamin Potelon, Cédric Quendo, Charbel Afif, André El Khoury, Mireille Kallasy, Philippe roquefort** et **Philippe Elias**. Je remercie également **Gaël Le Roux** pour toute les pièces qu'il me fabriquait, toujours avec patience.

Mes remerciements vont également à **Rana Nassif** qui m'a initié à la recherche pendant mon stage de M1, et qui a été pour moi une amie et une tutrice, à **Jacques Langlois** pour son accueil et son support continu à Brest, à **Hadi Loutfi, Rassoul Mansour** et **Aisha El Sheikh** pour leur aide dans le cadre de leurs stages.

A mes amis à Brest je dis merci, merci d'avoir été ma famille à l'étranger. Merci d'avoir rendu Brest un endroit que j'aime tant, un lieu auquel je sens que j'appartiens. **Rania, Grèce, Léa, Aymeric, Christophe, Manon, Gwendal, Jean, Patrick, Vincent, Nour, David** et tous les autres, vous étiez la raison pour laquelle j'avais toujours les larmes aux yeux à chaque fois que je partais de Brest.

A mes amis au Liban, **Thérèzia, Pascale, Jessica, Marwan, Rasha, et Rachelle** merci d'avoir toujours gardé cette amitié tant précieuse à mes yeux malgré la distance qui nous séparait. **Rasha, Rachelle, Stéphanie, Zeinoun, Léa, Jad, Sally, et Sérèna**, merci pour tous les moments partagés à l'USJ, tous les fous rires, et toutes les pauses café !!

A ma chère famille, **Nader, Mirna, Carine, Charbel** et **Anthony**, ce que j'ai de plus précieux, merci pour tous vos encouragements, votre patience, votre amour et votre présence à mes côtés. Si j'en suis là aujourd'hui, c'est grâce à vous.

Finalement, je te remercie **Elie** pour ta patience, ton support, ta présence et ton amour inconditionnel.

# Table des matières

Table des matières .....	1
Table des figures .....	5
Introduction .....	13
I. Chapitre 1 - Contexte général et aspects théoriques.....	17
I.1- Interaction de la lumière avec un milieu matériel.....	18
I.1.1- Régimes de diffusion .....	18
I.1.2- Propriétés optiques des milieux diffusants.....	22
I.2- Polarisation de la lumière .....	29
I.2.1- Ellipse de polarisation .....	30
I.2.2- Formalisme de Jones .....	32
I.2.3- Formalisme de Stokes-Mueller .....	33
I.3- Analyse spatio-temporelle du champ de speckle .....	36
I.3.1- Analyse spatiale.....	37
I.3.2- Analyse temporelle.....	48
I.3.3- Speckle polarisé.....	58
II. Chapitre 2 – Caractérisation de milieux diffusants par speckle polarisé .....	61
II.1- Contexte .....	63
II.2- Montage expérimental .....	66
II.2.1- Echantillons biomimétiques .....	66
II.2.2- Montage expérimental des mesures de speckle .....	68
II.3- Simulation numérique par méthode Monte Carlo .....	70

II.3.1-	Méthode des plans méridiens.....	71
II.3.2-	Démarche de la simulation.....	72
II.3.3-	Calcul des degrés de polarisation simulés.....	79
II.4-	Etude spatiale polarimétrique .....	79
II.4.1-	Effet de la distribution de taille des particules (échantillons biomimétiques) .....	79
II.4.2-	Effet de la variation du coefficient d'absorption (échantillons biomimétiques) .....	84
II.5-	Etude dynamique .....	89
III.	Chapitre 3 – Estimation de la dynamique temporelle dans des milieux visqueux.....	92
III.1-	Contexte .....	93
III.2-	Montage expérimental .....	95
III.2.1-	Description des échantillons biomimétiques .....	95
III.2.1-	Description du montage expérimental .....	95
III.3-	Influence de paramètres intrinsèques et extrinsèques des échantillons sur l'estimation de la viscosité .....	97
III.3.1-	Effet de la constitution du milieu .....	98
III.3.2-	Effet de la température .....	105
III.4-	Mesures relatives de faibles viscosités en milieux visqueux mono-dispersés .....	110
III.4.1-	Mesures mécaniques de la viscosité .....	111
III.4.2-	Etude par corrélation temporelle.....	112
III.4.3-	Etude spatiale via le contraste .....	114
III.4.4-	Conclusion et perspectives.....	117
IV.	Chapitre 4 – Speckle polarisé en odontologie .....	121
IV.1-	Caractéristiques et pathologies des dents humaines.....	122
IV.2-	Détection de phases préliminaires d'érosion dentaire par speckle polarisé .....	124

IV.2.1- Protocole expérimental .....	126
IV.2.2- Suivi par speckle et imagerie structurelle : résultats et interprétations .....	127
IV.3- Suivi du séchage de matériaux de restauration dentaire par analyse du champ de speckle.....	136
IV.3.1- Matériel utilisé .....	137
IV.3.2- Protocole expérimental .....	140
IV.3.3- Résultats et interprétation.....	141
IV.4- Conclusion.....	150
Conclusion et perspectives .....	152
Bibliographie .....	156





## Table des figures

Figure I.1: Schéma illustrant le processus de diffusion .....	22
Figure I.2 Schéma illustrant la probabilité de diffusion .....	24
Figure I.3 Indicatrices de diffusion pour des microbilles de diamètre (a) $0.22 \mu\text{m}$ ( $g=0.3857$ ) et (b) $3 \mu\text{m}$ ( $g=0.8129$ ) en suspension dans de l'eau et éclairées par une lumière rouge de longueur d'onde $0.6328 \mu\text{m}$ .....	27
Figure I.4 Ellipse de polarisation .....	30
Figure I.5 Représentation de différents états de polarisation .....	31
Figure I.6 Oscillations du champ électrique dans le temps pour des <i>DOP</i> variables pour une lumière de polarisation elliptique.....	34
Figure I.7 Champ de speckle généré par un échantillon diffusant .....	36
Figure I.8 Schéma illustrant la formation du speckle objectif .....	40
Figure I.9 Schéma illustrant la formation du speckle subjectif.....	43
Figure I.10 Figure de speckle obtenue dans une géométrie en rétrodiffusion .....	45
Figure I.11 (a) Densité Spectrale de Puissance DSP de l'image de speckle, (b) Fonction d'autocorrélation du speckle .....	46
Figure I.12 Autocovariance normalisée .....	47
Figure I.13 Schéma de la géométrie de mesure de l'image de speckle .....	48
Figure I.14 Variation du contraste en fonction du rapport entre le temps caractéristique et le temps d'exposition pour un régime de diffusion multiple .....	55
Figure I.15 Exemples de THSP pour un matériau de restauration dentaire en cours de séchage. La figure (a) correspond au début du séchage (échantillon actif) et la figure (b) à la fin du séchage (échantillon inerte) .....	56
Figure I.16 Exemples de COM pour un matériau de restauration dentaire en cours de séchage. La figure (a) correspond au début du séchage (échantillon actif) et la figure (b) à la fin du séchage (échantillon inerte) .....	57
Figure I.17 Etats de polarisation des photons émergents d'un milieu diffusant pour un état de polarisation incident linéaire et circulaire .....	58

Figure II.1 Variation du degré de polarisation circulaire durant la maturation d'un lot de poires .....	64
Figure II.2 Images prises en microscopie électronique du cristal parasporal sphérique produit par : a) la souche LEB-D10 b) la souche LEB-H3, et c) la souche LEB-G6.....	64
Figure II.3 Variation du degré de polarisation normalisé $NDOP_L$ en fonction de la taille des cristaux piégés dans une matrice d'agarose pour différentes concentrations [Nassif, 2015] .....	65
Figure II.4 Variation de la taille de grain en polarisation linéaire parallèle en fonction de la taille des cristaux piégés dans une matrice d'agarose pour différentes concentrations .....	66
Figure II.5 Variation de la différence de taille de grain en polarisation linéaire parallèle et croisée en fonction de la taille des cristaux piégés dans une matrice d'agarose pour différentes concentrations .....	66
Figure II.6: Montage expérimental de mesure des coefficients de diffusion et d'absorption .....	67
Figure II.7 Variation de la fraction de lumière transmise à travers des solutions aqueuses de microbilles de polystyrène en fonction de l'épaisseur optique (en cm) des capillaires utilisés ..	68
Figure II.8 Schéma du montage expérimental.....	69
Figure II.9 Schéma de la diffusion de la lumière par un milieu contenant des particules sphériques.....	71
Figure II.10 Géométrie des plans méridiens.....	72
Figure II.11 Variation des degrés de polarisation linéaire et circulaire expérimentaux en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ .....	80
Figure II.12 Variation des degrés de polarisation linéaire et circulaire calculés en simulation Monte Carlo en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans un milieu contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ .....	82
Figure II.13 Variation des tailles de grains horizontales expérimentales pour différentes polarisations en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ .....	83
Figure II.14 Variation de la différence de taille des grains horizontale expérimentale entre les configurations parallèle et croisée mesurées en polarisation linéaire et circulaire en fonction de	

la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ .....	84
Figure II.15 Variation du degré de polarisation linéaire $DOP_L$ expérimental en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ et différents coefficients d'absorption.....	85
Figure II.16 Variation du degré de polarisation linéaire simulé en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ et différents coefficients d'absorption .....	86
Figure II.17 Variation du degré de polarisation circulaire expérimental en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ et différents coefficients d'absorption.....	86
Figure II.18 Variation du degré de polarisation circulaire $DOP_C$ simulé en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ et différents coefficients d'absorption.....	87
Figure II.19 Variation des tailles de grains horizontales $dx$ expérimentales avec différentes polarisations en fonction du coefficient d'absorption pour une solution contenant uniquement des petits diffuseurs.....	89
Figure II.20 Variation de la différence de taille des grains horizontale $\Delta dx_L$ et $\Delta dx_C$ expérimentale entre les configurations parallèle et croisée mesurée en polarisation linéaire et circulaire en fonction du coefficient d'absorption pour une solution contenant uniquement des petits diffuseurs avec un coefficient de diffusion de $30 \text{ cm}^{-1}$ .....	89
Figure II.21 Variation du contraste spatial calculé en polarisation linéaire parallèle en fonction du temps d'exposition de l'image pour des milieux contenant différentes tailles de particules	90
Figure III.1 Schéma du montage expérimental.....	96
Figure III.2 Courbes de corrélation temporelle pour des solutions ayant différentes tailles de diffuseurs en suspension dans de l'eau déionisée à $20^\circ\text{C}$ .....	100
Figure III.3 Variation du temps caractéristique en fonction du rayon des diffuseurs en suspension dans de l'eau dé-ionisée à $20^\circ\text{C}$ .....	100

Figure III.4 Variation du contraste en fonction du diamètre des diffuseurs en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C .....	101
Figure III.5 Variation du coefficient de corrélation en fonction du temps pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C pour différents coefficients de diffusion réduits .....	102
Figure III.6 Variation du temps caractéristique en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C .....	103
Figure III.7 Variation du contraste spatial en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C .....	103
Figure III.8 Variation du coefficient de corrélation en fonction du temps pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C pour différents coefficients de diffusion réduits .....	104
Figure III.9 Variation du temps caractéristique en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C .....	104
Figure III.10 Variation du contraste en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C .....	105
Figure III.11 Variation du coefficient de corrélation en fonction du temps pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ à différentes températures.....	106
Figure III.12 Variation du temps caractéristique en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ .....	107
Figure III.13 Variation du temps caractéristique en fonction du rapport entre la viscosité et de produit de la température par l'indice du milieu au carré, pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ .....	107
Figure III.14 Variation du contraste spatial en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ . .....	108

Figure III.15 Variation du coefficient de corrélation en fonction du temps pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ à différentes températures.....	108
Figure III.16 Variation du temps caractéristique en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ .....	109
Figure III.17 Variation du temps caractéristique en fonction du rapport entre la viscosité et le produit de la température par l'indice du milieu au carré, pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ .....	109
Figure III.18 Variation du contraste en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre 1.53 $\mu\text{m}$ .....	110
Figure III.19 Viscosimètre Contraves Low Shear 30 utilisé pour mesurer la viscosité des solutions étudiées.....	111
Figure III.20 Variation de la viscosité de solutions aqueuses (en mPa.s) en fonction de leur concentration en sucrose (en g/ml) à 20°C.....	112
Figure III.21 Variation du coefficient de corrélation des images de speckle en fonction du temps d'acquisition (en ms).....	113
Figure III.22 Variation du temps caractéristique (en ms) en fonction du rapport entre la viscosité des échantillons (en mPa.s) et le carré de l'indice de réfraction du milieu .....	113
Figure III.23 Variation du contraste spatial des images de speckle en fonction du temps d'exposition $T_{\text{exp}}$ (en ms) pour des solutions ayant différentes concentrations de sucrose et contenant des diffuseurs de diamètre 0.22 $\mu\text{m}$ .....	114
Figure III.24 Variation du contraste des images de speckle en fonction de la viscosité (en mPa.s) pour différents temps d'exposition .....	115
Figure III.25 Variation du contraste théorique et expérimental des images de speckle en fonction du rapport entre le temps caractéristique et le temps d'exposition.....	116
Figure III.26 Variation du temps caractéristique calculé à partir du contraste expérimental des images de speckle en fonction du rapport entre la viscosité et le carré de l'indice du milieu pour différents temps d'exposition.....	117
Figure IV.1 Constitution de la dent humaine.....	122

Figure IV.2 Image d'une dent à la fin de l'étude, après une immersion cumulative de 660 minutes dans une boisson acide.....	126
Figure IV.3 Schéma du montage expérimental .....	127
Figure IV.4 Variation du taux d'extinction $ER$ en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide. Les barres d'erreur correspondent aux écart-types.....	128
Figure IV.5 Variation du $DOP_L$ en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide.....	128
Figure IV.6 Rapport de contraste $CR$ (en %) en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide.....	129
Figure IV.7 Différence de la taille de grains en configurations parallèle et croisée (en $\mu m$ ) en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide.....	130
Figure IV.8 Evolution du coefficient de corrélation pour différentes durées d'exposition cumulées à une boisson acide .....	131
Figure IV.9 Représentation schématique d'une coupe transversale montrant l'imbrication des prismes de l'émail .....	132
Figure IV.10 Image de réflectance d'une dent saine prise en microscopie confocale.....	133
Figure IV.11 Zoom de $80 \mu m \times 80 \mu m$ de la Figure IV.10 avant immersion de la dent dans une boisson acide.....	133
Figure IV.12 Zoom de $80 \mu m \times 80 \mu m$ de la Figure IV.10 après immersion de la dent dans une boisson acide pendant 600 minutes.....	134
Figure IV.13 Coupes 3D d'une zone de $80 \mu m \times 80 \mu m$ de la surface de la dent (1) avant et après immersion dans l'acide pendant (2) 300 et (3) 600 minutes.....	135
Figure IV.14 Image en microscopie confocale d'un GIC avec sa résine de revêtement.....	140
Figure IV.15 Corrélation temporelle des images de speckle pour différents temps après la préparation de la Biodentine™ .....	142
Figure IV.16 Variation du paramètre $S$ pour différents temps après la préparation de la Biodentine™ .....	143
Figure IV.17 Figures de THSP des images de speckle prises à $t=0$ (à gauche) et à $t=160$ minutes (à droite) après la préparation de la Biodentine™ .....	143

Figure IV.18 Variation du contraste de Briers BC en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™ .....	144
Figure IV.19 Variation du moment d'inertie IM en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™ .....	144
Figure IV.20 Variation du contraste spatial des images de speckle en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™ .....	145
Figure IV.21 Variation de la taille des grains de speckle en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™ .....	146
Figure IV.22 Corrélation temporelle des images de speckle pour différents temps après préparation de l'Equia Fil™ .....	146
Figure IV.23 Variation du paramètre $S$ limitée pour différents temps après la préparation de l'Equia Fil™ .....	147
Figure IV.24 Figures de THSP des images de speckle prises à t=0 (à gauche) et à t=260 minutes (à droite) après la préparation de l'Equia Fil™ .....	147
Figure IV.25 Variation du contraste spatial des images de speckle en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™ avec un temps d'exposition des images de 3 ms .....	148
Figure IV.26 Variation de la taille de grain de speckle dx en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™ .....	148
Figure IV.27 Variation du contraste de Briers BC en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™ .....	149
Figure IV.28 Variation du moment d'inertie IM en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™ .....	149





## Introduction

Quand une source de lumière cohérente éclaire un milieu présentant soit une rugosité de surface à l'échelle de la longueur d'onde de la lumière incidente, soit des variations d'indice de réfraction, les ondes diffusées se propagent suivant différents chemins optiques. Les ondelettes ainsi créées, toujours cohérentes, interfèrent entre elles dans un plan d'observation, créant un champ de speckle. Ce champ présente une structure granulaire avec des taches alternativement claires et sombres, représentant les interférences constructives et destructives des ondelettes diffusées. De multiples travaux ont examiné la source et les statistiques de ce champ de speckle afin de réduire l'influence de ce phénomène considéré comme un bruit [Gerritsen, 1968]. D'autres travaux ont, au contraire, démontré le potentiel de l'analyse du champ de speckle comme méthode de caractérisation non-invasive [Briers, 1996] [Carvalho, 2007].

La dynamique intrinsèque des milieux diffusants liquides liée au mouvement Brownien des particules diffusantes, ou encore les fluides en mouvement d'écoulement engendrent des fluctuations de l'intensité du champ de speckle au cours du temps. Exploiter ces fluctuations constitue une méthode non invasive et très sensible pour l'étude de la dynamique des fluides et des matériaux. L'une des premières applications dans ce domaine a été la diffusion dynamique de la lumière (Dynamic Light Scattering DLS), connue également sous le nom de spectroscopie de corrélation de photons (Photon Correlation Spectroscopy PCS), et qui analyse les fluctuations du champ de speckle de polymères en solution [Berne, 2000]. La même méthode appliquée à des milieux plus denses est appelée spectroscopie d'onde diffusée (Diffuse Wave Spectroscopy DWS) [Mackintosh, 1989] [Weitz, 1993]. Ces deux techniques (DLS et DWS) utilisent une moyenne d'ensemble pour analyser les fluctuations d'intensité à l'aide d'un compteur de photons et d'un corrélateur numérique. Ces techniques connaissent des limitations expérimentales, notamment la pureté de l'échantillon étudié, la stabilité du montage expérimental, ainsi que le bruit photonique [Schatzel, 1983].

## Introduction

Depuis une dizaine d'années, de nouvelles méthodologies expérimentales basées sur l'analyse du champ de speckle ont été introduites. Ces techniques s'appuient sur l'utilisation d'une caméra CCD [Konishi, 2002] (Charge-Coupled Device) ou CMOS [Sun, 2015] (Complementary Metal Oxide Semiconductor) permettant de suivre les évolutions du champ de speckle.

L'exploitation de la polarisation de la lumière sert également comme outil de caractérisation, notamment de tissus biologiques. Mais le champ d'application des informations portées par la polarisation est bien plus vaste et s'étend de l'astronomie [Bianchi, 1996], à l'océanographie [Kattawar, 1989], en passant par la microscopie [McCrone, 1987].

Dans ce travail, nous exploitons le champ de speckle généré par une lumière polarisée, pour une investigation des propriétés intrinsèques de milieux diffusants. L'analyse du champ de speckle polarisé est présentée dans un contexte multiparamètre, couplant des informations spatiales et temporelles. La méthodologie que nous avons adoptée exploite le potentiel du speckle polarisé comme technique d'investigation non invasive des tissus et des milieux biologiques, et de suivi en temps réel de réactions chimiques à l'origine de l'évolution de ces milieux. Les potentialités d'application de cette technique dans les domaines médical et industriel sont nombreuses.

Un premier chapitre expose le contexte théorique et les formalismes employés dans le cadre de notre étude. Les propriétés de la lumière ainsi que celles des milieux diffusants sont décrites. Quelques outils théoriques permettant de décrire les interactions de la lumière avec un milieu matériel y sont rappelés. Nous insisterons tout particulièrement sur les liens existant entre la dynamique des milieux et les grandeurs observées. Nous expliquons l'exploitation de la polarisation et de la cohérence d'une lumière générant le speckle polarisé et nous exposons les différentes méthodologies d'extraction d'informations à partir des images de speckle.

Le deuxième chapitre exploite le potentiel de l'imagerie de speckle polarisé pour caractériser des milieux diffusants complexes, en termes de tailles de diffuseurs, de proportions de petits et de gros diffuseurs par rapport à la longueur d'onde incidente et d'absorption du

## Introduction

milieu. Une modélisation numérique par méthode Monte Carlo y est développée pour comparer les résultats expérimentaux aux prédictions des modèles théoriques.

Dans le troisième chapitre, nous présentons deux approches d'analyse de la dynamique de milieux biomimétiques calibrés. L'analyse temporelle d'une série d'images et l'analyse spatiale d'une seule image de speckle sont présentées et comparées dans le but de déterminer la viscosité de fluides ainsi que des variations relatives de ce paramètre. Les perspectives de ces travaux portent notamment sur le diagnostic de pathologies liées aux fluides biologiques.

Les applications du speckle en odontologie sont présentées au dernier chapitre. Nous montrons le potentiel de l'analyse du champ de speckle polarisé pour la détection de phases précoces de l'érosion dentaire induite par une exposition à une boisson acide. Le suivi de la dynamique de réactions chimiques de polymérisation de matériaux d'obturation dentaire est également présenté.



## Chapitre 1 - Contexte général et aspects théoriques

L'imagerie optique des structures et des milieux biologiques constitue depuis une vingtaine d'années une problématique intéressant un grand nombre d'équipes et de plateformes de recherche à travers le monde, compte tenu de la nature non ionisante du rayonnement lumineux, de son caractère non invasif et du coût relativement faible des sources laser. Si, historiquement, les premiers perfectionnements en imagerie optique touchaient la mécanique et les composants optiques des dispositifs, de nos jours, les propriétés de la lumière sont analysées pour révéler des contrastes, et pour exploiter la grande variété d'interactions lumière-matière. Ces méthodes exploitent des propriétés, mesurées de façon indirecte, qui constituent des témoins de la structure ou des propriétés intrinsèques des tissus ou des organes imagés. Malheureusement, l'extraction d'informations à partir d'une lumière diffusée par un milieu biologique n'est pas une tâche facile à effectuer, notamment en raison des phénomènes de diffusion de la lumière ; le chemin suivi par un photon dans un milieu fortement diffusant étant un parcours complexe comprenant des diffusions multiples aléatoires et une perte de mémoire de polarisation complète après plusieurs diffusions [Ghosh, 2011]. Dans de tels milieux, des photons balistiques (peu nombreux), des photons serpentiles, et des photons multidiffusés se propagent. Historiquement, la plupart des techniques d'investigation de milieux denses se focalisaient sur les photons balistiques et serpentiles. C'est par exemple le cas en OCT (Optical Coherence Tomography) où un filtrage important de photons est effectué. D'autres techniques telles que le DOT (Diffuse Optical Tomography) utilisent, au contraire, les photons diffusés.

Avec les développements méthodologiques élaborés dans le cadre de la recherche en imagerie optique, l'utilisation de la lumière comme moyen de diagnostic ou de caractérisation de milieux biologiques est de plus en plus répandue [Manhas, 2009] [Wood, 2010] [Pierangelo, 2011].

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

Dans ce chapitre, les principaux phénomènes résultants de l'interaction de la lumière avec un milieu matériel sont présentés ainsi que les grandeurs physiques mises en jeu. La première partie du chapitre est consacrée aux régimes de diffusion dépendant du milieu interagissant avec la lumière, ainsi qu'aux propriétés optiques des milieux diffusants. Dans la deuxième partie, la polarisation de la lumière et les formalismes utilisés pour la description de l'état de polarisation d'une onde électromagnétique et de son évolution à travers un système optique sont détaillés. Finalement, dans la troisième partie, la méthode optique par analyse du champ de speckle polarisé est exposée. Nous montrerons ainsi que considérer simultanément les phénomènes de diffusion et les propriétés de cohérence et de polarisation de la lumière permet d'extraire plusieurs paramètres pertinents qui peuvent être corrélés aux caractéristiques intrinsèques et/ou exogènes de milieux matériels.

### **I.1- Interaction de la lumière avec un milieu matériel**

Les interactions d'une lumière incidente avec une cible illuminée peuvent prendre différentes formes, allant de la diffusion élastique et inélastique à l'absorption qui contribue à l'atténuation de l'intensité de l'onde par la matière. Le type et l'importance de ces interactions dépend de la longueur d'onde de la lumière, ainsi que de la structure et de la taille des éléments constitutifs du milieu. Dans notre étude, nous nous intéressons principalement aux propriétés de diffusion élastique et d'absorption de la lumière en lien avec la nature complexe de nos échantillons.

Un milieu complexe diffusant ou absorbant la lumière peut être modélisé par un ensemble de caractéristiques macroscopiques qui sont les paramètres optiques du milieu. Ces paramètres déterminent le type et l'intensité de l'interaction avec la lumière.

#### **I.1.1- Régimes de diffusion**

La diffusion élastique peut être considérée comme une redirection de la lumière ayant lieu lorsqu'une onde électromagnétique rencontre une particule ou un obstacle. L'onde électromagnétique interagit avec la particule et modifie les orbites des électrons dans les atomes ou molécules constituant la particule. Cette perturbation ou oscillation du nuage électronique cause une séparation périodique de la charge dans la molécule, qu'on appelle

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

moment dipolaire induit. Le moment dipolaire induit oscillant se manifeste comme une source de radiation électromagnétique, ou lumière diffusée en d'autres termes. La majorité de la lumière diffusée par la particule est émise à la même fréquence que celle de la lumière incidente. Ce processus est appelé diffusion élastique ; les photons sont diffusés sans perte ni gain d'énergie. Les processus de diffusion de Rayleigh et de Mie font partie des processus de diffusion élastique. Les processus de diffusion inélastique, quant à eux, modifient l'énergie des photons et redistribuent l'énergie électromagnétique associée ; les diffusions Brillouin, Raman, et hyper-Rayleigh en font partie. Dans ce manuscrit, nous nous limitons aux processus de diffusion élastique de Rayleigh et de Mie sachant qu'il n'y a pas d'échange d'énergie qui se produit entre les photons et les échantillons que nous considérons.

En optique ondulatoire, Sir Rayleigh (John William Strutt) a proposé une solution de l'équation de Maxwell pour les ondes électromagnétiques en 1871 [Strutt, 1871]. Cette solution venait en réponse à la question : « pourquoi le ciel est bleu? ». La théorie de Rayleigh s'applique dans le cas d'une diffusion par une particule de dimension inférieure à la longueur d'onde incidente [Van De Hulst, 1981].

Une solution rigoureuse du problème de la diffusion donnée quelques années plus tard par Gustav Mie [Mie, 1908], traitant le cas d'une particule sphérique d'indice de réfraction homogène, a inclus le cas où la dimension de la particule est supérieure à la longueur d'onde de la lumière incidente. Bien que la théorie de Mie représente une solution pour les particules sphériques de toutes dimensions, on appelle diffusion de Mie la diffusion essentiellement due à des particules de diamètre comparable ou supérieur à la longueur d'onde de la lumière incidente. La solution des équations de Maxwell proposée par Mie est la première référence à adopter lorsque l'on travaille avec des particules sphériques. Mie est parti du fait que tout rayonnement électromagnétique, notamment la lumière, obéit à l'équation d'onde suivante :

$$\nabla^2\psi + k^2\psi = 0 \quad (1.1)$$

où  $\psi$  est une fonction scalaire, et  $k^2 = \omega^2\epsilon\mu$  avec  $\omega$  la pulsation de l'onde incidente,  $\epsilon$  la permittivité diélectrique, et  $\mu$  la perméabilité magnétique. Cette équation est résolue pour

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

l'intérieur et l'extérieur de la particule de telle sorte que les solutions convergent aux limites de la particule.

Les solutions de Mie pour l'équation d'onde sphérique dans le cas d'une sphère homogène sont les amplitudes de diffusion pour les polarisations parallèles et perpendiculaires au plan de diffusion :

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{a_n(x, m)\pi_n \cos \theta + b_n(x, m)\tau_n \cos \theta\} \quad (1.2)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{b_n(x, m)\pi_n \cos \theta + a_n(x, m)\tau_n \cos \theta\} \quad (1.3)$$

$x$  est le paramètre de taille défini par :

$$x = \frac{\pi \phi n_{milieu}}{\lambda} \quad (1.4)$$

avec  $n_{milieu}$  l'indice de réfraction du milieu où se trouve la particule,  $\phi$  le diamètre de la particule diffusante et  $\lambda$  la longueur d'onde de la lumière incidente dans le vide.  $m$  est l'indice de réfraction complexe [Van de Hulst, 1957] :

$$m = \frac{n_{particule}}{n_{milieu}} \quad (1.5)$$

$a_n$  et  $b_n$  les coefficients de Mie qui dépendent de  $x$  et de  $m$ , et les fonctions  $\pi_n$  et  $\tau_n$  qui dépendent de l'angle de diffusion  $\theta$ , sont donnés par :

$$a_n = \frac{\psi'_n(mx)\psi_n(x) - m\psi_n(mx)\psi'_n(x)}{\psi'_n(mx)\xi_n(x) - m\psi_n(mx)\xi'_n(x)} \quad (1.6)$$

$$b_n = \frac{m\psi'_n(mx)\psi_n(x) - \psi_n(mx)\psi'_n(x)}{m\psi'_n(mx)\xi_n(x) - \psi_n(mx)\xi'_n(x)} \quad (1.7)$$

$$\pi_n(\cos\theta) = \frac{1}{\sin\theta} P'_n(\cos\theta) \quad (1.8)$$

$$\tau_n(\cos\theta) = \frac{d}{d\theta} P'_n(\cos\theta) \quad (1.9)$$

où :



## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

$P'_n$  est la dérivée première du polynôme de Legendre d'ordre  $n$ ,

$\psi_n$  est la fonction Ricatti-Bessel d'ordre  $n$ ,  $\psi'_n$  est sa dérivée première,

$\xi_n$  est la fonction Ricatti-Hankel d'ordre  $n$ ,  $\xi'_n$  est sa dérivée première.

$\psi_n$  et  $\xi_n$  sont liées aux fonctions d'ordre  $n + 1/2$  de Bessel  $J_{n+\frac{1}{2}}(x)$  et de Hankel  $H_{n+\frac{1}{2}}(x)$  par :

$$\psi_n(x) = \left(\frac{\pi x}{2}\right)^{1/2} J_{n+\frac{1}{2}}(x) \quad (I.10)$$

$$\xi_n(x) = \left(\frac{\pi x}{2}\right)^{1/2} H_{n+\frac{1}{2}}(x) \quad (I.11)$$

Avec  $H_n(x)$  la fonction de Hankel d'ordre  $n$  définie par  $H_n = J_n - iY_n(x)$ ,  $J_n$  et  $Y_n$  les fonctions de Bessel de première et de seconde espèce d'ordre  $n$ , respectivement.

La fonction Ricatti-Bessel de seconde espèce  $\chi_n$  est définie par :

$$\chi_n(x) = -\left(\frac{\pi x}{2}\right)^{1/2} Y_{n+\frac{1}{2}}(x) \quad (I.12)$$

$\xi_n$  est exprimée en fonction de  $\chi_n$  comme :

$$\xi_n(x) = \psi_n(x) + i\chi_n(x) \quad (I.13)$$

Ces séries sont calculées par récurrence à partir des équations suivantes :

$$\psi_n(x) = \frac{2n-1}{x} (\psi_{n-1} - \psi_{n-2}) \quad (I.14)$$

$$\xi_n(x) = \frac{2n-1}{x} (\xi_{n-1} - \xi_{n-2}) \quad (I.15)$$

avec :

$$\psi_0 = \sin(x) \quad (I.16)$$

$$\psi_1 = \frac{\sin(x)}{x} - \cos(x) \quad (I.17)$$

$$\xi_0 = \cos(x) \quad (I.18)$$

$$\xi_1 = \frac{\cos(x)}{x} - \sin(x) \quad (I.19)$$

Dans la suite de notre étude, c'est la théorie de Mie qui sera utilisée pour déterminer les propriétés de diffusion, sachant qu'elle peut s'appliquer à tous les types de diffuseurs sphériques.

### I.1.2- Propriétés optiques des milieux diffusants

La caractérisation des propriétés optiques de matériaux diffusants peut être faite à deux niveaux : à l'échelle microscopique d'une particule interagissant avec l'onde lumineuse, ainsi qu'à l'échelle macroscopique du milieu en tenant compte de ses capacités de diffusion et d'absorption.

#### a) Paramètres microscopiques

Considérons, en premier lieu, l'interaction d'une onde électromagnétique avec une particule se trouvant dans un milieu homogène. D'un point de vue microscopique, la section efficace de diffusion  $\sigma_{diff}$  de la particule est utilisée afin de décrire sa capacité à diffuser la lumière.  $\sigma_{diff}$  est définie comme le rapport entre la puissance surfacique diffusée et l'éclairement incident (exprimé en  $W.m^2$ ) comme illustré à la Figure I.1.

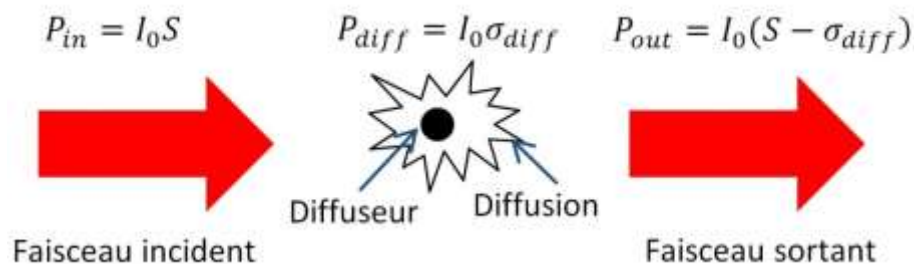


Figure I.1: Schéma illustrant le processus de diffusion.  $P_{in}$ ,  $P_{out}$  et  $P_{diff}$  sont les puissances lumineuses incidente, sortante et diffusée.  $S$  est la surface du faisceau incident et  $I_0$  l'intensité du faisceau incident

La section efficace d'absorption  $\sigma_{abs}$  est décrite de la même manière. Un paramètre regroupant les deux effets est la section efficace d'extinction  $\sigma_{ext}$  définie par

$$\sigma_{ext} = \sigma_{diff} + \sigma_{abs} \quad (I.20)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

L'albédo  $\bar{w}$  défini par :  $\bar{w} = \frac{\sigma_{diff}}{\sigma_{ext}}$  représente la fraction d'énergie diffusée sur l'énergie totale atténuée. Dans le cas où  $\bar{w} = 1$ , l'absorption est nulle et il s'agit d'un régime total de diffusion.

Afin de ramener les sections efficaces à la section géométrique de la particule, les efficacités  $Q$  définies par :

$$Q_{ext} = \frac{\sigma_{ext}}{\pi a^2} \quad (1.21)$$

$$Q_{diff} = \frac{\sigma_{diff}}{\pi a^2} \quad (1.22)$$

$$Q_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{\pi a^2} \quad (1.23)$$

sont utilisées ;  $a = \frac{\phi}{2}$  étant le rayon de la particule diffusante.

Le paramètre de taille  $x$  (équation 1.4) permet de distinguer entre trois différents régimes de diffusion :

- $x \ll 1$ , les propriétés élastiques de diffusion présentent une dépendance spectrale en  $1/\lambda^4$  et la diffusion est dite isotrope ; la lumière est diffusée de façon symétrique vers l'avant ou l'arrière (voir Figure 1.3). C'est le cas de la diffusion de Rayleigh où les particules ont des dimensions petites par rapport à la longueur d'onde.
- $1 < x < 10$ , l'interaction entre la particule et la lumière devient importante ; la lumière est principalement diffusée vers l'avant. C'est le cas de la diffusion de Mie où les particules possèdent des dimensions comparables à la longueur d'onde.
- $1 \ll x \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} - 1\right)$ , avec  $\varepsilon$  la permittivité diélectrique du milieu et  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide, la lumière sera diffractée et les lois de l'optique ondulatoire sont appliquées.

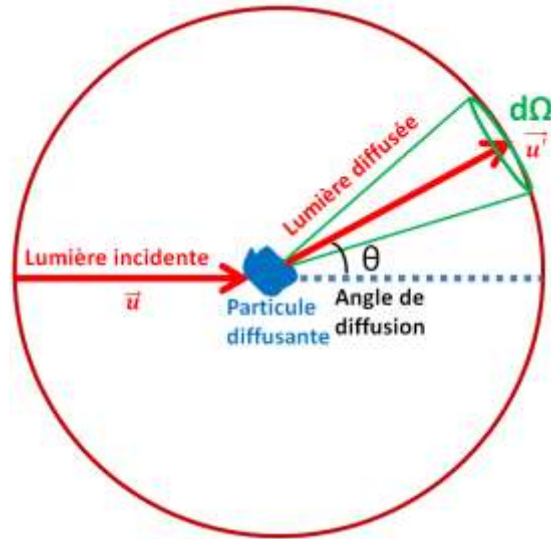


Figure 1.2 Schéma illustrant la probabilité de diffusion

Pour une particule sphérique isotrope, la probabilité qu'un photon incident ayant une direction  $\mathbf{u}$  soit diffusé dans un angle solide  $d\Omega$  centré sur la direction  $\mathbf{u}'$  (voir Figure 1.2) est représentée par la fonction de phase  $P(\mathbf{u}', \mathbf{u})$  normalisée :

$$\int_{4\pi} P(\mathbf{u}', \mathbf{u}) d\Omega = 4\pi \quad (1.24)$$

Cette fonction ne dépend que de l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{u}'$  et  $\mathbf{u}$ .

### b) Paramètres macroscopiques

Vu la complexité de la structure des milieux diffusants réels, une représentation simple de la totalité d'un milieu composé d'un ensemble de particules est nécessaire. Les propriétés optiques d'un système sont représentées par des paramètres optiques macroscopiques, notamment l'indice de réfraction moyen  $n$ , le coefficient de diffusion  $\mu_s$ , le coefficient d'absorption  $\mu_a$ , le facteur d'anisotropie  $g$ , le libre parcours moyen  $l$  et le coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$ . Ces paramètres macroscopiques sont reliés aux paramètres microscopiques précédemment définis.

**i. Indice de réfraction :**

L'indice de réfraction réel d'un milieu, noté  $n$ , est une grandeur sans dimension décrivant le comportement de la lumière dans ce milieu.  $n$  dépend de la longueur d'onde du rayonnement incident, ainsi que des caractéristiques du milieu, principalement en termes de température, pression et densité.

$n$  caractérise la vitesse de phase de l'onde dans le milieu de propagation et est exprimé comme le rapport entre la vitesse de la lumière dans le vide  $c_{vide}$  (avec  $c_{vide} \approx 3.10^8 \text{ m.s}^{-1}$ ), et celle dans le milieu considéré  $c_{milieu}$  :

$$n = \frac{c_{vide}}{c_{milieu}} \quad (1.25)$$

$n_{vide} = 1$  et la longueur d'onde dans le milieu est donnée en fonction de la longueur d'onde dans le vide par :

$$\lambda_{milieu} = \frac{\lambda_{vide}}{n_{milieu}} \quad (1.26)$$

La longueur d'onde de la lumière dépend de l'indice de réfraction, contrairement à la fréquence de l'onde qui est invariante et identique à la fréquence dans le vide :

$$v = \frac{c_{vide}}{\lambda_{vide}} = \frac{c_{milieu}}{\lambda_{milieu}} \quad (1.27)$$

**ii. Coefficient de diffusion  $\mu_s$  :**

Un milieu composé de  $N$  particules identiques par unité de volume ayant une section efficace de diffusion  $\sigma_{diff}$  possède un coefficient de diffusion macroscopique défini par :

$$\mu_s = N\sigma_{diff} \quad (1.28)$$

Pour un milieu composé de  $i$  types de particules,  $\mu_s$  sera la somme des contributions des  $N$  particules de type  $i$  :

$$\mu_s = \sum_i N_i \sigma_{diff_i} \quad (1.29)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

Cette relation caractérise une diffusion simple. En considérant un milieu homogène d'épaisseur  $L$ , non absorbant et constitué de particules diffusantes, la loi de Beer Lambert décrit la décroissance exponentielle d'une lumière collimatée d'intensité  $I$  traversant ce milieu :

$$I = I_0 \exp(-\mu_s L) \quad (1.30)$$

avec  $I_0$  l'intensité incidente et  $\mu_s$  le coefficient de diffusion (exprimé en  $\text{cm}^{-1}$  quand  $L$  est donnée en cm).

### iii. Coefficient d'absorption $\mu_a$ :

L'absorption peut être présentée sous la forme d'une atténuation de l'onde électromagnétique se propageant dans un milieu. Similairement à la diffusion, en considérant un milieu homogène d'épaisseur  $L$ , absorbant et non diffusant, la loi de Beer-Lambert décrit la variation d'intensité  $I$  de la lumière en fonction de la distance parcourue dans ce milieu :

$$I = I_0 \exp(-\mu_a L) \quad (1.31)$$

avec  $I_0$  l'intensité incidente et  $\mu_a$  le coefficient d'absorption (en  $\text{cm}^{-1}$  quand  $L$  est donnée en cm) .  $\mu_a$  peut également être exprimé en fonction de la densité volumique d'absorbants et de leur section efficace d'absorption :

$$\mu_a = N \sigma_{abs} \quad (1.32)$$

En présence de diffusants et d'absorbants de tailles différentes, les coefficients  $\mu_s$  et  $\mu_a$  s'additionnent. Le coefficient d'atténuation du milieu est alors défini par :  $\mu_{ext} = \mu_s + \mu_a$ .

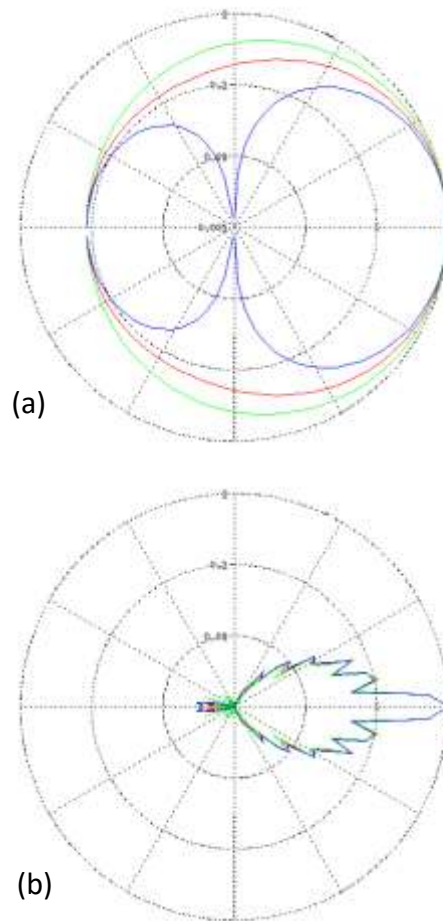
### iv. Facteur d'anisotropie $g$ :

Le facteur  $g$  décrit l'anisotropie de la diffusion dans le milieu et est défini par :

$$g = \frac{1}{4\pi} \int P(\mathbf{u}, \mathbf{u}') \cos(\theta) d\Omega \quad (1.33)$$

où

$$\cos(\theta) = \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}' \text{ et } -1 \leq g \leq 1.$$



**Figure 1.3** Indicatrices de diffusion pour des microbilles de diamètre (a)  $0.22 \mu\text{m}$  ( $g=0.3857$ ) et (b)  $3 \mu\text{m}$  ( $g=0.8129$ ) en suspension dans de l'eau et éclairées par une lumière rouge de longueur d'onde  $0.6328 \mu\text{m}$ . Les couleurs rouge, verte et bleue correspondent respectivement à une lumière non polarisée, de polarisation perpendiculaire au plan d'incidence et de polarisation parallèle au plan d'incidence

Dans le cas d'une diffusion par une petite particule (cas d'une diffusion de Rayleigh),  $g$  est proche de zéro et la diffusion est isotrope. Une diffusion vers l'avant est décrite par un  $g$  positif et vers l'arrière par un  $g$  négatif. La Figure 1.3 en est une illustration ; y sont montrées les indicatrices de diffusion de billes, de diamètre inférieur ( $0.22 \mu\text{m}$ ) et supérieur ( $3 \mu\text{m}$ ) à la longueur d'onde, en suspension dans une solution aqueuse et éclairées par une lumière rouge de longueur d'onde  $0.6328 \mu\text{m}$ . La diffusion est quasi-isotrope dans le cas des billes de  $0.22 \mu\text{m}$  contrairement au cas des billes de diamètre  $3 \mu\text{m}$  où la diffusion se fait majoritairement vers l'avant. En outre, la dépendance angulaire de la diffusion à la polarisation est plus ou moins

marquée en fonction de la taille des diffuseurs présents dans le milieu. Cette dépendance sera étudiée plus loin dans ce manuscrit.

**v. Coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$  :**

Ce coefficient fournit une description plus complète de la diffusion dans le milieu en combinant le facteur d'anisotropie et le coefficient de diffusion :

$$\mu'_s = \mu_s(1 - g) \quad (1.34)$$

En considérant un milieu très dense en particules, un photon subit de multiples diffusions avant sa sortie du milieu. Les longueurs de diffusion  $l_s$  (ou libre parcours moyen) et d'absorption  $l_a$  sont définies comme

$$l_s = \frac{1}{\mu_s} \quad (1.35)$$

et

$$l_a = \frac{1}{\mu_a} \quad (1.36)$$

- i. Pour  $l_s \ll l_a$ , la diffusion est négligeable et le régime d'absorption est dominant.
- ii. Pour  $l_a \ll l_s$ , trois cas peuvent être distingués pour un milieu d'épaisseur  $L$  :
  - $L \ll l_s$ , le photon se propage sans diffusion ni absorption.
  - $L \sim l_s$ , le milieu présente un régime de diffusion simple ; chaque photon incident subit en moyenne une seule diffusion avant de sortir du milieu.
  - $L > l_s$ , le milieu présente un régime de diffusion multiple ; la majorité des photons est au moins diffusée par deux particules avant de sortir du milieu.

Le libre parcours moyen de transport  $l^*$  est défini comme l'inverse du coefficient de diffusion réduit :

$$l^* = \frac{1}{\mu'_s} \quad (1.37)$$



et exprime la distance moyenne parcourue par un photon dans un milieu anisotrope avant d'être diffusé de façon totalement isotrope ou, en d'autres termes, la distance au bout de laquelle un photon a perdu la mémoire de sa direction initiale.

Les paramètres optiques des tissus biologiques ont été étudiés dans divers travaux, notamment par Steven L. Jacques pour différentes longueurs d'onde incidentes [Jacques, 2003]. Dans un tissu biologique, les structures rencontrées par la lumière varient en termes de taille de  $0.01 \mu\text{m}$  à  $10 \mu\text{m}$  ; le libre parcours moyen est d'environ  $50 \mu\text{m}$  alors que le libre parcours moyen de transport est typiquement de  $500 \mu\text{m}$ .

### vi. Coefficient d'extinction $\mu_{ext}$ :

Le coefficient d'extinction  $\mu_{ext}$  est la somme du coefficient d'absorption  $\mu_a$  et du coefficient de diffusion  $\mu_s$ . La loi de Beer-Lambert pour l'intensité s'écrit en fonction de la distance  $L$  parcourue dans le milieu :

$$I = I_0 e^{-\mu_{ext}L} \quad (1.38)$$

## I.2- Polarisation de la lumière

*Bohren (2006): 'the only reason the polarization state of light is worth contemplating is that two beams, otherwise identical, may interact differently with matter if their polarization states are different.'*

Toute onde électromagnétique peut être représentée par les quatre grandeurs : intensité, fréquence, polarisation et phase. Nous nous intéressons, dans cette partie, à la propriété de polarisation de la lumière décrivant la direction du champ électrique dans le temps. Une onde est dite polarisée quand l'évolution temporelle du champ électrique est stationnaire ; le vecteur champ électrique dans un plan d'onde fixe décrit une trajectoire identique pendant la mesure. L'oscillation du champ électrique dans l'espace et le temps est donc définie par la polarisation [Goldstein, 2003].

A l'issue d'une interaction avec un milieu donné, l'état de polarisation d'une onde lumineuse subit une transformation. L'étude de la modification de l'état de polarisation permet la

caractérisation du milieu considéré ; ces aspects sont de plus en plus exploités dans le domaine de la recherche en imagerie optique [Jacques, 2002] [Du, 2014]. En effet, l'utilisation d'une lumière polarisée permet d'accentuer le contraste dans des images [Jacques, 2000], ou d'accéder à une plus grande sensibilité en profondeur dans les milieux diffusants [Xu, 2005]. Il s'agit d'un moyen de « filtrage » ou bien de sélection entre les photons multidiffusés et les photons balistiques. Afin de représenter mathématiquement la polarisation de la lumière, nous allons décrire l'ellipse de polarisation et présenter deux formalismes : le formalisme de Jones et celui de Stokes-Mueller.

### 1.2.1- Ellipse de polarisation

Le champ électrique d'une onde plane homogène de longueur d'onde  $\lambda$  et de pulsation  $\omega$  se propageant dans la direction  $z$ , évolue dans le plan  $xy$  en fonction du temps  $t$  suivant l'équation suivante :

$$\mathbf{E}(z, t) = \begin{bmatrix} E_x(z, t) \\ E_y(z, t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x} \cos(\omega t - kz - \varphi_x) \\ E_{0y} \cos(\omega t - kz - \varphi_y) \end{bmatrix} \quad (1.39)$$

avec  $E_{0x}$  et  $E_{0y}$  les amplitudes réelles positives,  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  la norme du vecteur d'onde, et  $\varphi_x$  et  $\varphi_y$  les phases définies à  $2\pi$  près.

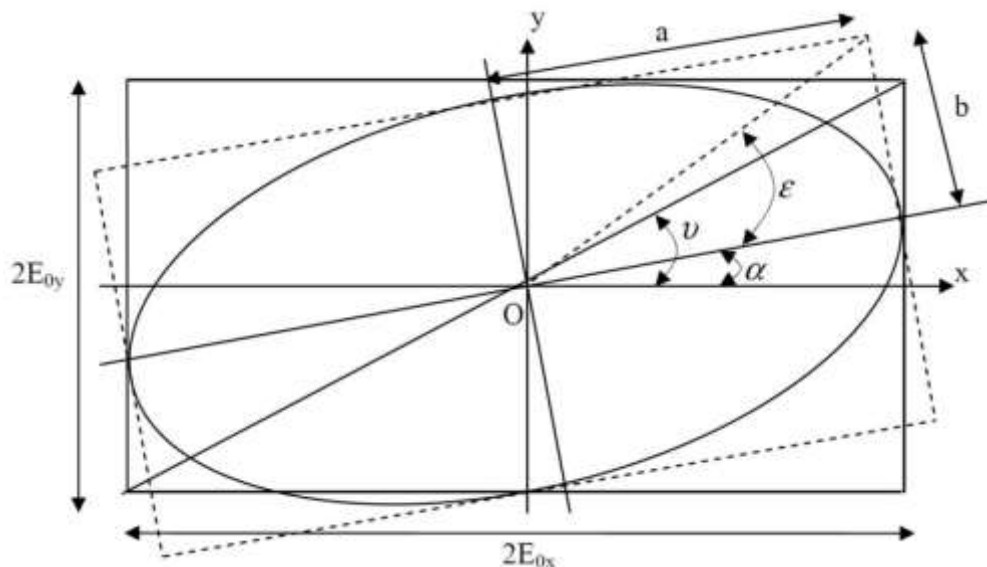


Figure 1.4 Ellipse de polarisation d'axes a et b, d'azimut  $\alpha$ , d'ellipticité  $\epsilon$ , et d'angle diagonal  $\nu$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

L'état de polarisation est décrit par la trajectoire du vecteur  $\mathbf{E}(z, t)$  dans le plan  $xy$ . L'élimination du terme temporel entre les éléments  $E_x(z, t)$  et  $E_y(z, t)$  conduit à l'équation d'une ellipse (Figure I.4) :

$$\frac{E_x^2}{E_{0x}^2} + \frac{E_y^2}{E_{0y}^2} - 2 \frac{E_x E_y}{E_{0x} E_{0y}} \cos \varphi = \sin^2 \varphi \quad (I.40)$$

où  $\varphi = \varphi_x - \varphi_y$  représente le déphasage temporel entre les vibrations orthogonales  $E_x(z, t)$  et  $E_y(z, t)$  pris par convention dans l'intervalle  $[-\pi, \pi]$ .

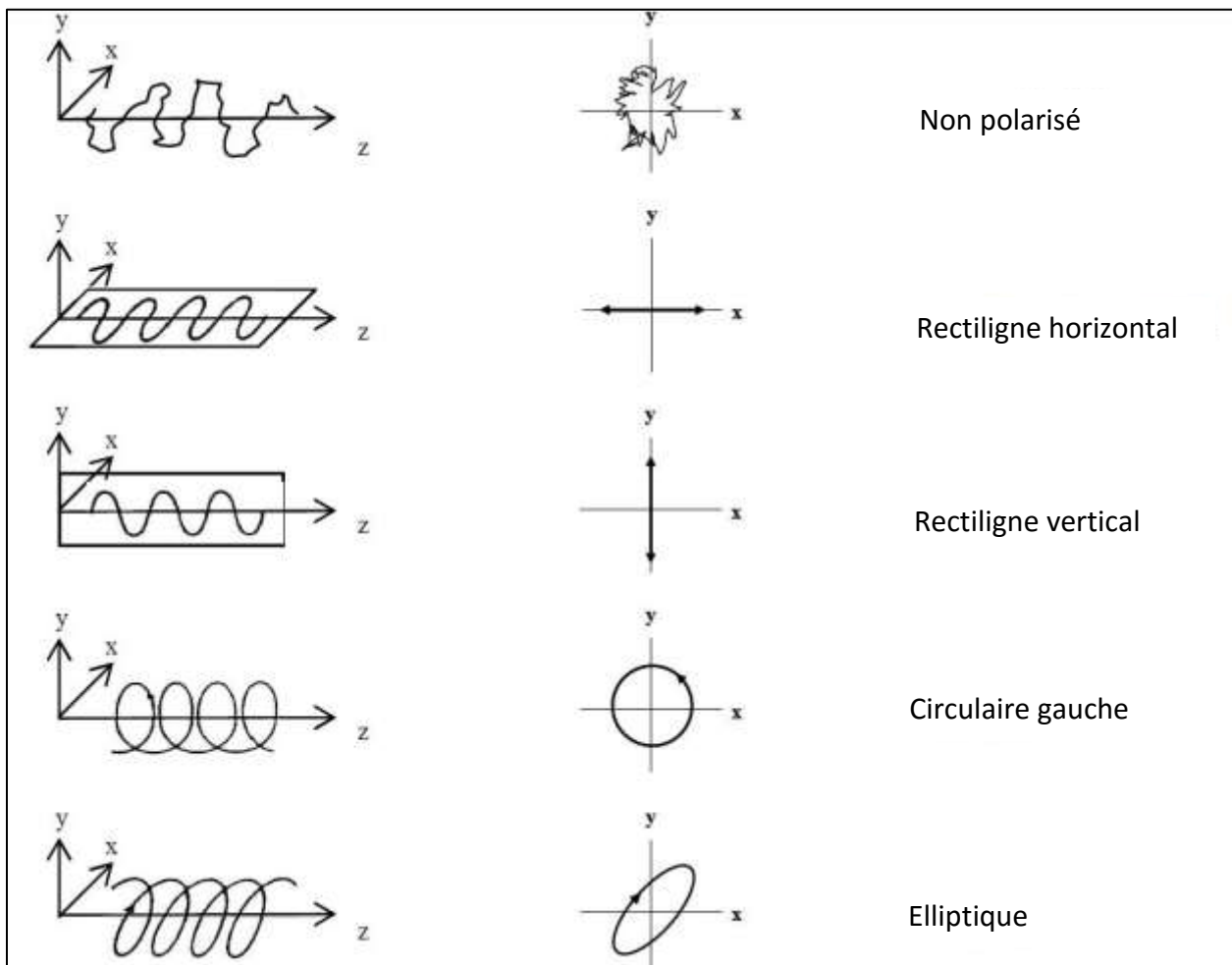


Figure I.5 Représentation de différents états de polarisation

Des états de polarisation particuliers sont illustrés à la Figure I.5 correspondant à des valeurs relatives des amplitudes  $E_{0x}$  et  $E_{0y}$  et du déphasage  $\varphi$  ; la polarisation rectiligne (ou linéaire)

verticale ou horizontale, par exemple, correspond à  $\varphi = 0$  ou  $\varphi = \pi$ , alors que la polarisation circulaire correspond à  $\varphi = \pm \frac{\pi}{2}$  et  $E_{0x} = E_{0y}$  avec une rotation dans le sens des aiguilles d'une montre dite polarisation circulaire droite ( $\varphi = -\frac{\pi}{2}$ ) ou dans le sens inverse dite polarisation circulaire gauche ( $\varphi = +\frac{\pi}{2}$ ).

### I.2.2- Formalisme de Jones

Le premier formalisme matriciel de description de l'état de polarisation de la lumière a été développé par R. Clark Jones en 1941 [Jones, 1941]. Ce formalisme décrit la lumière purement polarisée, par son amplitude et sa phase. Lorsque l'information de phase est nécessaire, il est important d'adopter le formalisme de Jones pour la description des états de polarisation. Le champ électrique est défini par ses deux composantes transversales complexes ; le vecteur de Jones  $\mathbf{J}$  pour une onde plane monochromatique est le suivant :

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x} e^{i(\omega t - kz - \varphi_x)} \\ E_{0y} e^{i(\omega t - kz - \varphi_y)} \end{bmatrix} \quad (1.41)$$

$E_{0x}$  et  $E_{0y}$  correspondent aux valeurs maximales de l'amplitude du champ électrique. Lorsque la polarisation de la lumière change, à la traversée d'un élément optique ou d'un milieu diffusant par exemple, le processus est décrit par une matrice de Jones  $[T]$  de dimension 2x2 représentant mathématiquement la transition d'un vecteur de Jones initial  $\mathbf{J}_i$  à un vecteur final  $\mathbf{J}_f$  après la transformation. Le calcul est représenté par l'équation suivante :

$$\begin{bmatrix} E_{xf} \\ E_{yf} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a & b \\ c & d \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{xi} \\ E_{yi} \end{bmatrix} \quad (1.42)$$

Ce formalisme permet une description simple d'un milieu complexe où les éléments optiques sont placés en cascade. Le vecteur de Jones  $\mathbf{J}_f$  à la sortie d'un système comportant  $n$  éléments est le produit des matrices de Jones associées à ces différents éléments en cascade :

$$\mathbf{J}_f = [T_n] \dots [T_2][T_1]\mathbf{J}_i \quad (1.43)$$

avec  $\mathbf{J}_i$  le vecteur de Jones à l'entrée du système. Pour une lumière partiellement polarisée, le formalisme de Jones n'est plus adapté. C'est le formalisme de Stokes-Mueller qu'il convient

d'utiliser puisque ce dernier a l'avantage d'être décrit par des intensités mesurables contrairement au formalisme de Jones.

### I.2.3- Formalisme de Stokes-Mueller

Cette représentation de la polarisation a été développée par Sir George G. Stokes en 1852 [Stokes, 1852]. Le formalisme de Stokes est décrit par des intensités mesurables. En conséquence, le paramètre de phase est exclu de cette représentation, mais les états non polarisés y sont correctement décrits. Le formalisme de Stokes est le formalisme que nous adopterons tout au long de ce travail, pour sa capacité de prise en compte de la dépolarisation de la lumière.

D'après Stokes, tout état de polarisation peut être représenté par quatre paramètres, réunis dans un même vecteur, le vecteur de Stokes. Dans le cas d'une lumière de polarisation arbitraire, le vecteur de Stokes est donné par :

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \langle E_x E_x^* + E_y E_y^* \rangle \\ \langle E_x E_x^* - E_y E_y^* \rangle \\ \langle E_x E_y^* + E_y E_x^* \rangle \\ i \langle E_x E_y^* - E_y E_x^* \rangle \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_H + I_V \\ I_H - I_V \\ I_{45^\circ} - I_{135^\circ} \\ I_D - I_G \end{bmatrix} \quad (1.44)$$

avec \* correspondant au complexe conjugué. Les paramètres de Stokes sont proportionnels à des valeurs de flux mesurées expérimentalement avec des orientations spécifiques de différents éléments optiques. Le terme  $S_0$  est l'intensité totale,  $S_1$  est la différence d'intensités entre les polarisations linéaire horizontale  $I_H$  et linéaire verticale  $I_V$ ,  $S_2$  est la différence d'intensités entre les polarisations linéaire orientée à  $45^\circ$  ( $I_{45^\circ}$ ) et linéaire orientée à  $135^\circ$  ( $I_{135^\circ}$ ), et  $S_3$  est la différence d'intensités entre les polarisations circulaire droite  $I_D$  et gauche  $I_G$ . Par conséquent, les paramètres de Stokes vérifient la relation  $S_0^2 \geq S_1^2 + S_2^2 + S_3^2$ .

Les composantes transversales du champ électrique sont des fonctions du temps. La corrélation entre ces deux composantes détermine l'évolution de la polarisation dans le temps. Si les deux éléments transversaux sont totalement décorrélés, la lumière est dite non polarisée ; quand ils sont parfaitement corrélés, la lumière est considérée purement polarisée ; alors que quand ils sont partiellement corrélés, il s'agit d'une polarisation partielle, le vecteur de Stokes est alors

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

composé d'une combinaison de lumière polarisée et non polarisée. Le degré de polarisation (*DOP*) est défini pour quantifier le taux de polarisation d'une lumière. Le *DOP* reflète le pourcentage de l'intensité totale de la lumière qui est purement polarisée et est donnée par l'équation :

$$DOP = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0} \quad (1.45)$$

Le *DOP* peut varier de 0 (pour une lumière non polarisée) à 1 (pour une lumière purement polarisée). Les vecteurs de Stokes ayant un *DOP* compris entre 0 et 1 sont associés à une lumière partiellement polarisée et peuvent être décomposés en 2 vecteurs de Stokes polarisé et non polarisé comme le montre l'équation :

$$\mathbf{S} = \mathbf{S}_{polarisé} + \mathbf{S}_{non\ polarisé} = \begin{bmatrix} \sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2} \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} S_0 - \sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (1.46)$$

La Figure I.6 montre des exemples d'évolution de l'extrémité du vecteur champ électrique dans le temps pour des *DOP* variables. Ils illustrent la différence entre les oscillations aléatoires d'une lumière partiellement polarisée et les oscillations structurées d'une lumière purement polarisée.

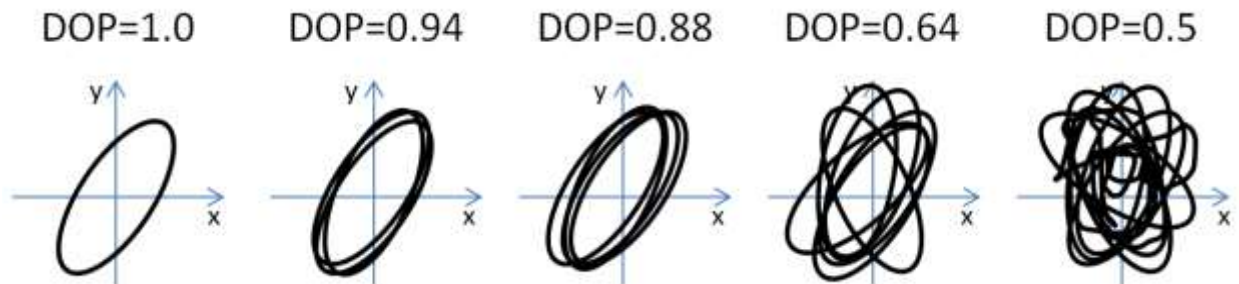


Figure I.6 Oscillations du champ électrique dans le temps pour des *DOP* variables pour une lumière de polarisation elliptique

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

Les degrés de polarisation linéaire et circulaire  $DOP_L$  et  $DOP_C$  sont également des paramètres de quantification de la polarisation rencontrés dans la littérature [Chipman, 1995] [Morgan, 2000] [Sun, 2013] et sont donnés par les équations :

$$DOP_L = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2}}{S_0} \quad (1.47)$$

$$DOP_C = \frac{S_3}{S_0} \quad (1.48)$$

$DOP_L$  prend uniquement des valeurs positives alors que  $DOP_C$  peut-être soit positif, soit négatif selon l'hélicité de la polarisation circulaire.

De façon similaire au formalisme de Jones, celui de Stokes offre également la possibilité de représenter l'interaction de la lumière avec un élément modifiant l'état de polarisation par l'intermédiaire des matrices de Mueller, de dimensions 4x4, dont les éléments prennent des valeurs réelles [Goldstein, 2003]. L'équation 1.49 représente une opération générale de calcul de Mueller. Le vecteur de Stokes initial  $S_i$  est à droite, et le vecteur de Stokes final  $S_f$ , résultant de l'interaction de la lumière avec le milieu dont l'effet est modélisé par la matrice de Mueller, est sur la gauche.

$$\begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix}_{final} = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} & m_{14} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & m_{24} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} & m_{34} \\ m_{41} & m_{42} & m_{43} & m_{44} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix}_{initial} \quad (1.49)$$

Une fois que la matrice de Mueller d'un milieu donné est connue, l'état de polarisation de sortie peut être déterminé à partir de l'état incident. La détermination de la matrice de Mueller d'un milieu quelconque est possible expérimentalement en prenant différents états de polarisation d'entrée et en mesurant ceux en sortie [Boulvert, 2006].

Un système formé de  $n$  éléments en cascade est décrit par le produit matriciel suivant :

$$S_f = [M_n] \dots [M_2][M_1]S_i \quad (1.50)$$

avec  $[M_n]$  la matrice de Mueller de l'élément  $n$ .

La prise en compte de la polarisation pour étudier la diffusion est un outil pertinent d'extraction d'informations pour l'étude des milieux biologiques [Tuchin, 2006]. Actuellement, plusieurs équipes [Li, 2002] [Graham, 2015] [Low, 2015] travaillent sur le couplage de la polarimétrie à d'autres types d'imagerie optique afin de maximiser les informations recueillies, ou d'avoir de meilleurs contrastes. Dans notre travail, nous exploiterons les propriétés de polarisation de la lumière associées à l'analyse du champ de speckle.

### I.3- Analyse spatio-temporelle du champ de speckle

Le champ de speckle [Goodman, 1984] est le résultat de l'interférence de la lumière diffusée par un ensemble d'inhomogénéités optiques, réparti de façon aléatoire dans l'espace. Cet ensemble d'inhomogénéités par lequel est diffusée la lumière pourra être notamment une surface présentant des rugosités à l'échelle de la longueur d'onde, un liquide diffusant ou bien un milieu caractérisé par des variations aléatoires d'indice de réfraction. De multiples ondelettes cohérentes diffusées se rencontrent dans les différents points de l'espace et génèrent une distribution d'intensité aléatoire. En considérant un certain plan de l'espace, une image du champ de speckle peut être acquise à l'aide d'une caméra associée ou non à un système optique (objectif de caméra). Un exemple d'image de speckle est représenté à la Figure I.7.

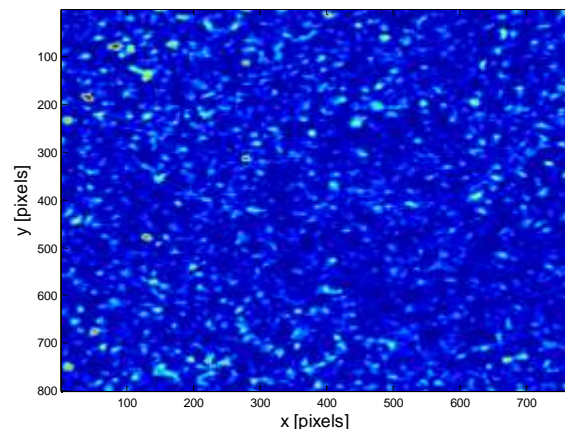


Figure I.7 Champ de speckle généré par un échantillon diffusant



## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

On appelle speckle objectif le champ capturé par un détecteur non associé à un système optique imageant. Dans ce cas, chaque point de l'image est le résultat de la contribution de la diffusion en tout point de l'échantillon. En revanche, l'utilisation d'un système optique à l'entrée du détecteur fait que chaque point sur l'image du champ de speckle est le résultat de la diffusion par une petite zone dans l'échantillon. On parle alors de speckle subjectif.

Si l'interaction de la lumière se fait avec un objet statique, la figure d'interférence des ondes diffusées est statique. Pour un échantillon contenant des particules en mouvement, la figure d'interférence va fluctuer dans le temps. Ce comportement dynamique est principalement attribué à la non-stationnarité des diffuseurs en mouvement et donc aux variations de phases [Goodman, 1984].

Dans les paragraphes suivants, nous détaillons les aspects théoriques du speckle et présentons les procédures d'analyses spatiale et temporelle des images associées à ce phénomène.

### I.3.1- Analyse spatiale

#### *a) Statistique du premier ordre*

La statistique du premier ordre concerne les paramètres calculés en un seul point de l'espace. Les paramètres calculés à partir de cette statistique sont l'intensité, l'écart type et le contraste. Les fonctions de densité de probabilité complexe de l'intensité et de la phase sont développées pour une onde incidente monochromatique et polarisée.

Les amplitudes et les phases des ondes diffusées après interaction d'un milieu avec une lumière incidente sont des variables aléatoires. Les ondes diffusées sont supposées avoir les propriétés statistiques suivantes : (i) l'amplitude et la phase de chaque onde diffusée sont statistiquement indépendantes l'une de l'autre, et (ii) les phases de ces ondes diffusées sont uniformément distribuées entre  $-\pi$  et  $\pi$  [Goodman, 1984].

L'amplitude complexe résultant d'un champ de speckle développé et polarisé est donnée par :

$$A = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N a_k \exp(i\varphi_k) \quad (I.51)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

avec  $a_k$  et  $\varphi_k$  l'amplitude et la phase correspondant au  $k^{\text{ième}}$  diffuseur. Les parties réelle  $Re(..)$  et imaginaire  $Im(..)$  de  $A$  peuvent être exprimées de la façon suivante :

$$A^{(r)} = Re(A) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N |a_k| \cos(\varphi_k) \quad (1.52)$$

$$A^{(i)} = Im(A) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N |a_k| \sin(\varphi_k) \quad (1.53)$$

On peut montrer que

$$\langle A^{(r)} \rangle = \langle A^{(i)} \rangle = 0 \quad (1.54)$$

$$\langle [A^{(r)}]^2 \rangle = \langle [A^{(i)}]^2 \rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N \frac{\langle |a_k|^2 \rangle}{2} \quad (1.55)$$

$$\langle A^{(r)} A^{(i)} \rangle = 0 \quad (1.56)$$

$\langle \dots \rangle$  indique une moyenne d'ensemble. La fonction de densité de probabilité jointe pour  $\langle A^{(r)} \rangle$  et  $\langle A^{(i)} \rangle$  est donnée par :

$$p_{r,i}(A^{(r)}, A^{(i)}) = \frac{1}{2\pi\sigma^2} \exp\left\{-\frac{[A^{(r)}]^2 + [A^{(i)}]^2}{2\sigma^2}\right\} \quad (1.57)$$

Et

$$\sigma^2 = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \frac{\langle |a_k|^2 \rangle}{2} \quad (1.58)$$

D'après les deux dernières équations, on remarque que l'amplitude complexe résultante  $A$  est une variable aléatoire complexe gaussienne, et que la fonction de densité de probabilité jointe des parties réelle et imaginaire est une fonction gaussienne.

La fonction de densité de probabilité jointe de l'intensité  $I$  et la phase  $\varphi$  peut être exprimée comme :

$$p_{i,\varphi}(I, \varphi) = \begin{cases} \frac{1}{4\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{I}{2\sigma^2}\right) ; & (I \geq 0, -\pi \leq \varphi < \pi) \\ 0 & ; \text{ autrement} \end{cases} \quad (1.59)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

Ainsi, les fonctions de densité de probabilité marginale de l'intensité  $I$  et de la phase  $\varphi$  peuvent être exprimées comme suit :

$$p_I(I) = \begin{cases} \frac{1}{2\sigma^2} \exp\left(-\frac{I}{2\sigma^2}\right), & (I \geq 0) \\ 0 & ; \text{ autrement} \end{cases} \quad (1.60)$$

Et

$$p_\varphi(\varphi) = \begin{cases} \frac{1}{2\pi}, & (-\pi \leq \varphi < \pi) \\ 0, & \text{ autrement} \end{cases} \quad (1.61)$$

sachant que

$$p_{I,\varphi}(I, \varphi) = p_I(I)p_\varphi(\varphi) \quad (1.62)$$

et que l'intensité et la phase sont statistiquement indépendantes en n'importe quel point de l'espace. En utilisant l'expression (1.63) pour le  $n^{\text{ième}}$  moment  $\langle I^n \rangle$  de l'intensité  $I$

$$\langle I^n \rangle = n! (2\sigma^2)^n \quad (1.63)$$

l'équation (1.59) peut être écrite sous la forme

$$p_{i,\varphi}(I, \varphi) = \begin{cases} \frac{1}{\langle I \rangle} \exp\left(-\frac{I}{\langle I \rangle}\right), & (I \geq 0) \\ 0 & ; \text{ autrement} \end{cases} \quad (1.64)$$

Par conséquent, l'intensité en chaque point de l'espace obéit à une statistique exponentielle négative, tandis que la phase obéit à une statistique uniforme.

Le contraste du champ de speckle peut être écrit de la façon suivante :

$$C = \frac{\sigma_I}{\langle I \rangle} \quad (1.65)$$

où  $\sigma_I$  est l'écart type de l'intensité et s'exprime comme :

$$\sigma_I = \sqrt{\langle (I - \langle I \rangle)^2 \rangle} = \sqrt{\langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2} = \langle I \rangle \quad (1.66)$$

Dans notre cas de speckle développé à un temps  $t$  donné, le contraste est unité.

**b) Statistique du second ordre**

Dans la statistique du second ordre, deux points de l'espace sont considérés. Il est pertinent alors de distinguer dans ce cas le speckle subjectif et le speckle objectif.

**i. Speckle objectif**

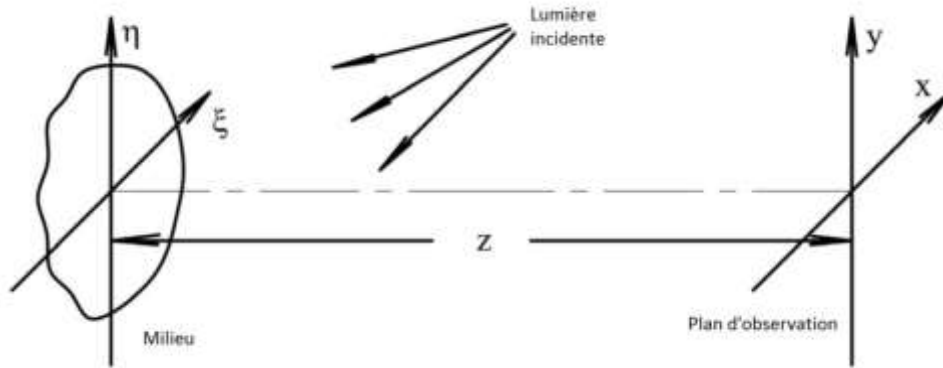


Figure I.8 Schéma illustrant la formation du speckle objectif.  $z$  est la distance entre le milieu et le plan d'observation

Le champ complexe  $A(x, y)$  sur le plan d'observation (voir Figure I.8) peut être exprimé de la manière suivante [Goodman, 1968] :

$$A(x, y) = \frac{1}{i\lambda z} \exp(ikz) \exp\left[i\frac{\pi}{\lambda z}(x^2 + y^2)\right] \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} P(\xi, \eta) \exp\left[i\frac{\pi}{\lambda z}(\xi^2 + \eta^2)\right] \exp\left[-i\frac{2\pi}{\lambda z}(x\xi + y\eta)\right] d\xi d\eta \quad (I.67)$$

avec  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  et  $P(\xi, \eta)$  le champ complexe sur la tache de diffusion. La fonction d'autocorrélation du champ est donnée par:

$$J_A(x_1, y_1; x_2, y_2) = \langle A(x_1, y_1)A^*(x_2, y_2) \rangle \quad (I.68)$$

où  $J_A(x_1, y_1; x_2, y_2)$  est appelée intensité mutuelle du champ. En remplaçant l'équation (I.67) dans (I.68), l'intensité mutuelle peut être écrite sous la forme :

$$J_A(\Delta x, \Delta y) = \frac{1}{\lambda^2 z^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 e^{-i\frac{2\pi}{\lambda z}(\xi\Delta x + \eta\Delta y)} d\xi d\eta \quad (I.69)$$

$\Delta x$  et  $\Delta y$  correspondent à la différence entre  $x_1$  et  $x_2$ , et  $y_1$  et  $y_2$  respectivement.

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

D'après l'équation (I.69), on peut voir que l'intensité mutuelle dépend uniquement de la différence de coordonnées sur le plan d'observation. L'intensité mutuelle normalisée, appelée facteur complexe de cohérence, est définie par :

$$v_A(x_1, y_1; x_2, y_2) = \frac{J_A(x_1, y_1; x_2, y_2)}{\sqrt{J_A(x_1, y_1; x_1, y_1)J_A(x_2, y_2; x_2, y_2)}} \quad (I.70)$$

Par substitution de l'équation (I.69) dans l'équation (I.70), l'intensité mutuelle normalisée peut être réécrite :

$$v_A(\Delta x, \Delta y) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 \exp[-i\frac{2\pi}{\lambda z}(\xi \Delta x + \eta \Delta y)] d\xi d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 d\xi d\eta} \quad (I.71)$$

Pour un champ complexe gaussien, la fonction d'autocorrélation de la distribution de l'intensité  $I(x, y) = |A(x, y)|^2$  sur le plan d'observation peut être exprimée comme :

$$R_I(x_1, y_1; x_2, y_2) = \langle I(x_1, y_1)I(x_2, y_2) \rangle = \langle I(x_1, y_1) \rangle \langle I(x_2, y_2) \rangle + |J_A(x_1, y_1; x_2, y_2)|^2 \quad (I.72)$$

où  $J_A(x, y; x, y) = \langle I(x, y) \rangle$ . On peut démontrer que la fonction d'autocorrélation de l'intensité a la forme suivante :

$$R_I(\Delta x, \Delta y) = \langle I \rangle^2 [1 + |v_A(\Delta x, \Delta y)|^2] = \langle I \rangle^2 \left\{ 1 + \left| \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 \exp[-i\frac{2\pi}{\lambda z}(\xi \Delta x + \eta \Delta y)] d\xi d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 d\xi d\eta} \right|^2 \right\} \quad (I.73)$$

La fonction d'autocovariance normalisée de l'intensité peut alors être exprimée d'après l'équation (I.73) comme :

$$r_I(\Delta x, \Delta y) = \frac{R_I(\Delta x, \Delta y) - \langle I(x, y) \rangle^2}{R_I(0, 0) - \langle I(x, y) \rangle^2} = \left| \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 \exp[-i\frac{2\pi}{\lambda z}(\xi \Delta x + \eta \Delta y)] d\xi d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 d\xi d\eta} \right|^2 \quad (I.74)$$

L'équation (I.74) peut être utilisée pour déterminer la taille moyenne des grains de speckle.

Pour une tache de diffusion uniforme circulaire de diamètre  $D_e$ , on a

$$|P(\xi, \eta)|^2 = \text{circ}\left(\frac{\sqrt{\xi^2 + \eta^2}}{\frac{D_e}{2}}\right) \quad (I.75)$$

avec

$$circ(|r|) = \begin{cases} 1, & |r| \leq 1 \\ 0, & \text{autrement} \end{cases} \quad (1.76)$$

La fonction d'autocovariance normalisée de l'intensité est donnée alors par :

$$r_I(\Delta x, \Delta y) = \left| 2 \frac{J_1 \left[ \frac{\pi D_e}{\lambda z} \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2} \right]}{\frac{\pi D_e}{\lambda z} \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2}} \right|^2 \quad (1.77)$$

avec  $J_1$  la fonction de Bessel du premier ordre.

La taille moyenne transversale du grain de speckle peut être prise comme la valeur de  $\sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2}$  quand  $J_1 \left[ \frac{\pi D_e}{\lambda z} \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2} \right]$  s'annule. D'où la taille du grain de speckle transversale  $\delta r$  donnée par :

$$\delta r = 1.22 \frac{\lambda z}{D_e} \quad (1.78)$$

De même, la fonction d'autocovariance normalisée longitudinale de l'intensité tout au long de l'axe des z peut être donnée par l'équation :

$$r_I(0, 0, \Delta z) = \frac{R_I(0,0,\Delta z) - \langle I(x,y) \rangle^2}{R_I(0,0,0) - \langle I(x,y) \rangle^2} = \left| \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi,\eta)|^2 \exp[-i \frac{\pi \Delta z}{\lambda z^2} (\xi^2 + \eta^2)] d\xi d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi,\eta)|^2 d\xi d\eta} \right|^2 \quad (1.79)$$

L'équation (1.79) peut être utilisée pour déterminer la taille longitudinale des grains de speckle tout le long de l'axe des z. Pour une tache de diffusion circulaire uniforme de diamètre  $D_e$ ,

$$|P(\xi, \eta)|^2 = circ\left(\frac{\sqrt{\xi^2 + \eta^2}}{\frac{D_e}{2}}\right) \quad (1.80)$$

La fonction d'autocovariance longitudinale normalisée de l'intensité sera donnée par

$$r_I(0,0, \Delta z) = sinc^2 \left( \frac{D_e^2 \Delta z}{8 \lambda z^2} \right) \quad (1.81)$$

La taille moyenne longitudinale des grains de speckle est alors donnée par:

$$\delta z = \frac{8 \lambda z^2}{D_e^2} \quad (1.82)$$

ii. Speckle subjectif

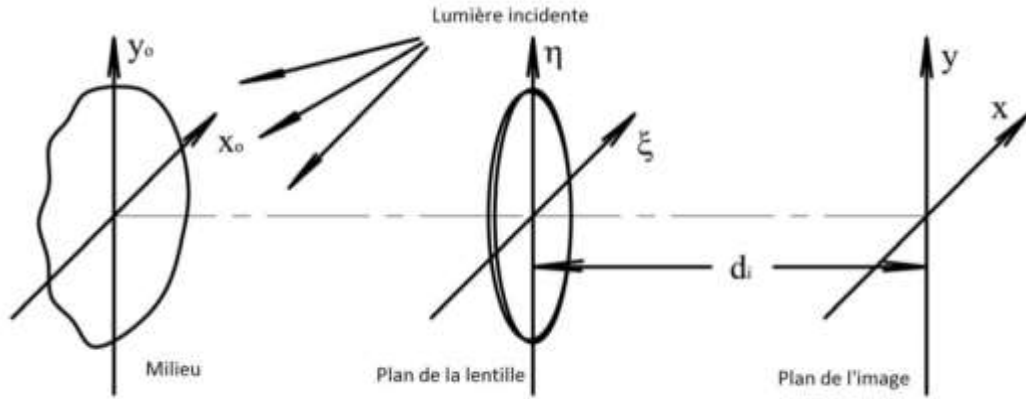


Figure I.9 Schéma illustrant la formation du speckle subjectif.  $d_i$  est la distance entre le plan de l'image et le plan de la lentille

Un champ de speckle formé sur le plan image d'une lentille (voir Figure I.9) est appelé speckle subjectif. On considère un objet uniformément réfléchissant ou diffusant, une région illuminée très grande par rapport à la taille du pixel de l'image, et une illumination uniforme. La taille des grains de speckle formés sur la lentille est très petite par rapport au diamètre de la lentille. La fonction d'autocovariance normalisée de l'intensité du speckle est donnée par :

$$r_I(\Delta x, \Delta y) = \left| \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 \exp[-i \frac{2\pi}{\lambda d_i} (\xi \Delta x + \eta \Delta y)] d\xi d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi, \eta)|^2 d\xi d\eta} \right|^2 \quad (1.83)$$

avec  $P(\xi, \eta)$  la fonction pupillaire de l'objectif, et  $d_i$  la distance lentille-image (Figure I.9). Dans le cas d'une pupille d'objectif circulaire de diamètre  $D_{obj}$ , la fonction d'autocovariance normalisée de l'intensité de speckle s'écrit :

$$r_I(\Delta x, \Delta y) = \left| 2 \frac{J_1 \left[ \frac{\pi D_{obj}}{\lambda d_i} \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2} \right]}{\frac{\pi D_{obj}}{\lambda d_i} \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2}} \right|^2 \quad (1.84)$$

La taille de grains moyenne transversale  $\delta r$  peut être prise comme la valeur de  $\sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2}$  quand  $J_1 \left[ \frac{\pi D_{obj}}{\lambda d_i} \sqrt{(\Delta x)^2 + (\Delta y)^2} \right]$  s'annule. Par conséquent, la taille transversale des grains de speckle est :

$$\delta r = 1.22 \frac{\lambda d_i}{D_{obj}} \quad (1.85)$$

En considérant que la focale et le grossissement du système imageant sont respectivement notés par  $F$  et  $M$ , la taille moyenne transversale des grains de speckle peut être simplifiée :

$$\delta r = 1.22 \lambda F (M + 1) \quad (1.86)$$

On peut également montrer que la fonction d'autocovariance longitudinale de l'intensité tout le long de l'axe des  $z$  est donnée par [Goodman, 1984] :

$$r_I(0, 0, \Delta z) = \frac{R_I(0,0,\Delta z) - \langle I(x,y) \rangle^2}{R_I(0,0,0) - \langle I(x,y) \rangle^2} = \left| \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi,\eta)|^2 \exp[-i \frac{\pi \Delta z}{\lambda d_i^2} (\xi^2 + \eta^2)] d\xi d\eta}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |P(\xi,\eta)|^2 d\xi d\eta} \right|^2 \quad (1.87)$$

Pour une tache de diffusion circulaire uniforme de diamètre  $D_e$ ,

$$|P(\xi, \eta)|^2 = \text{circ}\left(\frac{\sqrt{\xi^2 + \eta^2}}{\frac{D_e}{2}}\right) \quad (1.88)$$

La fonction d'autocovariance longitudinale normalisée de l'intensité sera donnée par :

$$r_I(0,0, \Delta z) = \text{sinc}^2 \frac{D_e^2 \Delta z}{8 \lambda d_i^2} \quad (1.89)$$

La taille moyenne longitudinale des grains de speckle est alors donnée par:

$$\delta z = \frac{8 \lambda d_i^2}{D_e^2} \quad (1.90)$$

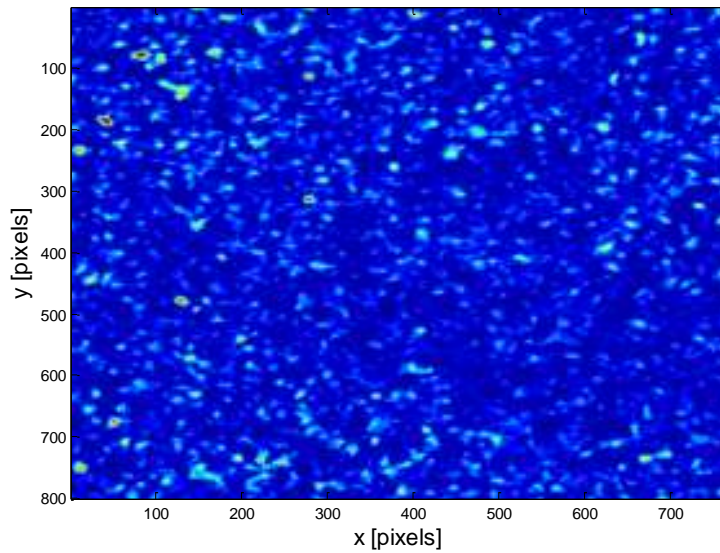
où

$$\delta z = 8 \lambda F^2 (M + 1)^2 \quad (1.91)$$

Le travail expérimental que nous présentons dans la suite de ce manuscrit est réalisé à l'aide d'un dispositif en speckle objectif.

### iii. Calcul pratique de la taille des grains de speckle





**Figure I.10** Figure de speckle  $I(x, y)$  obtenue dans une géométrie en rétrodiffusion

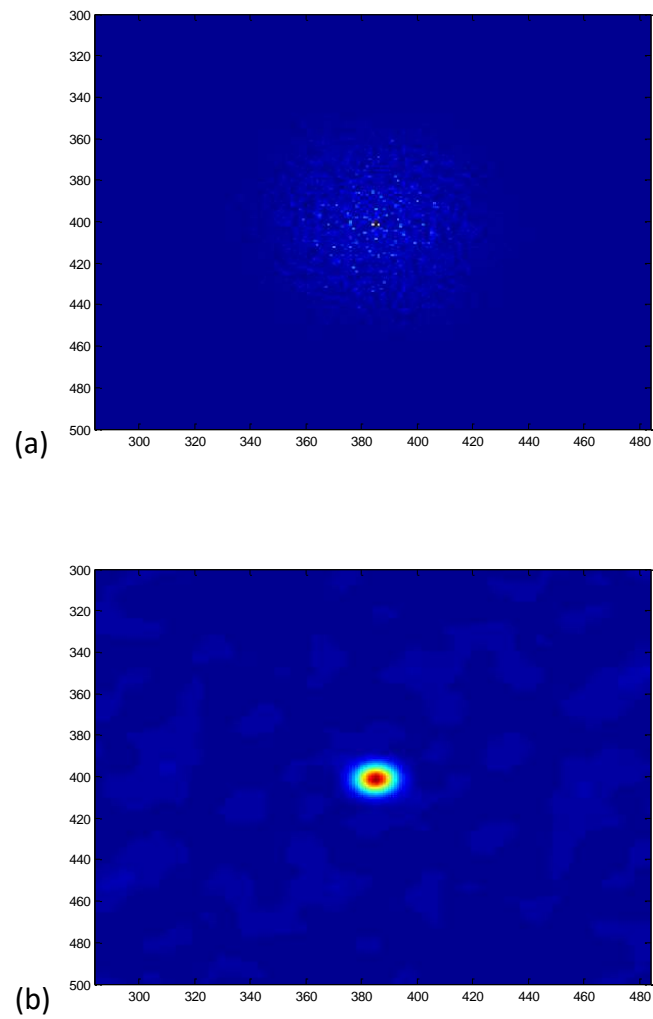
La taille de grain de speckle à partir d'une image (Figure I.10) est calculée à partir de l'autocovariance normalisée. Le module de la transformée de Fourier au carré de l'image de speckle d'intensité  $I(x, y)$  est calculé et représente la densité spectrale de puissance DSP (Figure I.11 (a)). Les régions de basses fréquences apparaissent au centre de l'image, tandis que les régions de hautes fréquences se trouvent aux coins de l'image de la DSP. L'autocorrélation de la figure de speckle est calculée en effectuant la transformée de Fourier inverse de la DSP (Figure I.11 (b)). En effectuant une coupe horizontale au centre de l'image d'autocorrélation, on obtient  $R_I(x, 0)$ . Le minimum de cette coupe correspond à  $\langle I(x, y) \rangle^2$ , et sa valeur maximale correspond à  $\langle I^2(x, y) \rangle$ .

La fonction d'autocovariance normalisée de l'image de speckle en  $y=0$  est alors :

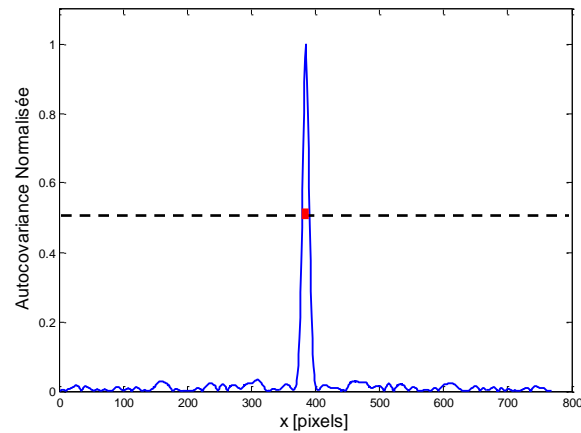
$$c_I(x, 0) = \frac{R_I(x, 0) - \langle I(x, y) \rangle^2}{\langle I^2(x, y) \rangle - \langle I(x, y) \rangle^2} \quad (1.92)$$

La largeur à mi-hauteur de l'autocovariance normalisée correspond à la taille de grain horizontale de speckle  $dx$  (Figure I.12).

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques



**Figure I.11 (a) Densité Spectrale de Puissance DSP de l'image de speckle, (b) Fonction d'autocorrélation du speckle**



**Figure I.12  $c_I(x, 0)$  autocovariance normalisée**

Le calcul de la taille de grain verticale  $dy$  s'effectue de la même manière en prenant une coupe verticale de la fonction d'autocorrélation,  $R_I(0, y)$  pour remonter à  $c_I(0, y)$ .

La taille de grain de speckle est également reliée au diamètre de la tache de diffusion et à la géométrie de la mesure (voir Figure I.13) par les relations suivantes [Li, 1992]:

$$dx = \frac{1.22\lambda z}{D_e \cos \theta} \quad (I.93)$$

et

$$dy = \frac{1.22\lambda z}{D_e} \quad (I.94)$$

avec  $\lambda$  la longueur d'onde du rayonnement incident,  $\theta$  l'angle entre le plan d'observation et le plan d'incidence,  $z$  la distance entre le plan d'observation et le milieu diffusant, et  $D_e$  le diamètre de la tache de diffusion. On remarque que les tailles de grain  $dx$  et  $dy$  sont proportionnelles à la distance entre le détecteur et l'échantillon, et inversement proportionnelles au diamètre de la tache de diffusion. De plus,  $dx$  est influencée par l'angle d'observation  $\theta$ .

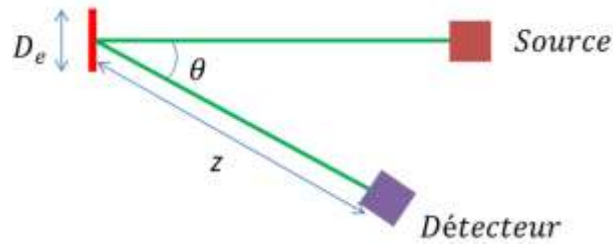


Figure I.13 Schéma de la géométrie de mesure de l'image de speckle

### I.3.2- Analyse temporelle

Lorsque les particules du milieu diffusant générant le speckle sont en mouvement, les différences aléatoires de phase entre les ondes qui interfèrent entre elles changent avec le temps. Par conséquent, les grains de speckle observés varient également dans le temps. L'étude de cette variation temporelle a été exploitée pour la détermination de changements de phases, de translations, de rotations [Rabal, 2009] [Nassif, 1, 2013]. L'intérêt du speckle dynamique pour le suivi des mouvements et des fluctuations intrinsèques dans un échantillon réside dans sa capacité à suivre des mouvements allant de la dynamique Brownienne [Volpe, 2014] aux fluctuations dues à une diffusion volumique dans un milieu inerte [Persson, 1992] [Hajjarian, 2012].

Les fluctuations temporelles de l'intensité du speckle induites par le mouvement des particules diffusantes sont décrites par la fonction d'autocorrélation temporelle d'intensité du speckle. Dans un milieu dense en particules, les photons subissent en moyenne plusieurs interactions avant de sortir du milieu ; la dynamique temporelle des fluctuations est alors plus rapide que celle observée dans le cas d'un régime de diffusion simple.

#### a) Régime de diffusion simple

En un point spécifique du détecteur de position  $\mathbf{R}_d$ , la superposition de tous les champs diffusés par des particules identiques est donnée par [Wiscombe, 1980]:

$$E = E_0 F(\alpha) \sum_{n=1}^N \exp(i\mathbf{k}_{in} \cdot \mathbf{r}_n) \exp(i\mathbf{k}_{out} \cdot (\mathbf{R}_d - \mathbf{r}_n)) \quad (I.95)$$

$$E = E_0 F(\alpha) \exp(i\mathbf{k}_{out} \cdot \mathbf{R}_d) \sum_{n=1}^N \exp(-i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n) \quad (I.96)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

avec  $E_0$  l'amplitude du champ incident,  $F(\alpha)$  l'amplitude diffusée dans la direction  $\alpha$ , et  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_{out} - \mathbf{k}_{in}$  où  $\mathbf{k}_{out}$  et  $\mathbf{k}_{in}$  sont les vecteurs d'onde diffusé et incident.

$$|\Delta\mathbf{k}| = 2k_0 \sin \frac{\alpha}{2} \quad (1.97)$$

avec  $k_0 = |\mathbf{k}_{out}| = |\mathbf{k}_{in}|$ .

La fonction d'autocorrélation du champ électrique est :

$$G_1(R_d, \tau) = \langle E(R_d, t)E^*(R_d, t + \tau) \rangle \quad (1.98)$$

où  $\langle \rangle$  correspond à une moyenne d'ensemble et  $\tau$  au décalage temporel.

La fonction d'autocorrélation temporelle de l'intensité reflétant la dynamique des particules diffusantes s'écrit :

$$G_2(\tau) = \langle I(t)I(t + \tau) \rangle \quad (1.99)$$

La relation de Siegert pour un champ  $E$  aléatoire représentant la somme d'un grand nombre de variables donne :

$$G_2(\tau) = \langle I \rangle^2 + \Gamma |G_1(\tau)|^2 \quad (1.100)$$

$\Gamma$  dépend des paramètres expérimentaux notamment la stabilité et la longueur de cohérence du laser, et du nombre de grains de speckle formés sur le détecteur. Dans le cas où  $\Gamma = 1$ , la dynamique temporelle est parfaitement reflétée en considérant une surface de détection inférieure à la taille du grain de speckle [Jakeman, 1984].

La fonction de corrélation temporelle normalisée du champ électrique est :

$$g_1(\tau) = \frac{\langle E(t)E^*(t+\tau) \rangle}{\langle E(t)E^*(t) \rangle} \quad (1.101)$$

En utilisant l'équation (1.96) la fonction de corrélation temporelle s'écrit de la façon suivante :

$$g_1(\tau) = \langle \exp^{i\Delta\mathbf{k}\Delta\mathbf{r}(\tau)} \rangle \quad (1.102)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

sachant que les termes croisés correspondant à des particules dont les mouvements sont non corrélés sont nuls.  $\Delta r$  est le déplacement d'une particule pendant le temps de corrélation  $\tau$ .

Dans le cas du mouvement Brownien d'une particule, les fonctions de corrélation temporelles  $g_1(\tau)$  du champ électrique et  $g_2(\tau)$  de l'intensité sont données par [Pecora, 1985], [Weitz, 1993], [Brown, 1993], [Berne, 2000] :

$$g_1(\tau) = e^{-\frac{\Delta k^2}{6} \langle \Delta r^2(\tau) \rangle} \quad (I.103)$$

$$g_2(\tau) = 1 + e^{-\frac{4}{3} k_0^2 n_{milieu}^2 \langle \Delta r^2(\tau) \rangle} \quad (I.104)$$

avec  $k_0$  le nombre d'onde et :

$$\langle \Delta r^2(\tau) \rangle = 6D_B \tau \quad (I.105)$$

$D_B$ , le coefficient de diffusion Brownien, dépend de la dimension des particules dans le milieu, de la viscosité et de la température du milieu [Piederriere, 2, 2003]. Pour une particule sphérique de rayon  $a$  isolée dans un fluide Newtonien de viscosité dynamique  $\eta$  ne subissant pas d'écoulement,  $D_B$  est donné par [Potanin, 1993] :

$$D_B = \frac{k_B T}{6\pi\eta a} \quad (I.106)$$

$k_B$  est la constante de Boltzmann et  $T$  la température en Kelvin.

Les fonctions  $g_1(\tau)$  et  $g_2(\tau)$  deviennent alors :

$$g_1(\tau) = e^{-\frac{\Delta k^2 k_B T \tau}{6\pi\eta a}} \quad (I.107)$$

$$g_2(\tau) = 1 + e^{-\frac{4}{3} k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi\eta a}} \quad (I.108)$$

### ***b) Régime de diffusion multiple***

Pour une lumière ayant parcouru un chemin  $s$  à travers un milieu relativement dense, la fonction de corrélation normalisée du champ électrique s'écrit :

$$g_1^{(s)}(\tau) = e^{-\frac{k_0^2}{3} \langle \Delta r^2(\tau) \rangle \frac{s}{l^*}} \quad (I.109)$$

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

Le rapport  $\frac{s}{l^*}$  correspond au nombre de diffusions subies par le photon dans le milieu avec  $l^*$  le libre parcours moyen de transport. En prenant  $P(s)$  comme la distribution normalisée des longueurs de chemins, la fonction de corrélation temporelle du champ électrique  $g_1(\tau)$  correspondant à une géométrie en rétrodiffusion s'écrit :

$$g_1(\tau) = \int_0^\infty P(s) e^{-\frac{k_0^2}{3} \langle \Delta r^2(\tau) \rangle \frac{s}{l^*}} ds \quad (I.110)$$

et celle de l'intensité [Pine, 1990], [Cipelletti, 1999] :

$$g_2(\tau) = 1 + e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \langle \Delta r^2(\tau) \rangle}} \quad (I.111)$$

avec  $\gamma$  un facteur expérimental [Hajjarian, 2013] qui sera estimé à partir de l'exploitation des mesures dans le chapitre 3. Ce facteur varie fortement avec la polarisation et la taille des particules [Mackintosh, 1989]. Ces relations sont applicables pour une longueur de cohérence du laser supérieure à la longueur des chemins parcourus par les photons.

En remplaçant l'expression de  $\langle \Delta r^2(\tau) \rangle$  (équation I.105) dans les équations I.110 et I.111,  $g_1(\tau)$  et  $g_2(\tau)$  deviennent

$$g_1(\tau) = \int_0^\infty P(s) e^{-\frac{k_0^2 k_B T s \tau}{3 \pi \eta a l^*}} ds \quad (I.112)$$

$$g_2(\tau) = 1 + e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a}}} \quad (I.113)$$

Pour des milieux ayant un coefficient d'absorption non nul, et pour une géométrie en rétrodiffusion,  $g_2(\tau)$  s'exprime sous la forme [Weitz, 1993] [Boas, 1997] [Cardinaux, 2002] :

$$g_2(\tau) = e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \langle \Delta r^2(\tau) \rangle + \frac{3\mu_a}{\mu'_s}}} \quad (I.114)$$

### *c) Méthodes d'analyse temporelle du champ de speckle*

D'un point de vue expérimental, deux approches peuvent être envisagées pour accéder aux évolutions temporelles du champ de speckle : la corrélation temporelle des images de

speckle, et la THSP (Temporal History Speckle Pattern), que nous présentons successivement dans les paragraphes suivants.

**i. Corrélation temporelle des images de speckle**

Afin de remonter au mouvement intrinsèque ou d'ensemble du milieu diffusant, la méthode de corrélation temporelle des images de speckle consiste à prendre une série temporelle d'images et de calculer la corrélation entre la première et la n<sup>ième</sup> image de la série.

Ce calcul est effectué en intercorrélant des images de la série temporelle d'intensité  $I(t, x, y)$  avec la première image d'intensité  $I(t_0, x_0, y_0)$  de la manière suivante :

$$c(\tau, \Delta x, \Delta y) = \frac{\langle I(t_0, x_0, y_0)I(t, x, y) \rangle - \langle I(t_0, x_0, y_0) \rangle \langle I(t, x, y) \rangle}{[\langle I^2(t_0, x_0, y_0) \rangle - \langle I(t_0, x_0, y_0) \rangle^2] [\langle I^2(t, x, y) \rangle - \langle I(t, x, y) \rangle^2]^{1/2}} \quad (I.115)$$

avec  $\tau = t - t_0$  le temps,  $\Delta x = x - x_0$ ,  $\Delta y = y - y_0$  et  $(\Delta x, \Delta y) = (m\Delta r, n\Delta r)$ .  $m$  et  $n$  sont les positions du pixel dans l'image, et  $\Delta r$  est la taille du pixel.

Le coefficient de corrélation temporelle  $c(\tau)$  est compris entre 0 et 1 ; il est égal à l'unité pour un milieu inerte, et tend vers une valeur minimale pour un milieu en agitation lorsque  $\tau$  croît. Ce coefficient tend vers zéro pour un mouvement d'amplitude supérieure à la taille du grain de speckle. La vitesse de décroissance temporelle du coefficient de corrélation est reliée au temps caractéristique du milieu diffusant. Pour une position donnée sur l'image (donc pour un couple  $(x, y)$  défini), le coefficient de corrélation temporelle devient, en prenant  $t = t_0 + \tau$  :

$$c(\tau) = \frac{\langle I(t_0)I(t) \rangle - \langle I(t) \rangle^2}{\langle I^2(t) \rangle - \langle I(t) \rangle^2} = \frac{\langle I(t+\tau)I(t) \rangle - \langle I(t) \rangle^2}{\langle I^2(t) \rangle - \langle I(t) \rangle^2} \quad (I.116)$$

$c(\tau)$  peut être reliée à  $g_2(\tau)$  par la relation [Fercher, 1981] :

$$g_2(\tau) = 1 + \frac{c(\tau)}{\frac{\langle I^2(t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} - 1} \quad (I.117)$$

En remplaçant  $g_2(\tau)$  par son expression pour une diffusion simple (équation I.108) nous obtenons :



## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

$$c(\tau) = \left( \frac{\langle I^2(t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} - 1 \right) e^{-\frac{4}{3} k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a}} \quad (I.118)$$

Et pour des diffusions multiples (approximation de diffusion), en remplaçant  $g_2(\tau)$  par son expression en configuration de rétrodiffusion (équation I.114),  $c(\tau)$  devient :

$$c(\tau) = \left( \frac{\langle I^2(t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} - 1 \right) e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a} + \frac{3\mu_a}{\mu_s}}} \quad (I.119)$$

En absence d'absorption dans le milieu,  $c(\tau)$  s'exprimera sous la forme suivante :

$$c(\tau) = \left( \frac{\langle I^2(t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} - 1 \right) e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a}}} \quad (I.120)$$

Le temps caractéristique  $\tau_c$  d'un milieu, reflétant sa dynamique, peut alors être estimé pour une diffusion simple d'après les courbes de corrélation en faisant une régression exponentielle de la forme  $y = Ae^{-\frac{t}{\tau_c}}$ ,  $A$  étant une constante. Dans le cas de la diffusion multiple et dans le cas de l'approximation de la diffusion, la régression sera de la forme  $y = Be^{-\sqrt{\frac{t}{\tau_c}}}$  avec le temps caractéristique donné par :

$$\tau_c = \frac{\pi \eta a}{4\gamma^2 k_0^2 n_{milieu}^2 k_B T} \quad (I.121)$$

Des travaux récents [Hajjarian, 2014] ont permis d'établir la relation compensant l'effet de la diffusion et de l'absorption, tout en se plaçant entre le régime de diffusion simple et l'approximation de diffusion :

$$c(\tau) = \left( \frac{\langle I^2(t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} - 1 \right) e^{-2\gamma \left( k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a} \right)^\zeta} \quad (I.122)$$

$\zeta$  étant un facteur dépendant, comme le facteur  $\gamma$ , des conditions expérimentales et des paramètres optiques des milieux en termes de coefficient de diffusion  $\mu_s$ , coefficient d'absorption  $\mu_a$ , et facteur d'anisotropie  $g$ . Suivant ce modèle, les courbes de corrélation peuvent être ajustées par une forme exponentielle  $y = Be^{-\left(\frac{t}{\tau_c}\right)^E}$ ,  $E$  étant, comme  $\zeta$ , une constante dépendant des paramètres optiques du milieu. Dans ce travail, nous avons fait le

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

choix de nous placer dans le cadre de l'approximation de diffusion pour l'analyse des résultats obtenus compte tenu de la nature très diffusante des échantillons étudiés.

Par ailleurs, le contraste spatial  $C$  de l'image de speckle, pour une diffusion simple, est relié au temps caractéristique  $\tau_c$  [Fercher, 1981] :

$$C = \left[ \left( \frac{\tau_c}{T_{exp}} \right) \left\{ 1 - e^{-\frac{T_{exp}}{\tau_c}} \right\} \right]^{1/2} \quad (I.123)$$

avec  $T_{exp}$  le temps d'exposition de l'image de speckle.

Pour des diffusions multiples, le contraste s'écrit de la manière suivante :

$$C = \frac{1}{T} \int_0^T e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a}}} d\tau \quad (I.124)$$

En posant :  $e^{-2\gamma \sqrt{k_0^2 n_{milieu}^2 \frac{k_B T \tau}{\pi \eta a}}} = e^{-\sqrt{\frac{\tau}{\tau_c}}}$ , avec  $\sqrt{\tau} = \tau'$ , le contraste devient :

$$C = \frac{1}{T_{exp}} \int_0^{\sqrt{T_{exp}}} e^{-\kappa \tau'} 2\tau' d\tau' \quad (I.125)$$

En effectuant une intégration par parties avec  $du = e^{-\kappa \tau'} d\tau'$  et  $v = \tau'$ , on obtient :

$$C = -\frac{2\sqrt{\tau_c}}{\sqrt{T_{exp}}} e^{-\sqrt{\frac{T_{exp}}{\tau_c}}} - 2\frac{\tau_c}{T_{exp}} \left( e^{-\sqrt{\frac{T_{exp}}{\tau_c}}} - 1 \right) \quad (I.126)$$

Les relations I.123 et I.126 démontrent que le contraste constitue une méthode indirecte pour accéder à la dynamique d'un milieu. Expérimentalement, le temps caractéristique  $\tau_c$  peut être déduit de la Figure I.14 en mesurant le contraste de l'image de speckle avec un temps d'exposition  $T_{exp}$  donné.

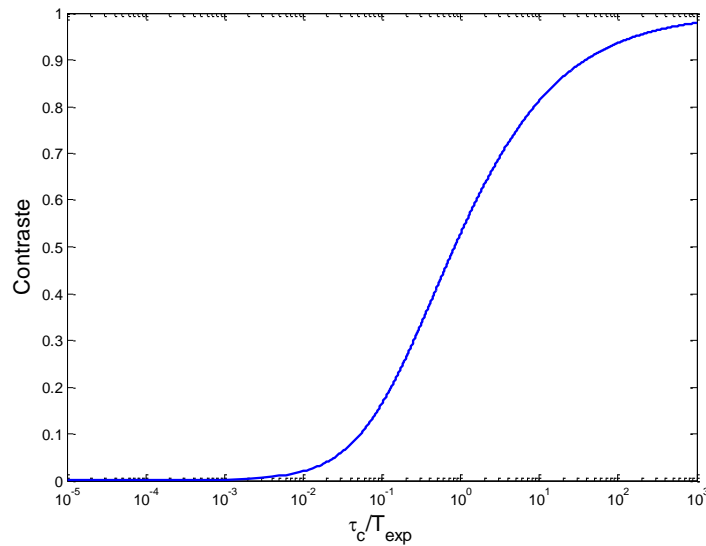


Figure I.14 Variation du contraste en fonction du rapport entre le temps caractéristique  $\tau_c$  et le temps d'exposition  $T_{exp}$  pour un régime de diffusion multiple (d'après la formule 1.126)

## ii. Temporal History Speckle Pattern

Une autre méthode statistique du second ordre de suivi de l'évolution temporelle du speckle consiste à générer une matrice temporelle : Temporal History of Speckle Pattern (THSP) [Oulamara, 1989] [Arizaga, 1999] [Braga, 2007] [Mavilio, 2010].

Une série temporelle de  $k$  images de speckle est acquise. La même colonne  $i$  est sélectionnée dans chaque image, et les  $k$  colonnes sont juxtaposées l'une à côté de l'autre suivant l'ordre chronologique de prise des images. Cette série de colonnes forme la matrice-image nommée THSP. Chaque ligne de la THSP présente la variation d'intensité d'un pixel de l'image de speckle dans le temps. Une variation d'intensité suivant la direction horizontale indique une activité dans l'échantillon. Pour un milieu diffusant présentant une faible activité, la THSP montre des formes linéaires monotones, tandis que dans le cas d'un échantillon actif, les intensités des lignes présentes dans la matrice sont discontinues et la THSP ressemble à une image de speckle (Figure I.15).

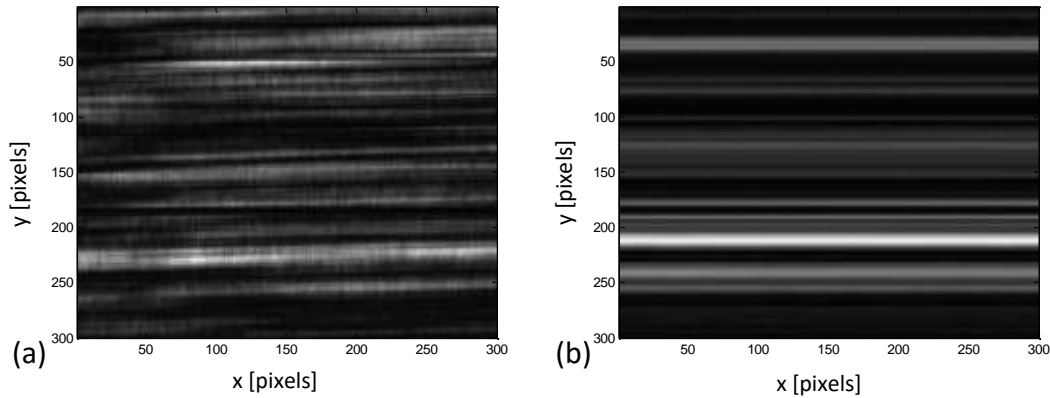


Figure I.15 Exemples de THSP pour un matériau de restauration dentaire en cours de séchage. La figure (a) correspond au début du séchage (échantillon actif) et la figure (b) à la fin du séchage (échantillon inerte)

A partir de la THSP, deux voies d'analyse peuvent être suivies : l'une exploitant la matrice de co-occurrence et l'autre le contraste de Briers.

**Calcul de la matrice de co-occurrence :**

L'étude des matrices de co-occurrence des niveaux de gris (Gray Level Cooccurrence Matrix, GLCM) consiste à analyser le comportement conjoint de couples de pixels séparés spatialement par une amplitude de quelques pixels pour prendre en compte une information de voisinage local [Rabal, 2009]. La GLCM est égale à  $[N_{(ij)} | d, \vartheta]$  où  $N_{(ij)}$  est la probabilité statistique du second ordre des changements de niveau de gris  $i$  à  $j$  à une distance de déplacement spécifique  $d(\Delta x, \Delta y)$  et un angle  $\vartheta$ . Chaque élément de la matrice représente la fréquence avec laquelle deux pixels d'intensité  $i$  et  $j$  ( $i, j = 1, \dots, n$ , avec  $n$  le nombre de niveaux de gris), séparés par une distance précise, surviennent dans un voisinage donné.

Dans notre étude, nous considérons la matrice de co-occurrence (COM) générée à partir de la THSP, et représentant le cas où  $\Delta x = 1, \Delta y = 0$ , et  $\vartheta = 0^\circ$ . La caractérisation d'un étirement horizontal est possible d'après cette méthode.  $N$  représente le nombre d'occurrences qu'un niveau de gris de valeur  $i$  soit suivi par un niveau de gris de valeur  $j$  dans le pixel suivant. La diagonale de la COM est reliée aux régions homogènes de l'image alors que les éléments éloignés de la diagonale représentent des occurrences de contraste fort (Figure I.16).

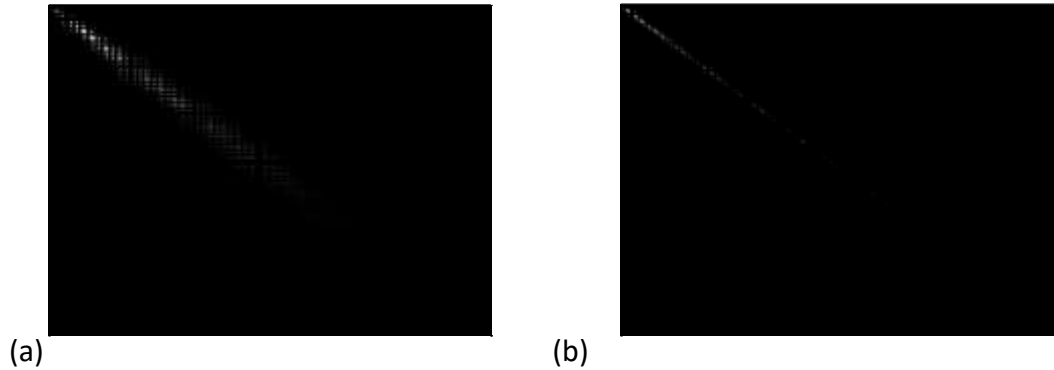


Figure I.16 Exemples de COM pour un matériau de restauration dentaire en cours de séchage. La figure (a) correspond au début du séchage (échantillon actif) et la figure (b) à la fin du séchage (échantillon inerte)

En cas d'absence d'activité, les niveaux de gris successifs sont égaux et la COM est une matrice diagonale. Par contre, une activité dans l'échantillon fait que les niveaux de gris des pixels voisins de la THSP ne sont pas égaux ; la COM n'est plus diagonale et le nombre de points hors de la diagonale augmente. La matrice de co-occurrence normalisée MCOM est calculée en divisant chaque ligne de la COM par le nombre de fois où le premier niveau de gris apparaît.

$$M_{ij} = \frac{N_{ij}}{\sum_j N_{ij}} \quad (I.127)$$

Le moment d'inertie  $IM$ , représentant la répartition des valeurs  $M_{ij}$  autour de la diagonale, est calculé à partir de la MCOM.

$$IM = \sum M_{ij}(i - j)^2 \quad (I.128)$$

Plus l'activité augmente, plus les occurrences s'éloignent de la diagonale et  $IM$  augmente.

#### **Calcul du contraste de Briers BC :**

$BC$  représente le contraste du speckle dans la direction temporelle [Briers, 1978] et est défini par :

$$BC = \frac{\langle \sigma_t^2(t) \rangle(y)}{\langle I^2 \rangle} = 1 - (1 - \rho)^2 \quad (I.129)$$

Avec  $\langle \sigma_t^2(t) \rangle_{(y)}$  la moyenne du carré de l'écart-type suivant l'axe temporel,  $\langle I^2 \rangle$  la valeur moyenne du carré de l'intensité de la THSP et  $\rho$  la proportion de l'intensité diffusée par des diffuseurs mobiles par rapport à l'intensité totale initiale.  $BC$  constitue un outil d'évaluation de l'évolution d'un système [Braga, 2007].

### I.3.3- Speckle polarisé

L'étude de la polarisation a été couplée, dans divers travaux précédents, à plusieurs techniques optiques telles que la fluorescence [Lea, 2011], la spectroscopie Raman [Jokissaari, 2015] et la spectroscopie en réflectance [Sokolov, 2004], et a prouvé son efficacité pour des diagnostics biomédicaux [Ghosh, 2011]. En couplant l'analyse du champ de speckle à l'évolution de la polarisation de la lumière, de multiples informations structurelles et temporelles concernant le milieu peuvent être déduites [Li, 2002] [Piederriere, 1, 2005] [Tchivaleva, 2013].

En effet, les modifications de la polarisation d'une onde diffusée dans un milieu sont influencées par les propriétés optiques de ce milieu. Pour un même milieu diffusant, la conservation d'un état de polarisation incident donné dépend de la nature de cet état [Hebden, 1997], [Boas, 1997], [Piederriere, 1, 2005].

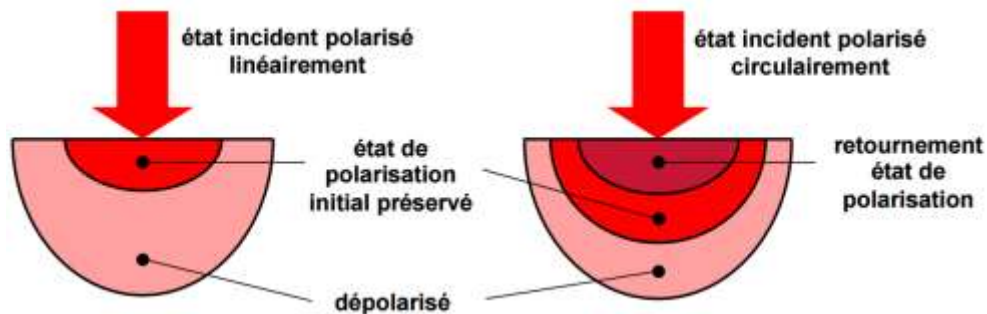


Figure I.17 Etats de polarisation des photons émergents d'un milieu diffusant pour un état de polarisation incident linéaire et circulaire [Morgan, 2000]

L'analyse de l'état de polarisation des photons émergents se fait au niveau du détecteur. Pour une polarisation linéaire incidente, les photons émergents après diffusion par les diffuseurs à la surface du milieu (voir Figure I.17) gardent leur état de polarisation initial, tandis que les photons sortants du milieu après une pénétration profonde en volume perdent la mémoire de leur polarisation suite à un grand nombre de diffusions. Pour une polarisation incidente

## Chapitre 1- Contexte général et aspects théoriques

circulaire, trois types de photons rétrodiffusés peuvent être distingués : (1) des photons avec un état de polarisation retourné par effet miroir, (2) des photons avec un état de polarisation préservé ou (3) des photons dépolarisés. Le premier cas réunit les photons ayant interagi à la surface à proximité du point d'illumination. Les photons ayant une polarisation circulaire droite en entrée ont une polarisation circulaire gauche en sortie et vice versa. Le deuxième cas correspond aux photons ayant subi des diffusions majoritairement vers l'avant et ne modifiant pas de façon importante la polarisation, et le dernier cas est associé aux photons dépolarisés après interaction en profondeur dans le milieu. Plus les photons sont multidiffusés dans le milieu, plus ils sont dépolarisés.

D'un point de vue expérimental, le degré de polarisation, donné par les équations (I.47 et I.48), peut être alors calculé à partir des images de speckle en utilisant :

$$DOP = \frac{I_{\parallel} - I_{\perp}}{I_{\parallel} + I_{\perp}} \quad (I.130)$$

$I_{\parallel}$  et  $I_{\perp}$  sont les intensités moyennes de l'image de speckle prises quand l'axe optique en analyse est respectivement parallèle et perpendiculaire à la direction de la polarisation de la lumière incidente.

Le changement de l'état de polarisation des photons après diffusion dans un milieu dépend du régime de diffusion dominant, du coefficient de diffusion, du coefficient d'anisotropie, du coefficient d'absorption, et de plusieurs paramètres intrinsèques au milieu [Ghosh, 2003] [Boulvert, 2006].

Les formalismes et outils présentés dans ce chapitre seront mis en œuvre dans les prochains chapitres dans le but de caractériser des milieux diffusants de viscosités différentes. Des analyses multi-paramètres nous permettront de détecter des changements des propriétés optiques de ces milieux diffusants, corrélés à leurs propriétés physiques, l'objectif étant de contribuer à la caractérisation de matériaux à partir de mesures optiques et au développement d'outils d'aide au diagnostic biomédical.





## Chapitre 2 – Caractérisation de milieux diffusants par speckle polarisé

L'exploitation de la diffusion cohérente afin de caractériser des milieux biologiques ou des matériaux constitue un sujet de recherche largement exploré depuis des décennies [Kunnen, 2014]. Compte tenu de la complexité du processus de diffusion dans des milieux denses, et dans le but de mieux exploiter les informations portées par la lumière diffusée, des milieux contenant des diffuseurs calibrés sont utilisés en tant que fantômes. C'est ainsi que des travaux ont été menés afin d'étudier l'effet du changement des propriétés d'échantillons (taille des diffuseurs, facteur d'anisotropie, indice de réfraction, concentration des diffuseurs...) sur la diffusion d'une lumière polarisée et de quantifier ces changements par l'analyse de la lumière diffusée. Le coefficient d'anisotropie du milieu, ainsi que le coefficient de diffusion se sont révélés être des paramètres qui influencent les variations spatiales de l'intensité, de la taille de grain, et du contraste de l'image de speckle [Hielscher, 1997] [Piederriere, 2, 2005] [Falconet, 2008] [Shukla, 2009] [Scheffold, 2012].

Par ailleurs, des simulations numériques ont également été développées pour l'étude de la diffusion cohérente. Wang et al. ont effectué des simulations de type Monte Carlo couplées à des expériences dans le but de montrer qu'il existe une relation linéaire entre les diamètres de microsphères mono-dispersées confinées dans un milieu et la lumière polarisée rétrodiffusée [Wang, 2007]. D'autres algorithmes permettant de suivre l'état de polarisation de la lumière dans des milieux contenant une taille unique de particules ont également été développés [Bartel, 2000] [Ramella-Roman, 1, 2005] [Ramella-Roman, 2, 2005] [Nassif, 2, 2013].

L'effet du comportement des diffuseurs sur la polarisation de la lumière a également été analysé. Ni et al. se sont focalisés sur la mémoire de polarisation de la lumière rétrodiffusée afin d'imager des milieux complexes [Ni, 2004]. Ils ont montré que l'utilisation d'une lumière polarisée circulairement afin d'imager des milieux contenant des particules de diamètre inférieur à la longueur d'onde améliorerait le contraste. Sun et al. ont exploité la capacité des

## Chapitre 2- Caractérisation de milieux diffusants par speckle polarisé

diffuseurs de type Rayleigh et de type Mie à maintenir la polarisation de la lumière rétrodiffusée et la dépendance de ce phénomène vis-à-vis de la concentration des particules et de la longueur d'onde de la lumière incidente [Sun, 2013].

Les propriétés polarimétriques du champ de speckle ont été étudiées sur une échelle inférieure à leur largeur de corrélation transverse [Ghabbach, 2014] [Zerrad, 2015]. La lumière non polarisée a également été employée dans des études basées sur le mouvement Brownien. Carvalho et al. ont introduit cette méthodologie et l'ont comparée au calcul de la taille de grains de speckle pour une discrimination entre des solutions de microsphères mono-dispersées de différentes tailles [Carvalho, 2007]. D'autre part, des signatures pour l'identification de milieux désordonnés sous une lumière incidente non polarisée ont été déterminées [Sorrentini, 2011] et la repolarisation de milieux diffusants a été exploitée à l'échelle d'un grain de speckle.

Toutes ces études corrélant les caractéristiques de milieux diffusants à des paramètres calculés à partir des images de speckle prouvent la capacité de l'étude de la diffusion cohérente polarisée à caractériser des milieux diffusants. Or, les milieux biologiques sont généralement composés de particules de tailles différentes et peuvent subir des changements en termes de proportions, de tailles, de coefficient d'absorption et de propriétés dynamiques en raison de leur caractère évolutif. L'étude du champ de speckle couplée à une étude polarimétrique peut donc potentiellement renseigner sur la constitution de ces milieux complexes.

Au cours de la maturation des fruits par exemple [Nassif, 2012] [Nassif, 2014], les grandes chaînes d'amidon initialement présentes dans le fruit non mature, sont hydrolysées en molécules de glucose de petite taille. Ceci représente un changement dans les tailles et les proportions des diffuseurs présents dans le fruit. De plus, la capacité du fruit à absorber la lumière à une certaine longueur d'onde est variable durant la maturation en raison de l'évolution de la proportion de pigments de chlorophylle.

Par ailleurs, dans le domaine médical, un changement en termes de tailles de diffuseurs et de coefficient d'absorption dans les organes et les tissus peut être le signe d'un dysfonctionnement ou d'une altération [Ortega-Quijano, 2011] [Pu, 2012] [Zhou, 2015] [Ceolato, 2015]. En effet, Backman et al. ont montré, par exemple, que le noyau épithélial

d'une cellule saine peut être modélisé par des sphères transparentes avec un diamètre variant entre 0.4  $\mu\text{m}$  et 0.8  $\mu\text{m}$ . Pendant les stades précancéreux, l'architecture cellulaire est modifiée : les noyaux deviennent de plus en plus grands et prennent une couleur sombre suite à des changements dans leur contenu en chromatine [Backman, 2000]. Ces transformations peuvent être vues comme une augmentation du coefficient d'absorption et un changement de proportion de taille des diffuseurs dans les cellules épithéliales.

Les travaux présentés dans ce chapitre ont pour but d'étudier les effets de l'absorption et de la diffusion sur des solutions contenant des mélanges de particules de tailles différentes, et de quantifier les contributions des petites et des grandes particules présentes dans le milieu à ces phénomènes, notamment lors du passage d'un régime de diffusion à un autre. Le travail est effectué expérimentalement et numériquement par une approche en simulation Monte Carlo. La première partie de ce chapitre est consacrée à une présentation du contexte des expériences et simulations que nous avons menées. Dans la deuxième partie, le choix des échantillons biomimétiques contrôlés en termes de taille de particules et coefficient d'absorption ainsi que le montage expérimental sont présentés. La troisième partie introduit le principe de la simulation Monte Carlo tenant compte de la polarisation de la lumière. Les résultats sont exposés dans la quatrième partie. Nous terminons par les perspectives d'extension de ce travail dans le cadre d'une étude dynamique présentée dans la dernière partie.

### II.1- Contexte

Lors du processus de la maturation des fruits [Nassif, 2012] [Nassif, 2014], l'amidon ( $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_5$ )<sub>n</sub> présent sous forme de granules semi-cristallins dans un fruit immature, est hydrolysé en glucides solubles : saccharose, glucose et maltose. Les chaînes d'amidon ayant des dimensions pouvant aller jusqu'à 200  $\mu\text{m}$  sont transformées en petites molécules dont les dimensions sont de l'ordre de quelques nm. Ceci représente un changement dans les tailles et les proportions des diffuseurs présents dans le fruit. De plus, en raison de la diminution de sa teneur en pigments de chlorophylle, la capacité du fruit à absorber la lumière à certaines longueurs d'onde évolue également au cours de la maturation, ce qui se traduit par un changement de sa couleur. La Figure II.1 montre l'évolution du degré de polarisation circulaire,

## Chapitre 2- Caractérisation de milieux diffusants par speckle polarisé

$DOP_C$ , au cours du suivi de la maturation d'un lot de poires. Les variations temporelles de ce paramètre sont corrélées aux évolutions physiologiques des fruits au cours de la maturation [Nassif, 2012].

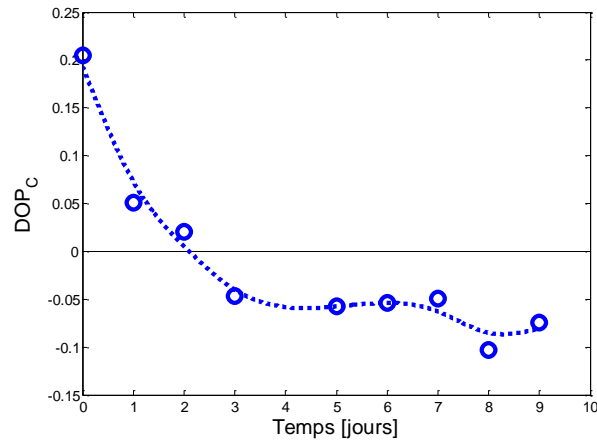


Figure II.1 Variation du degré de polarisation circulaire durant la maturation d'un lot de poires [Nassif, 2012]

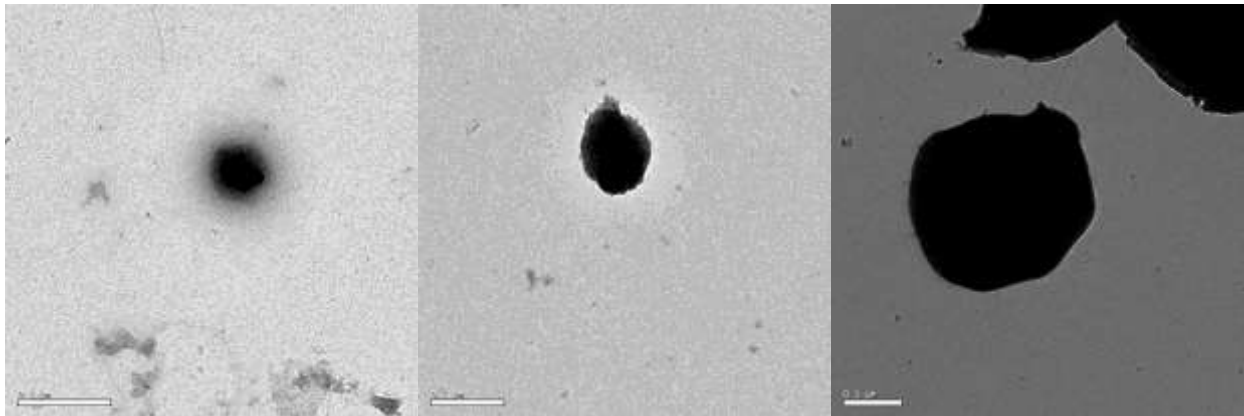
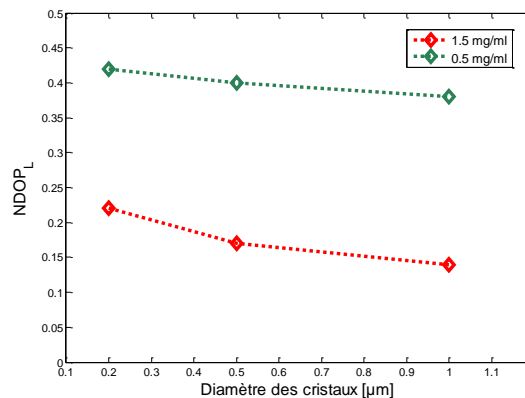


Figure II.2 Images prises en microscopie électronique du cristal parasporal sphérique produit par : a) la souche LEB-D10 b) la souche LEB-H3, et c) la souche LEB-G6 [Nassif, 2015]

L'application de la méthode d'analyse du champ de speckle à des milieux biologiques afin de les caractériser en termes de taille de particules a été également exploitée. Dans le cadre d'un projet mis en place par l'Université Saint Joseph de Beyrouth en partenariat avec l'association Libanaise 'arcenciel' visant à produire des bio-pesticides à partir de souches bactériennes isolées du sol Libanais, une étude de caractérisation d'échantillons de bio-pesticides par imagerie de speckle a été effectuée. Cette technique a démontré sa capacité à

distinguer entre eux des échantillons de différentes tailles et de différentes concentrations. Une telle méthode de tri pourrait avoir des applications intéressantes dans le cadre d'une production à grande échelle de ces bio-pesticides.

*Bacillus thuringiensis* (BT) est une bactérie produisant différentes souches d'insecticides [Rowe, 1987]. Trois souches différentes isolées du sol Libanais ont été testées afin de valider la capacité de l'analyse du champ de speckle à différencier entre eux les cristaux de différentes tailles et caractéristiques. Les diamètres des cristaux de souche LEB-D10, LEB-H3, et LEB-G6 sont respectivement de l'ordre de 0.2, 0.5 et 1  $\mu\text{m}$ . La Figure II.2 montre des images prises en microscopie électronique de ces trois types de cristaux.



**Figure II.3** Variation du degré de polarisation normalisé  $NDOP_L$  en fonction de la taille des cristaux piégés dans une matrice d'agarose pour différentes concentrations [Nassif, 2015]

Le paramètre  $NDOP_L$  est le degré de polarisation linéaire normalisé par rapport au  $DOP_L$  de la matrice d'agarose, dans laquelle les cristaux sont piégés, prise comme référence. Les Figure II.3, Figure II.4, et Figure II.5 montrent l'évolution de  $NDOP_L$ , de  $dx_{L//}$ , et  $\Delta dx_L$  en fonction du diamètre des cristaux à différentes concentrations [Nassif, 2015]. Les travaux présentés dans la suite de ce chapitre vont permettre d'expliquer les tendances observées lors de ces études préalables.

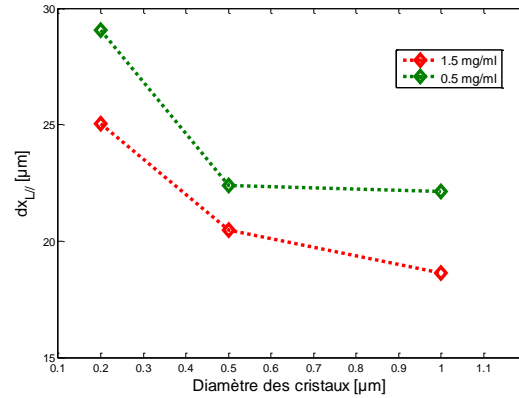


Figure II.4 Variation de la taille de grain en polarisation linéaire parallèle  $dx_{L//}$  en fonction de la taille des cristaux piégés dans une matrice d'agarose pour différentes concentrations [Nassif, 2015]

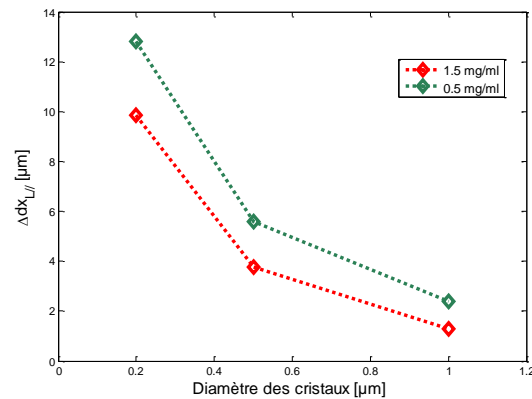


Figure II.5 Variation de la différence de taille de grain en polarisation linéaire parallèle et croisée  $\Delta dx_L = \Delta dx_{L//} - \Delta dx_{L\perp}$  en fonction de la taille des cristaux piégés dans une matrice d'agarose pour différentes concentrations [Nassif, 2015]

## II.2- Montage expérimental

Dans cette partie, une description des milieux contrôlés utilisés pendant l'étude expérimentale comme échantillons diffusants biomimétiques est présentée. Le montage mis en place pour les mesures de speckle polarisé est également décrit.

### II.2.1- Echantillons biomimétiques

Afin d'étudier la sensibilité des propriétés des champs de speckle polarisé aux modifications des propriétés de diffusion et d'absorption, des milieux biomimétiques ont été élaborés. Ces milieux sont constitués de microsphères (Polysciences Inc. USA) de polystyrène en suspension dans de l'eau dé-ionisée. A partir des solutions initiales achetées en flacon et concentrées à

2.5%, deux solutions mères contenant des billes de diamètre  $3\ \mu\text{m}$  et  $0.22\ \mu\text{m}$ , ayant un facteur d'anisotropie de 0.8129 et 0.3857 respectivement ont été préparées. Les solutions ont été diluées avec de l'eau dé-ionisée afin d'obtenir un coefficient de diffusion de  $3\ \text{mm}^{-1}$  dans les deux cas. La concentration exacte de particules donnant un tel coefficient de diffusion a été calculée à partir de la théorie de diffusion de Mie [Van de Hulst, 1981]. L'absorption a été introduite dans les échantillons en ajoutant des volumes différents d'encre de chine noire diluée donnant des coefficients d'absorption  $\mu_a$  de 0, 0.5, 1, et  $1.5\ \text{mm}^{-1}$ . Ces valeurs correspondent à l'ordre de grandeur du coefficient d'absorption des tissus biologiques à  $632.8\ \text{nm}$  [Jacques, 2013]. L'indice de réfraction des diffuseurs en polystyrène est parfaitement connu et égal à 1.59. Les tissus biologiques possèdent des propriétés optiques couvrant un domaine large de  $\mu_s$ ,  $\mu_a$ ,  $n$ , et  $g$  [Jacques, 2013]. Le choix des milieux diffusants utilisés dans notre étude repose sur le fait que ces solutions sont faciles à manipuler et à contrôler avec exactitude. Les valeurs expérimentales des coefficients de diffusion et d'absorption ont été mesurées en utilisant le dispositif représenté à la Figure II.6.

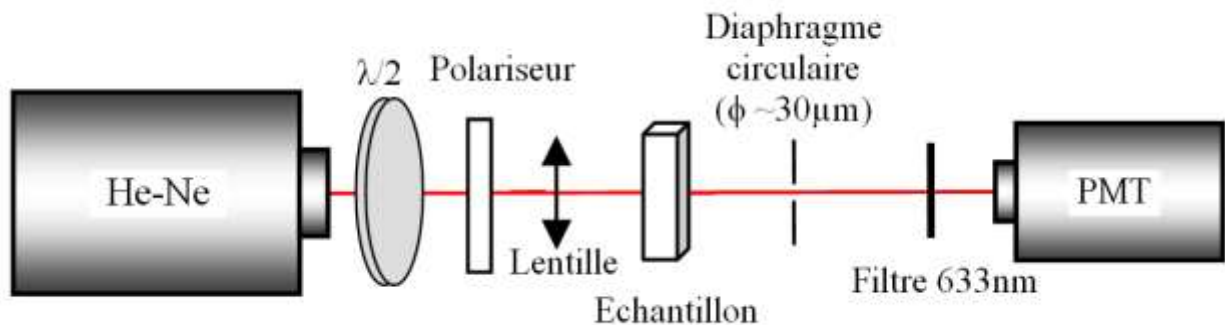
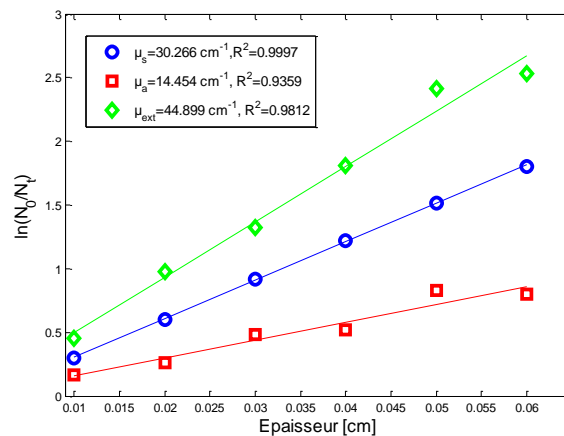


Figure II.6: Montage expérimental de mesure des coefficients de diffusion et d'absorption.  $\lambda/2$  est une lame demi-onde.  $\phi$  est le diamètre du diaphragme circulaire

Un laser Hélium-Néon, émettant une longueur d'onde de  $632.8\ \text{nm}$ , dont l'intensité est contrôlée par l'association d'une lame demi-onde et d'un polariseur, est utilisé comme source de lumière. Le faisceau est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'une lentille convergente ; un diaphragme et un filtre sont placés devant le photomultiplicateur afin d'assurer une collection des photons balistiques uniquement. Les échantillons sont placés dans des capillaires de différentes épaisseurs. L'étude est en effet basée sur la loi de Beer-Lambert pour la transmission collimatée (voir équations I.30 et I.31 au chapitre 1):

$$N_t = N_0 \exp(-\mu_{ext}L) \quad (II.1)$$

avec  $\mu_{ext} = \mu_a + \mu_s$ , où  $\mu_a$  représente le coefficient d'absorption et  $\mu_s$  le coefficient de diffusion de la solution présente dans les différents capillaires,  $L$  est l'épaisseur de la cuve,  $N_t$  et  $N_0$  sont respectivement les flux transmis et incident. Le flux transmis est obtenu après soustraction de l'Offset du détecteur. La valeur de référence  $N_0$  est mesurée à travers des capillaires de différentes épaisseurs contenant de l'eau dé-ionisée. Le rapport entre  $N_t$  et  $N_0$  permet de remonter au coefficient d'atténuation à partir de régressions linéaires. La Figure II.7 présente quelques résultats.



**Figure II.7** Variation de la fraction de lumière transmise à travers des solutions aqueuses de microbilles de polystyrène en fonction de l'épaisseur optique (en cm) des capillaires utilisés

Les solutions contenant les billes de polystyrène baignant dans de l'eau dé-ionisée présentent une absorption négligeable pour une longueur d'onde de 632.8nm, leur coefficient d'absorption  $\mu_a$  est donc considéré nul. Le coefficient d'atténuation total représente alors uniquement le coefficient de diffusion. L'erreur sur la précision relative globale de l'estimation des coefficients de diffusion et d'absorption est de l'ordre de 10%.

### II.2.2- Montage expérimental des mesures de speckle

Le montage expérimental de mesure du champ de speckle est schématisé à la Figure II.8. La source de lumière utilisée est un laser Hélium Néon polarisé délivrant une puissance de 15mW à une longueur d'onde de 632.8 nm. Elle possède une longueur de cohérence de 20 cm et un diamètre de faisceau de 1 mm à  $\frac{1}{e^2}$ .



## Chapitre 2- Caractérisation de milieux diffusants par speckle polarisé

La lumière rétrodiffusée a été recueillie (sans optique imageante) à l'aide d'une caméra CCD (modèle MTV 1082 CB, Mintron, taille du pixel=8  $\mu\text{m}$  x 8  $\mu\text{m}$ ). Les images ont été acquises avec un temps d'exposition de 0.1 ms et sont de taille 550 pixels x 576 pixels. Le temps d'exposition des images a été choisi de manière à ce qu'il soit plus court que le temps caractéristique des solutions, reflétant les fluctuations d'intensité temporelles des images de speckle, qui est de l'ordre de la milliseconde. Cette notion de temps caractéristique sera abordée en détails un peu plus loin dans le chapitre 3 de ce manuscrit.

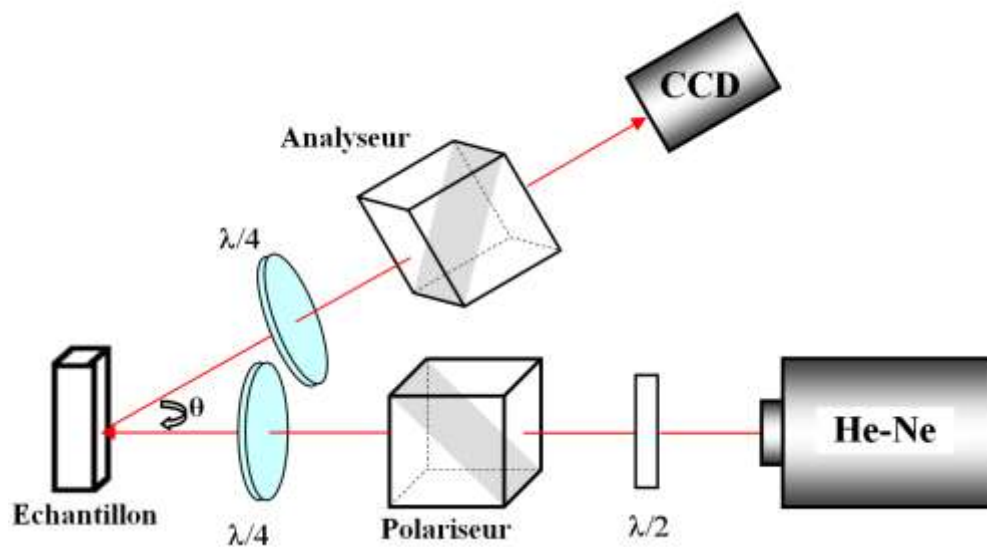


Figure II.8 Schéma du montage expérimental.  $\lambda/2$  est une lame demi-onde,  $\lambda/4$  est une lame quart-d'onde

Quatre configurations de polarisations différentes sont considérées : linéaire et circulaire, parallèles et croisées. Une lame demi-onde est placée à la sortie du laser afin d'assurer un contrôle du flux délivré, et un polariseur sert à contrôler la polarisation de la lumière incidente sur l'échantillon. Un analyseur placé avant la caméra sert à sélectionner les photons diffusés arrivant sur le détecteur. Deux lames quart d'onde sont couplées avec les deux polariseurs afin de générer et analyser une polarisation circulaire.

L'angle  $\theta$  entre la direction du faisceau laser incident et l'axe de la caméra est égal à  $21^\circ$  ; cet angle est choisi expérimentalement afin de s'affranchir de la réflexion spéculaire. La distance séparant l'échantillon et la caméra, conditionnant la taille de grains de speckle, est égale à 17 cm.

### II.3- Simulation numérique par méthode Monte Carlo

Plusieurs algorithmes ont été développés afin de modéliser le processus de diffusion de la lumière par des milieux complexes. La méthode Monte Carlo est historiquement utilisée à cette fin [Wilson, 1983], [Flock, 1989], [Parhl, 1989], [Wang, 1992], [Bartel, 2000], [Ramella-Roman, part 1, 2005], [Ramella-Roman, part 2, 2005].

Certains de ces algorithmes permettant de suivre l'état de polarisation de la lumière diffusée consistent à associer au photon un vecteur de Stokes qui est mis à jour après chaque diffusion. Des matrices de Mueller sont associées aux particules diffusantes et, au final, la matrice de Mueller de l'ensemble du milieu peut être déterminée. Les états de polarisation sont définis par rapport à un plan de référence qui est mis à jour après chaque diffusion.

Le suivi du plan de référence décrivant la polarisation de la lumière peut s'effectuer suivant trois méthodes différentes : la méthode des plans méridiens [Chandrasekhar, 1950], la méthode d'Euler [Bartel, 2000], et la méthode des quaternions [Ramella-Roman, part 1, 2005] [Ramella-Roman, part 2, 2005]. La méthode que nous avons adoptée dans notre algorithme est celle des plans méridiens, utilisée dans le programme développé par J. Ramella-Roman et adaptée à notre géométrie expérimentale pour la collection des photons diffusés au niveau du détecteur.

Dans cette partie, la diffusion de la lumière polarisée dans les milieux formés de microbilles en suspension dans des solutions aqueuses va être modélisée numériquement. Cette modélisation sera ensuite comparée à des résultats expérimentaux obtenus avec des mélanges de particules sphériques de différents diamètres (0.22  $\mu\text{m}$  et 3  $\mu\text{m}$ ) à différentes proportions. La Figure II.9 illustre la géométrie retenue pour modéliser un milieu d'épaisseur  $L$  et d'indice de réfraction  $n_0$  contenant des sphères d'indice  $n_1$ . La distance entre la caméra et le milieu diffusant est notée  $D$ . Chaque photon est suivi individuellement au cours de sa propagation et de sa diffusion dans le milieu, jusqu'à ce qu'il en sorte (en rétrodiffusion ou transmission) ou qu'il soit perdu par absorption.

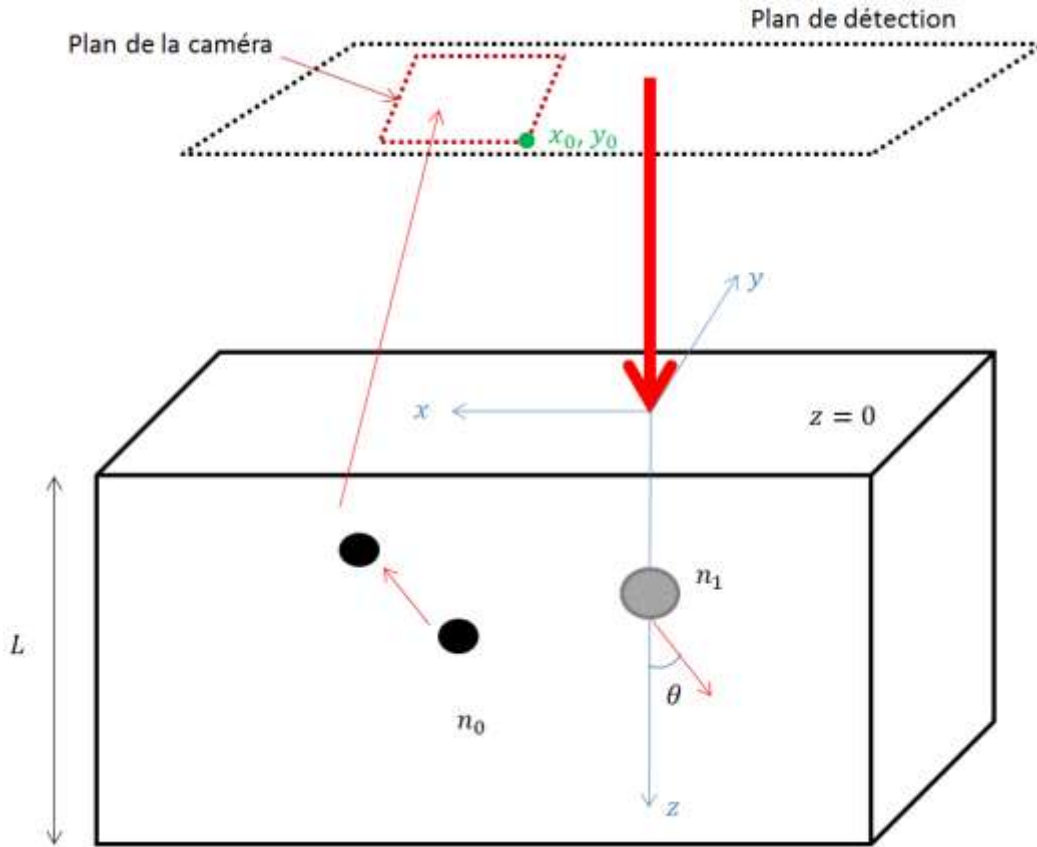


Figure II.9 Schéma de la diffusion de la lumière par un milieu contenant des particules sphériques. Le milieu d'épaisseur  $L$  et d'indice de réfraction  $n_0$  contient des sphères d'indice  $n_1$ . La distance entre la caméra et le milieu diffusant est notée  $D$ .

### II.3.1- Méthode des plans méridiens

L'étude de la diffusion des photons par la méthode des plans méridiens date des années 50 [Chandrasekhar, 1950]. Les directions des photons avant et après diffusion sont représentées à la Figure II.10.

La direction du photon, représentée par l'angle de diffusion  $\theta$  et l'azimut  $\varphi$  (angle fait par le plan de diffusion et le plan méridien), est caractérisée par les 3 cosinus directeurs  $[u_x, u_y, u_z]$ .  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{P}'$  représentent les directions du photon avant et après chaque diffusion. Le plan COA formé par  $\mathbf{P}$  et l'axe des  $z$  représente le plan méridien avant diffusion.

Après chaque diffusion, un nouveau plan méridien formé par l'axe des  $z$  et  $\mathbf{P}'$  est obtenu. Le vecteur de Stokes décrivant l'état de polarisation du photon dans chaque plan est transformé à chaque fois que le plan méridien change.

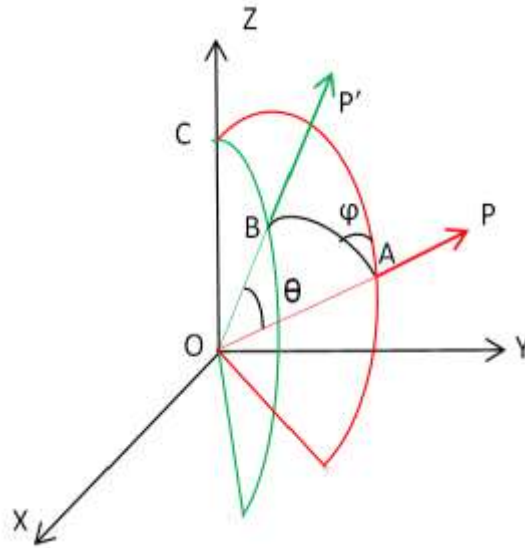


Figure II.10 Géométrie des plans méridiens.  $P$  représente la direction initiale du photon avant diffusion, et  $P'$  sa direction après diffusion.  $\theta$  est l'angle de diffusion et  $\varphi$  l'azimut

### II.3.2- Démarche de la simulation

#### a) Initialisation des propriétés des photons

La première étape consiste à initialiser les propriétés du photon lancé dans le milieu diffusant. Initialement, tous les photons arrivent en incidence normale par rapport au milieu ; ils ont une direction parallèle à l'axe des  $z$  et sont associés à un cosinus directeur  $[u_x, u_y, u_z] = [0,0,1]$ .

Les coordonnées initiales du photon à l'origine, au moment où il est prêt à effectuer sa première interaction avec le milieu, sont  $(x=0, y=0, z=0)$ .

Un vecteur de Stokes initial  $S_i = [I, Q, U, V]^T$  est associé à chaque photon incident (voir équation (I.44)). Dans cette étude, nous considérons des polarisations incidentes linéaires horizontales ou circulaires droites. Dans le cas d'une polarisation linéaire horizontale incidente, le vecteur de Stokes associé aux photons est  $S = [1 \ 1 \ 0 \ 0]^T$  alors que dans le cas d'une polarisation circulaire droite incidente,  $S = [1 \ 0 \ 0 \ 1]^T$ .

***b) Initialisation des propriétés du milieu diffusant***

Les milieux modélisés ici sont des solutions aqueuses contenant des particules sphériques en Polystyrène de différentes tailles. L'indice du milieu correspond à l'indice de l'eau avec  $n_0 = 1.33$  à une température de 20°C et celui des particules diffusantes correspond à l'indice du Polystyrène avec  $n_1 = 1.59$ . Des milieux contenant des particules ayant deux tailles différentes avec des proportions variables sont essentiellement étudiés.

Deux solutions mères contenant chacune une taille unique de particules de diamètre  $\phi_1$  ou  $\phi_2$  et un même coefficient de diffusion  $\mu_1 = \mu_2$ , sont préparées et mélangées entre elles avec différentes proportions en volume. Par conséquent, le coefficient de diffusion total du milieu  $\mu_{milieu}$  (mélange des solutions mères 1 et 2) correspond au coefficient de diffusion de la solution 1,  $\mu_1$  et 2,  $\mu_2$  avec :

$$\mu_{milieu} = \mu_1 = \mu_2 \quad (II.2)$$

En se déplaçant dans le milieu, le photon peut être diffusé soit par une particule de diamètre  $\phi_1$ , soit par une particule de diamètre  $\phi_2$ . La probabilité de chacun des événements est proportionnelle aux proportions de volume  $\frac{V_1}{V_1+V_2}$  et  $\frac{V_2}{V_1+V_2}$  des solutions mères 1 ou 2 formant le milieu diffusant de volume  $V_1 + V_2$ .

Avant chaque diffusion, un nombre aléatoire  $\xi_1$  est choisi entre 0 et 1. Le diamètre des particules ayant la proportion de volume la plus petite est noté  $\phi_{min}$  et leur proportion  $\frac{V_{min}}{V_{milieu}}$ . Tandis que le diamètre des particules ayant la proportion de volume la plus grande est noté  $\phi_{max}$  et leur proportion  $\frac{V_{max}}{V_{milieu}}$ .  $\xi_1$  est comparé à cette proportion :

- Si  $\xi_1 < \frac{V_{min}}{V_{milieu}}$ , la particule que rencontre le photon est de diamètre  $\phi_{min}$ .
- Si  $\xi_1 \geq \frac{V_{min}}{V_{milieu}}$ , la particule que rencontre le photon est de diamètre  $\phi_{max}$ .

Le diamètre de la particule rencontrée va être utilisé par la suite dans la simulation de la diffusion.

### c) Déplacement du photon

Chaque photon lancé se déplace dans le milieu d'une distance  $s$  prise aléatoirement, mais en relation avec le coefficient d'atténuation du milieu  $\mu_{ext}$  qui est la somme du coefficient de diffusion  $\mu_s$  et d'absorption  $\mu_a$  du milieu diffusant.  $s$  est calculée à l'aide d'un deuxième nombre aléatoire  $\xi_2 \in ]0,1]$  suivant la relation suivante [Witt, 1977] :

$$s = -\frac{\ln \xi_2}{\mu_a + \mu_s} = -\frac{\ln \xi_2}{\mu_{ext}} \quad (II.3)$$

La position du photon après son déplacement dans le milieu est modifiée et les nouvelles coordonnées  $(x', y', z')$  sont données par :

$$x' = x + s * u_x \quad (II.4)$$

$$y' = y + s * u_y \quad (II.5)$$

$$z' = z + s * u_z \quad (II.6)$$

### d) Modélisation de l'absorption

L'absorption du milieu est prise en compte dans la simulation en considérant que son effet consiste à atténuer l'intensité du faisceau sans affecter sa trajectoire [Ramella-Roman, 2005]. La méthode des poids statistiques est alors utilisée. Cette méthode consiste à atténuer le poids statistique du photon après chaque diffusion. Le poids  $w$  du photon est diminué d'un facteur  $\Delta w$  après sa diffusion, avec :

$$\Delta w = w * \frac{\mu_a}{\mu_{ext}} \quad (II.7)$$

Après une diffusion  $i$ , le poids du photon devient :

$$w_i = w_{i-1} - w_{i-1} \frac{\mu_a}{\mu_{ext}} = w_{i-1} \frac{\mu_s}{\mu_{ext}} \quad (II.8)$$

Quand le poids du photon arrive à une valeur limite  $w_{wdt}$  (weight of death), un tirage équiprobable est effectué et le photon est considéré mort ou toujours vivant après ce tirage comme dans les méthodes Monte Carlo standards [Ramella-Roman, 1, 2005].

### e) Modélisation de la diffusion

La modélisation de la diffusion consiste à simuler l'angle de diffusion  $\theta$  et l'azimut  $\varphi$  avec  $\theta \in [0, \pi]$  et  $\varphi \in [0, 2\pi]$ . Pour une diffusion classique ne tenant pas compte de la polarisation de la lumière, la probabilité de distribution du cosinus de l'angle  $\theta$  est décrite par la fonction de diffusion proposée par Henyey et Greenstein [Greenstein, 1941] [Jacques, 1987]. Dans le cadre de notre étude qui prend en compte la polarisation des photons, les angles  $\theta$  et  $\varphi$  sont choisis à partir d'une méthode de réjection et d'une fonction de phase propre aux diffuseurs dans le milieu diffusant considéré. La fonction de phase pour des diffuseurs sphériques est donnée par [Wiscombe, 1980] :

$$P(\theta, \varphi) = s_{11}(\theta) * I + s_{12}(\theta) * [Q * \cos(2\varphi) + U * \sin(2\varphi)] \quad (II.9)$$

où  $s_{11}(\theta)$  et  $s_{12}(\theta)$  sont des éléments de la matrice de Mueller  $M(\theta)$  propre au diffuseur considéré. Ces éléments sont calculés par la théorie de Mie.

La méthode de réjection utilisée afin de choisir les angles  $\theta$  et  $\varphi$  consiste à calculer deux angles aléatoires  $\theta_{rand}$  (entre 0 et  $\pi$ ) et  $\varphi_{rand}$  entre (0 et  $2\pi$ ) et une fonction de phase  $P_{rand}$  (entre 0 et 1).  $\theta_{rand}$  et  $\varphi_{rand}$  sont considérés comme l'angle de diffusion et l'azimut dans le cas où  $P_{rand} \leq P_{rand}(\theta_{rand}, \varphi_{rand})$ . Dans le cas où  $P_{rand} > P_{rand}(\theta_{rand}, \varphi_{rand})$ , deux autres angles  $\theta_{rand}$  et  $\varphi_{rand}$  sont générés avec une autre fonction de phase  $P_{rand}$  jusqu'à ce que la condition soit validée.

L'étape suivante consiste à calculer les nouveaux cosinus directeurs du photon :

$$u'_x = \frac{\sin\theta}{\sqrt{1-u_z^2}} (u_x u_z \cos\varphi - u_y \sin\varphi) + u_x \cos\theta \quad (II.10)$$

$$u'_y = \frac{\sin\theta}{\sqrt{1-u_z^2}} (u_y u_z \cos\varphi + u_x \sin\varphi) + u_y \cos\theta \quad (II.11)$$

$$u'_z = -\sin\theta \cos\varphi \sqrt{1-u_z^2} + u_z \cos\theta \quad (II.12)$$

## Chapitre 2- Caractérisation de milieux diffusants par speckle polarisé

Pour les photons ayant une direction très proche de la normale au milieu ( $|u_z| > 0.99999$ ), les relations suivantes peuvent être utilisées :

$$u'_x = \sin\theta \cos\varphi \quad (\text{II.13})$$

$$u'_y = \sin\theta \sin\varphi \quad (\text{II.14})$$

$$u'_z = \text{sign}(u_z) \cos\theta \quad (\text{II.15})$$

Avec  $\text{sign}(u_z) = 1$  si  $u_z > 0$  et  $-1$  si  $u_z < 0$ .

### *f) Suivi de la polarisation du photon*

Après diffusion, le suivi de l'état de polarisation du photon est effectué en trois étapes : (i) la rotation du vecteur de Stokes, (ii) la multiplication de ce vecteur par la matrice de diffusion de la particule, et (iii) le passage du plan de référence au nouveau plan méridien. Ces étapes permettent d'obtenir un nouveau vecteur de Stokes  $\mathbf{S}_{new}$  à partir de l'ancien  $\mathbf{S}$ , à travers la relation suivante :

$$\mathbf{S}_{new} = R(\theta_2).M(\theta).R(\varphi)\mathbf{S} \quad (\text{II.16})$$

Les détails de ce calcul sont exposés ci-après.

#### **i. Rotation du vecteur de Stokes**

La rotation du vecteur de Stokes  $\mathbf{S}$  est effectuée afin de placer ce vecteur dans le plan de diffusion, puisque la matrice de diffusion définissant l'interaction entre un photon et une particule sphérique est établie par rapport à ce plan. Le vecteur  $\mathbf{S}'$  dans le plan de diffusion est obtenu en multipliant le vecteur de Stokes initial  $\mathbf{S}$  par une matrice de rotation  $R(\varphi)$  comme suit :

$$\mathbf{S}' = R(\varphi).\mathbf{S} \quad (\text{II.17})$$

Avec :

$$R(\varphi) = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(2\varphi) & \sin(2\varphi) & 0 \\ 0 & -\sin(2\varphi) & \cos(2\varphi) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{II.18})$$



**ii. Multiplication du vecteur de Stokes par la matrice de Mueller de chaque diffuseur**

Le nouveau vecteur de Stokes  $\mathbf{S}'$  est multiplié par la matrice de Mueller  $M(\theta)$  propre à chaque particule diffusante et déterminant ses propriétés de diffusion.

Un vecteur de Stokes  $\mathbf{S}''$  est alors calculé comme suit :

$$\mathbf{S}'' = M(\theta) \cdot \mathbf{S}' \quad (II.19)$$

avec :

$$M(\theta) = \begin{bmatrix} s_{11}(\theta) & s_{12}(\theta) & 0 & 0 \\ s_{12}(\theta) & s_{11}(\theta) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & s_{33}(\theta) & s_{34}(\theta) \\ 0 & 0 & -s_{34}(\theta) & s_{33}(\theta) \end{bmatrix} \quad (II.20)$$

où  $s_{11}(\theta)$ ,  $s_{12}(\theta)$ ,  $s_{33}(\theta)$ , et  $s_{34}(\theta)$  sont les fonctions d'intensité calculées d'après la théorie de Mie [Wiscombe, 1980] :

$$s_{11}(\theta) = \frac{1}{2} [|S_2(\theta)|^2 + |S_1(\theta)|^2] \quad (II.21)$$

$$s_{12}(\theta) = \frac{1}{2} [|S_2(\theta)|^2 - |S_1(\theta)|^2] \quad (II.22)$$

$$s_{33}(\theta) = \frac{1}{2} [S_2(\theta)S_1(\theta) + S_2(\theta)S_1(\theta)] \quad (II.23)$$

$$s_{34}(\theta) = \frac{i}{2} [S_2(\theta)S_1(\theta) - S_2(\theta)S_1(\theta)] \quad (II.24)$$

$S_1(\theta)$  et  $S_2(\theta)$  sont les amplitudes complexes de l'onde diffusée dépendant de l'angle de diffusion  $\theta$ , de la polarisation, de l'indice relatif  $m$  de la particule par rapport au milieu et de la taille relative  $x$  des diffuseurs (équations I.4 et I.5). Le calcul de  $S_1(\theta)$  et  $S_2(\theta)$  a déjà été présenté au chapitre 1 (équations I.2 à I.19).

### iii. Changement du plan de référence

L'étape suivante consiste à passer au nouveau plan méridien. Le photon appartiendra à ce nouveau plan de référence après diffusion. Le vecteur de Stokes  $S''$  subit donc une nouvelle rotation :

$$S_{new} = R(-\theta_2).S'' \quad (II.25)$$

Avec  $\theta_2$  calculé à partir de l'équation de Hovenier [Hovenier, 1968] :

$$\cos(\theta_2) = \pm \frac{-u_z + u'_z \cos \theta}{\sqrt{(1 - \cos^2 \theta)(1 - u'_z{}^2)}} \quad (II.26)$$

$u_z$  et  $u'_z$  sont les cosinus directeurs avant et après diffusion.  $\theta$  est l'angle de diffusion, et le signe + est considéré quand  $\varphi \in ]\pi; 2\pi[$ , et le signe - quand  $\varphi \in ]0; \pi[$ .

#### *g) Sortie du milieu*

Le destin du photon est déterminé en considérant son abscisse  $z$  au cours de son déplacement. En effet, le photon va être diffusé dans le milieu  $n$  fois jusqu'à ce qu'il soit transmis, absorbé, diffusé, ou rétrodiffusé hors du milieu. Par analogie avec la configuration expérimentale, les simulations entreprises dans ce manuscrit se focalisent sur les photons rétrodiffusés et captés par la caméra suivant une géométrie bien particulière (voir schéma de la Figure II.8). Par conséquent, un photon transmis ou absorbé est considéré comme mort.

Après chaque diffusion, une boucle est utilisée dans le programme afin de décider de l'étape suivante que va subir le photon en fonction de son abscisse  $z$  :

- Un photon d'abscisse  $z=0$  se trouve à la surface du milieu diffusant. L'indice de réfraction de l'air étant différent de celui du milieu en question, le photon subira une réfraction, un changement d'angle de diffusion  $\theta$  et donc un changement de son cosinus directeur. D'après la valeur de  $u_z$ , trois scénarii sont possibles :
  - (i) Pour  $u_z = 0$  : le photon est perdu,
  - (ii) Pour  $u_z > 0$  : le photon rentrera dans le milieu, et donc dans la boucle de diffusion,

- (iii) Pour  $u_z < 0$  : le photon sortira du milieu après un changement de son poids, et continuera son chemin avec un pas de 0.009 cm choisi arbitrairement. Il sera détecté si ses coordonnées lors de son arrivée dans le plan de détection sont incluses dans la plage des coordonnées du plan de la caméra.
- Un photon ayant  $z = L$ ,  $L$  étant l'épaisseur du milieu, est transmis et donc considéré comme mort.
- Un photon ayant  $0 < z < L$  restera dans la boucle de diffusion.

### II.3.3- Calcul des degrés de polarisation simulés

Pendant les simulations,  $10 \times 10^6$  photons sont lancés simultanément dans le milieu avec un vecteur de Stokes correspondant soit à une polarisation linéaire, soit à une polarisation circulaire. Les vecteurs de Stokes de sortie des photons arrivant sur le détecteur sont enregistrés et permettent le calcul des degrés de polarisation linéaires et circulaires.  $DOP_L$  et  $DOP_C$  sont calculés comme suit :

$$DOP_L = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2}}{I} \quad (II.27)$$

Et

$$DOP_C = \frac{V}{I} \quad (II.28)$$

Compte tenu de la symétrie du montage expérimental, le terme  $U$ , qui est la différence des intensités des composantes polarisées linéaires à  $45^\circ$  et  $-45^\circ$  dans le plan d'onde, est négligeable par rapport à  $Q$ . Par conséquent le calcul du  $DOP_L$  peut se résumer à :

$$DOP_L = \frac{Q}{I} \quad (II.29)$$

## II.4- Etude spatiale polarimétrique

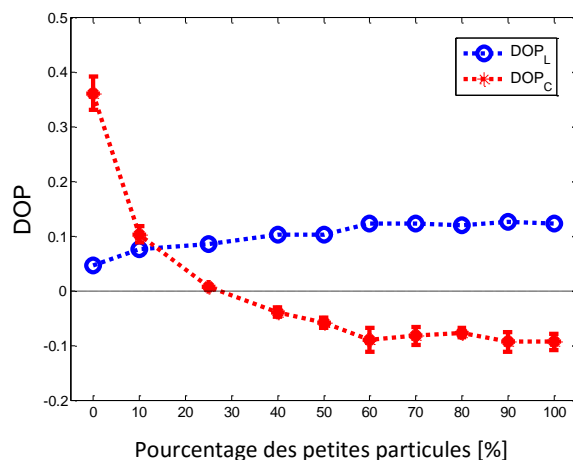
### II.4.1- Effet de la distribution de taille des particules (échantillons biomimétiques)

Comme mentionné précédemment, quand un milieu est composé d'une distribution de particules de taille unique, la théorie de la diffusion applicable est définie par la comparaison de

la longueur d'onde à la taille des particules présentes dans le milieu. Or les milieux biologiques sont des milieux complexes, comportant des particules de tailles différentes. C'est pourquoi l'étude présentée dans ce chapitre traite la diffusion de la lumière dans un milieu composé de plusieurs tailles de particules afin de mieux comprendre le processus de diffusion dans de tels milieux [Abou Nader, 1, 2015].

Dans ce paragraphe, l'influence d'une variation de la taille des particules sur les degrés de polarisation de la lumière diffusée et sur la taille des grains de speckle est évaluée, à la fois expérimentalement et en simulation Monte Carlo. Les milieux fantômes sont contrôlés en termes de taille et proportion de particules : les particules mises en suspension dans l'eau dé-ionisée ont des diamètres de 0.22 et 3  $\mu\text{m}$  avec différentes proportions volumiques. Les particules de diamètre 0.22  $\mu\text{m}$  sont dites petites particules et celles de diamètre 3  $\mu\text{m}$  sont dites grandes particules (par rapport à la longueur d'onde incidente).

Nous effectuons, lorsque cela est possible, une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulation.



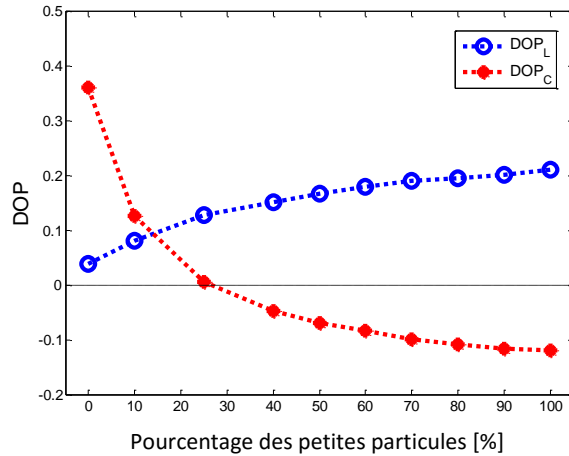
**Figure II.11** Variation des degrés de polarisation linéaire et circulaire expérimentaux en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$

La Figure II.11 illustre la variation des degrés de polarisation circulaire et linéaire mesurés en fonction de l'augmentation de la proportion volumique de petites particules dans l'échantillon. Dans un milieu contenant uniquement des grands diffuseurs (0% petites particules), la diffusion prédominante se fait vers l'avant ( $g=0.8129$ ) et la lumière rétrodiffusée dans le cas d'une polarisation circulaire incidente est moins dépolarisée que dans le cas d'une

polarisation linéaire. L'inverse se produit dans le cas d'un milieu contenant uniquement des petits diffuseurs (100% de petites particules) où la diffusion est plus isotrope ( $g=0.3857$ ).  $DOP_L$  croît légèrement avec le pourcentage croissant de petites particules dans le milieu, tandis que  $DOP_C$  diminue et change de signe à partir du moment où la proportion des petits diffuseurs dépasse 25% dans le milieu. De plus, on remarque que  $DOP_C$  prend des valeurs inférieures à celles de  $DOP_L$  dès que la proportion des petites particules devient supérieure à 10%. Ce comportement indique une transition d'un régime de diffusion de Mie à un régime de Rayleigh dans l'échantillon. En effet, des études antérieures ont montré que le comportement polarimétrique de la lumière, dans le cas d'un mélange, est dominé par les petites particules [Piederriere, 2, 2005]. Ceci a été confirmé par l'évolution du  $DOP_C$  pour des pourcentages spécifiques de 10 et 25% de petits diffuseurs.

L'évolution des degrés de polarisation circulaire et linéaire simulés en fonction de la proportion de particules de petite taille est présentée à la Figure II.12. Ces  $DOP$  ont été calculés en utilisant le programme de simulation Monte Carlo adapté à notre géométrie expérimentale. La taille des particules, les indices de réfraction des sphères de Polystyrène et de l'eau, la concentration et la proportion des particules, le coefficient de diffusion, l'angle de détection et la distance entre l'échantillon et le détecteur ont été fixés afin de correspondre aux paramètres expérimentaux.

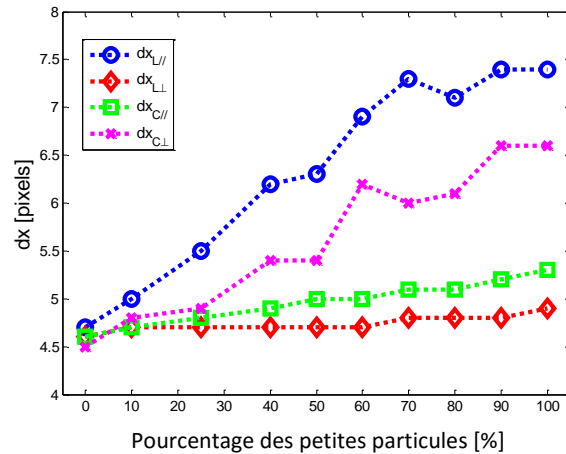
En comparant les résultats simulés présentés à la Figure II.12 aux résultats expérimentaux présentés à la Figure II.11, un accord entre la simulation et l'expérience est constaté.  $DOP_L$  augmente avec l'augmentation de la proportion de petits diffuseurs dans le milieu, et  $DOP_C$  diminue et prend des valeurs négatives dès que le volume des petits diffuseurs dans le mélange dépasse 25%, comme observé dans les résultats expérimentaux.



**Figure II.12** Variation des degrés de polarisation linéaire et circulaire calculés en simulation Monte Carlo en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans un milieu contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$

Pour un milieu contenant uniquement des grandes particules (0% sur l'axe des abscisses de la Figure II.12), la simulation Monte Carlo a pu estimer les valeurs de  $DOP_L$  et  $DOP_C$  avec 0.2% d'écart par rapport aux valeurs expérimentales. La proportion de petites particules pour laquelle  $DOP_C$  passe aux valeurs négatives a été exactement estimée à la valeur de 25%, et des écarts n'excédant pas 10% sont constatés pour l'estimation de  $DOP_C$ . Par contre, on remarque que l'écart entre les valeurs simulées et les valeurs expérimentales du  $DOP_L$  croît au fur et à mesure de l'augmentation de la proportion des petites particules. Cette différence pourrait être due au fait que les petits diffuseurs ont tendance à générer une polarisation supplémentaire dans le cas d'une lumière polarisée linéairement, comme signalé par Bartel et Hielsher [Bartel, 2000]. En effet, des éléments de la matrice de Mueller des petits diffuseurs sont responsables de cette repolarisation. Un tel cas de figure ne se présente pas pour une lumière polarisée circulairement ou des milieux constitués de grandes particules.

Une autre piste éventuelle pour justifier ces écarts pourrait résider dans l'absence de prise en compte des effets d'interfaces (relations de Fresnel) dans la simulation [Chang, 2004] [Ramella-Roman, 1, 2005].



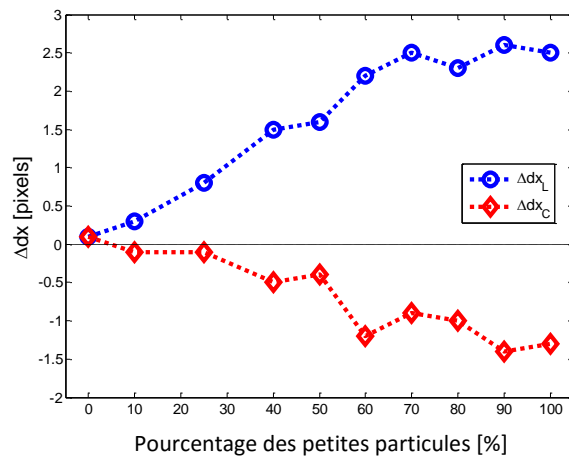
**Figure II.13** Variation des tailles de grains horizontales  $dx$  expérimentales pour différentes polarisations en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$ . Les barres d'erreur verticales sont de l'ordre de 0.25 pixels

La taille des diffuseurs dans un milieu influe également sur la taille des grains de speckle  $dx$  comme montré à la Figure II.13. La taille de grains  $dx$  croît dans les quatre configurations expérimentales considérées avec l'augmentation de la proportion des petits diffuseurs. Cette évolution a déjà été constatée dans des travaux antérieurs [Carvalho , 2007]. En outre, lorsque la taille des diffuseurs est inférieure à la longueur d'onde utilisée, une lumière analysée en polarisation circulaire croisée génère une taille de grains plus large qu'une lumière analysée en polarisation circulaire parallèle  $dx_{c\perp} > dx_{c\parallel}$  [Piederriere, 2, 2005]. Cette signature commence à apparaître dans les milieux avec de faibles proportions de petites particules (supérieures à 10%). Cette observation est cohérente avec les résultats précédemment rapportés en  $DOP_L$  et  $DOP_C$ . En effet, dès que  $dx_{c\perp}$  atteint des valeurs supérieures à  $dx_{c\parallel}$ , une transition d'un régime de Mie à un régime de Rayleigh se produit [Piederriere, 2, 2005].

La différence entre les tailles de grains de speckle en polarisation d'analyse linéaire parallèle et croisée  $\Delta dx_L$  et circulaire parallèle et croisée  $\Delta dx_C$  est illustrée à la Figure II.14 en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans le milieu. Une augmentation de la valeur absolue de ces paramètres est remarquée. En effet, dans le cas d'une polarisation linéaire,  $\Delta dx_L$  varie de 0.3 à 2.5 pixels, tandis que dans le cas d'une lumière polarisée circulairement,  $|\Delta dx_C|$  augmente de 0.1 à 1.3 pixels en passant d'un milieu contenant uniquement des grands

diffuseurs à un autre ne contenant que des petits diffuseurs. Ces observations montrent que l'utilisation de différentes polarisations dans le cadre du calcul de la taille de grains de speckle peut, non seulement fournir une estimation relative de la variation de la proportion de taille de diffuseurs dans le milieu, mais aussi une détermination précise de cette proportion. Cet effet a également été observé dans une étude précédente où  $\Delta dx_L$  augmentait avec la diminution de la taille des particules dans des milieux biologiques [Nassif, 2015].

L'accès aux valeurs de la taille des grains de speckle par la simulation Monte Carlo n'a pas été exploité. Ce paramètre est relié au diamètre de la tache de diffusion et à la géométrie de l'étude. Le calcul sera possible en estimant le diamètre de cette tache. Un travail de délimitation et reconstitution de la tache de diffusion en Monte Carlo sera envisagé comme perspective à l'étude présentée dans ce chapitre.

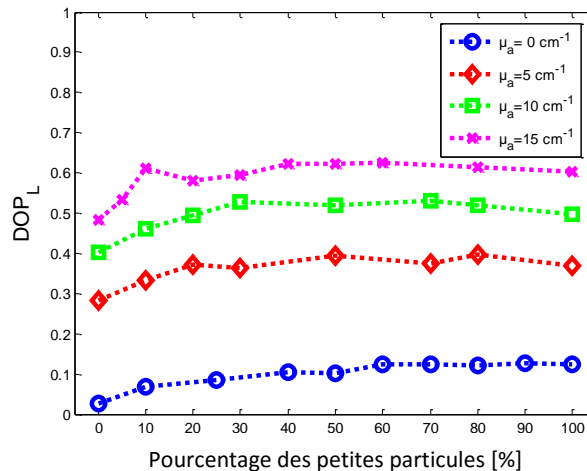


**Figure II.14** Variation de la différence de taille des grains horizontale  $\Delta dx_L$  et  $\Delta dx_C$  expérimentale entre les configurations parallèle et croisée mesurées en polarisation linéaire et circulaire en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$

### II.4.2- Effet de la variation du coefficient d'absorption (échantillons biomimétiques)

L'évolution des paramètres de speckle, notamment la taille de grains et le degré de polarisation, a été également étudiée pour des échantillons ayant différents coefficients d'absorption. Les mêmes types de milieux que ceux décrits dans la partie précédente ont été considérés, complétés par de l'encre de chine noire générant le phénomène d'absorption.





**Figure II.15** Variation du degré de polarisation linéaire  $DOP_L$  expérimental en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$  et différents coefficients d'absorption

L'évolution du  $DOP_L$  en fonction de la proportion des petits diffuseurs est illustrée à la Figure II.15 pour des milieux ayant différents coefficients d'absorption. Au fur et à mesure que  $\mu_a$  augmente,  $DOP_L$  présente également une augmentation. En effet, plus le milieu est absorbant, moins la lumière sera dépolarisée. Ce comportement peut être attribué à l'absorption des photons ayant subi plusieurs diffusions dans le milieu. En d'autres termes, plus l'absorption augmente, plus les photons détectés sont des photons ayant interagi avec le milieu à proximité de la surface et ayant subi moins d'événements de diffusion.

La Figure II.16 montre l'évolution du degré de polarisation linéaire simulé en fonction de la proportion des petits diffuseurs pour des milieux ayant différents coefficients d'absorption. Les tendances des courbes de  $DOP_L$  simulées sont les mêmes que celles obtenues pour les courbes expérimentales. Plus l'absorption augmente, moindre est la dépolarisation engendrée par le milieu. En comparant les valeurs numériques des  $DOP_L$  expérimentaux et simulés, nous remarquons toutefois que la simulation surestime la dépolarisation dans le cas des milieux absorbants.

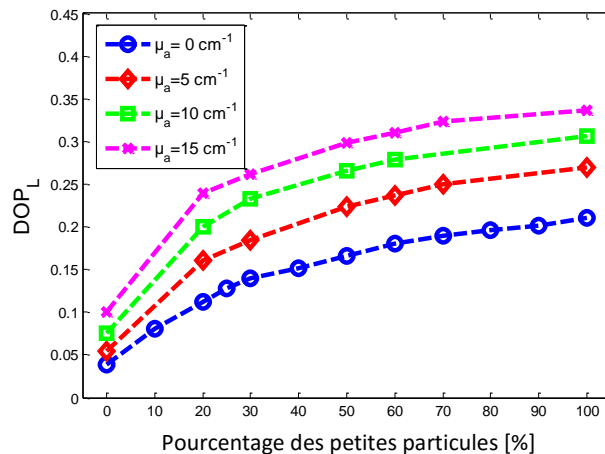


Figure II.16 Variation du degré de polarisation linéaire  $DOP_L$  simulé en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$  et différents coefficients d'absorption

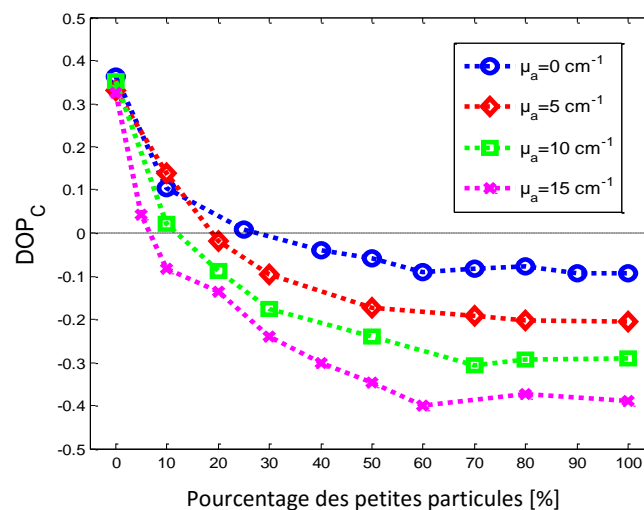
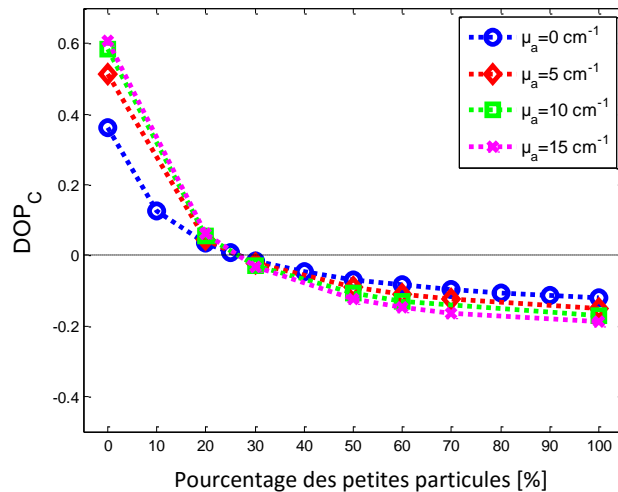


Figure II.17 Variation du degré de polarisation circulaire  $DOP_C$  expérimental en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$  et différents coefficients d'absorption

La variation du  $DOP_C$  expérimental est illustrée à la Figure II.17. Pour les milieux composés uniquement de grandes particules (abscisse 0% sur la Figure II.17), pour un  $\mu_s$  fixe et un  $\mu_a$  variable de 0 à  $15 \text{ cm}^{-1}$ ,  $DOP_C$  est presque constant avec des valeurs situées autour de  $0.35 \pm 0.02$ . En effet, dans le cas des grands diffuseurs, la diffusion vers l'avant est favorisée, ce qui réduit l'influence de l'absorption sur la lumière rétrodiffusée car les photons multidiffusés par des grands diffuseurs gardent plus longtemps leur polarisation.

Au contraire, dans le cas des petits diffuseurs (abscisse 100% sur la Figure II.17), plus l'absorption augmente, plus la préservation de l'état de polarisation de la lumière incidente augmente. Une augmentation de la valeur absolue du  $DOP_C$  est observée avec l'augmentation de  $\mu_a$ . Par ailleurs, au fur et à mesure de l'augmentation du coefficient d'absorption, le passage du  $DOP_C$  aux valeurs négatives se produit pour des proportions de plus en plus faibles des petits diffuseurs. Cela permet de conclure que l'augmentation de l'absorption renforce l'influence des petits diffuseurs sur la réponse polarimétrique de l'échantillon car les photons multidiffusés dans ce cas perdent plus vite leur polarisation initiale.



**Figure II.18** Variation du degré de polarisation circulaire  $DOP_C$  simulé en fonction de la proportion des petits diffuseurs dans une solution contenant des petits et des grands diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$  et différents coefficients d'absorption

La Figure II.18 montre l'évolution du degré de polarisation circulaire calculé numériquement en utilisant le programme de simulation Monte Carlo. Nous remarquons une différence entre les résultats expérimentaux et les résultats simulés. Pour un milieu contenant uniquement des grands diffuseurs, d'après la Figure II.18 (0% sur l'axe des abscisses), plus le coefficient d'absorption augmente, moindre est la dépolarisation. Les mêmes tendances que celles observées expérimentalement sont obtenues pour un milieu contenant uniquement des petites particules (100% sur l'axe des abscisses), mais avec un effet moindre de l'absorption. Le point de croisement des courbes de  $DOP_C$  avec l'axe des abscisses, indiquant un changement

de régime de diffusion, est ici le même pour les solutions ayant différents coefficients d'absorption.

Cette différence de comportement pourrait être due, soit à une erreur dans la prise en compte de l'absorption dans le programme, soit à un effet induit par l'encre de Chine lors des expériences. Une vérification, à l'aide d'un montage goniométrique, des propriétés d'un échantillon de microbilles en suspension dans une solution diluée d'encre de Chine, pourrait être envisagée afin de s'assurer que le colorant n'a pas été absorbé par les billes en polystyrène, induisant un changement d'indice et donc un changement des propriétés de l'échantillon (mesure de l'anisotropie de diffusion).

Dans tous les cas, en comparant l'expérience et la simulation, on remarque que  $DOP_C \text{ simulé} > DOP_C \text{ expérimental}$ . Une des causes de cet écart pourrait être due à la taille transversale de la cuve dans le plan  $(x, y)$  considérée comme infinie dans la simulation. Dans l'étude expérimentale, la cuve a des dimensions 1 cm x 1 cm x 1 cm. Des photons diffusés dans le plan  $(x, y)$  ont donc une chance d'être collectés en détection. Ce type d'écart a déjà été observé précédemment [Van Der Laan, 2015].

En considérant un milieu contenant uniquement des petits diffuseurs avec un  $\mu_s = 30 \text{ cm}^{-1}$  et un  $\mu_a$  variable, nous observons un changement dans le diamètre de la tache de diffusion. En effet, l'augmentation de l'absorption entraîne une diminution du diamètre de cette tache due à des photons dont le libre parcours moyen a été raccourci [Backman, 2000]. Par conséquent, la taille de grains de speckle  $dx$  illustrée à la Figure II.19 augmente,  $dx$  étant inversement proportionnelle au diamètre de la tache de diffusion (voir équations I.78 et I.90). De ce fait, plus de photons ayant changé d'hélicité sont collectés dans le cas d'une polarisation circulaire, et plus de photons ayant conservé leur polarisation initiale sont collectés dans le cas d'une polarisation linéaire. La Figure II.20 montre des valeurs négatives de  $\Delta dx_C$  et positives de  $\Delta dx_L$  indiquant que  $dx_{c\perp} > dx_{c\parallel}$  et  $dx_{L\parallel} > dx_{L\perp}$ . La taille de grains de speckle prise avec différentes polarisations permet donc une discrimination des effets de l'absorption, même pour un coefficient d'absorption inconnu.

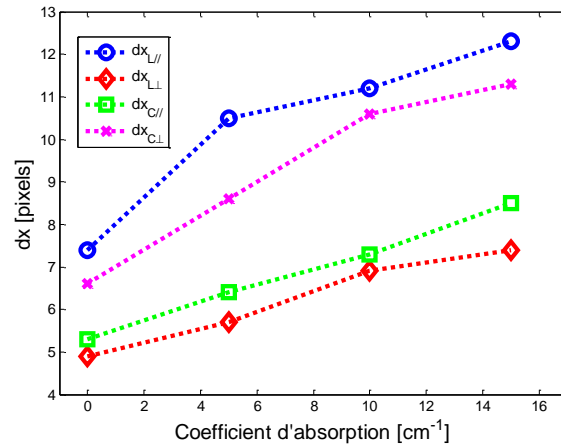


Figure II.19 Variation des tailles de grains horizontales  $dx$  expérimentales avec différentes polarisations en fonction du coefficient d'absorption pour une solution contenant uniquement des petits diffuseurs. Les barres d'erreur verticales sont de l'ordre de 0.25 pixels

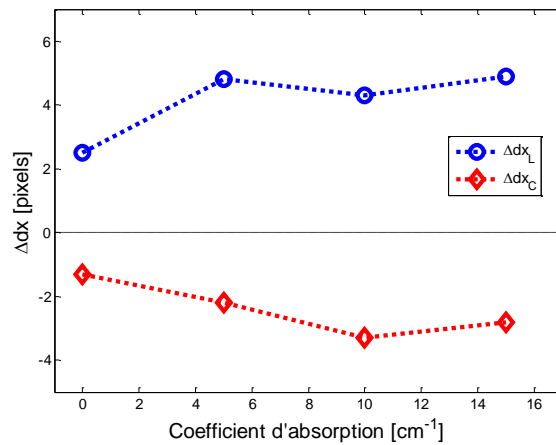
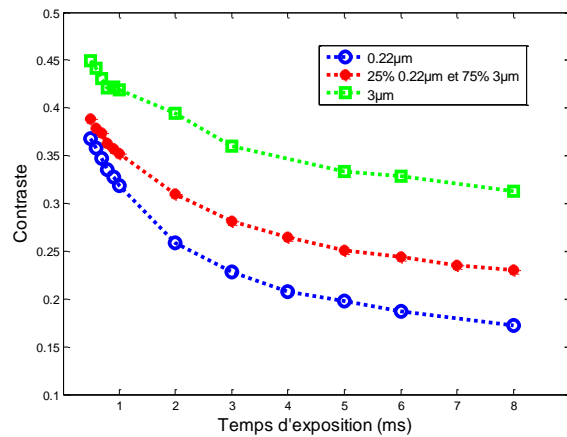


Figure II.20 Variation de la différence de taille des grains horizontale  $\Delta dx_L$  et  $\Delta dx_C$  expérimentale entre les configurations parallèle et croisée mesurée en polarisation linéaire et circulaire en fonction du coefficient d'absorption pour une solution contenant uniquement des petits diffuseurs avec un coefficient de diffusion de  $30 \text{ cm}^{-1}$

## II.5- Etude dynamique

Un comportement dynamique variable a été observé durant le suivi de la maturation de fruits [Nassif, 2012]. Or la taille des particules présentes dans un tel milieu est un des facteurs pouvant induire ce comportement. Une étude de la dynamique que manifestent les échantillons biomimétiques considérés dans ce chapitre a donc été effectuée pour tenter d'interpréter ces observations.

Dans le but de caractériser la dynamique de ces milieux liquides, le contraste des images de speckle a été calculé à des temps d'exposition différents. Le suivi dynamique s'est limité au calcul du contraste. La corrélation temporelle n'a pas pu être calculée car, compte tenu de la cadence relativement basse de la caméra CCD utilisée, la dynamique rapide des particules dans la solution n'était pas accessible. Toutefois, il a été montré que le contraste pouvait renseigner sur la dynamique de particules en suspension dans un liquide dans le cadre de la diffusion simple (DLS) [Fercher, 1981].



**Figure II.21** Variation du contraste spatial calculé en polarisation linéaire parallèle en fonction du temps d'exposition de l'image pour des milieux contenant différentes tailles de particules

La Figure II.21 montre l'évolution du contraste spatial calculé sur l'ensemble de l'image de speckle en fonction du temps d'exposition des images. On constate que, pour les différents temps d'exposition, le contraste spatial varie en fonction de la taille des diffuseurs présents dans l'échantillon ( $\mu_s = 30 \text{ cm}^{-1}$  pour les trois solutions). En effet, le mouvement Brownien des sphères de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  dans la solution aqueuse est supérieur à celui des microbilles de diamètre  $3 \mu\text{m}$ . De plus, un milieu contenant des diffuseurs de différentes tailles génère un contraste correspondant à une taille moyenne. Ainsi, le contraste correspondant à la solution à 25% de particules de  $0.22 \mu\text{m}$  et 75% de diffuseurs à  $3 \mu\text{m}$  prend des valeurs intermédiaires entre le contraste associé aux billes de  $0.22 \mu\text{m}$  et celui produit par les billes de  $3 \mu\text{m}$ , tout en étant plus proche de celui des petites billes. Ceci indique un régime de diffusion dominé par les petites particules dans le milieu. Le suivi de la dynamique des milieux fluides par champ de speckle polarisé va être exploré en détail dans le chapitre 3.



## Chapitre 3 – Estimation de la dynamique temporelle dans des milieux visqueux

La détection non-invasive de la viscoélasticité de matériaux et de fluides est d'un intérêt croissant dans le domaine médical et industriel. En effet, certaines pathologies des tissus biologiques, tels que le cancer, l'athérosclérose et les maladies neurodégénératives, sont accompagnées d'un changement dans les propriétés mécaniques de ces tissus [Rekhter, 2000] [Suresh, 2005] [Suresh, 2007] [Chau, 2008] [Cross, 2008]. Une mesure précise de la variation de ces propriétés viscoélastiques constitue potentiellement un outil de diagnostic d'un grand nombre de pathologies. Une variation de viscosité des fluides biologiques est également un signe d'anomalie. Des maladies sanguines, urinaires, et de la reproduction se manifestent respectivement par une variation de la viscosité du sang, du sérum sanguin, de l'urine, ou du sperme [Mehta, 2003] [Guyton, 2006] [Stone, 2012] [Du Plessis, 2013] [Inman, 2013] [Flint, 2014]. La problématique, dans le cas d'anomalies liées aux fluides biologiques, réside dans le fait que ces fluides sont caractérisés par des viscosités relativement faibles. Par conséquent, un instrument de mesure de sensibilité élevée est requis afin de mesurer la moindre variation de cette faible viscosité. Les méthodes de mesure optiques de la viscosité, grâce à leur sensibilité, leur potentiel de mesures in situ ainsi que leur caractère non invasif, sont des méthodes présentant un intérêt avéré pour répondre à ce genre de problématique.

D'autre part, d'un point de vue industriel, la mesure de viscosité de matériaux et de fluides peut être utilisée comme un moyen de contrôle de leur qualité et de leur consistance ou pour le suivi de réactions chimiques. Une mesure sans contact est parfois imposée dans des environnements complexes, par exemple lorsqu'il s'agit d'effectuer des mesures dans des conditions de très haute ou très basse température, sous pression contrôlée, ou en présence de radiations [Prasad, 2008].

Dans ce chapitre, nous proposons une technique de mesure optique permettant le diagnostic de pathologies affectant les fluides biologiques, avec une possibilité d'extension à la



mesure de la viscoélasticité des tissus. Cette technique est basée sur la mesure de faibles variations de viscosité par l'analyse temporelle et/ou spatiale du champ de speckle. Une première partie situe le contexte rhéologique de l'étude, ainsi que les techniques couramment utilisées pour les mesures de viscosité. La deuxième partie comprend une description des échantillons biomimétiques utilisés, du montage expérimental optique proposé, et de la méthode mécanique servant de technique de référence. Dans une troisième partie, les résultats de mesures de faibles viscosités en milieux mono-dispersifs, et les perspectives et applications de cette méthode dans le domaine médical et industriel sont exposés. Finalement, la possibilité d'extension de cette étude au cas de milieux visqueux inconnus est discutée dans une quatrième partie.

### III.1- Contexte

La rhéologie est une science qui traite de l'écoulement, des déformations, et plus généralement de la viscoélasticité des matériaux sous l'action de contraintes. Les mesures rhéologiques sont utilisées afin de caractériser les propriétés mécaniques de milieux allant des fluides Newtoniens ayant une nature visqueuse, aux solides Hookéens présentant un comportement parfaitement élastique. Les propriétés viscoélastiques des matériaux peuvent être déterminées par une grande variété de méthodes de mesure mécaniques, électriques, ou optiques [Lakes, 2004] [Chen, 2004] [Kirkpatrick, 2003] [Bandyopadhyay, 2005].

Parmi les méthodes optiques, celles basées sur la diffusion de la lumière sont souvent utilisées en raison de leur relative simplicité. Les facilités expérimentales qu'elles offrent permettent des mesures dans des environnements hostiles (à haute pression et des conditions critiques de température). La méthode de diffusion dynamique de la lumière (Dynamic Light Scattering DLS) a par exemple déjà été mise en œuvre afin de déterminer la viscosité de liquides à haute pression [Fukui, 2010]. Cependant, cette technique impose des restrictions sur la nature de l'échantillon, afin d'éviter le phénomène de diffusion multiple. D'autres méthodes, basées sur les pinces optiques, sont également appliquées pour la détection de la viscosité de fluides [Tassieri, 2015] ; ces méthodes utilisent un microscope électronique afin de pouvoir suivre la position d'une particule baignant dans la solution. De ce fait, la mesure de la viscosité

### Chapitre 3 : Estimation de la dynamique temporelle dans des milieux visqueux

à l'aide de ces techniques n'est pas envisageable pour des milieux complexes (milieux diffusants denses avec des diffuseurs de différents diamètres par exemple).

La rhéologie par champ de speckle (Laser Speckle Rheology LSR) basée sur le suivi temporel du champ de speckle pour mesurer les modules viscoélastiques de matériaux a été proposée récemment par Hajjarian et al. [Hajjarian, 2012]. Cette méthode consiste à mesurer les fluctuations du champ de speckle par le calcul de la corrélation temporelle des images acquises par une caméra rapide. En effet, le mouvement Brownien des diffuseurs dans le milieu provoque des fluctuations temporelles d'intensité de speckle avec une vitesse conditionnée notamment par les propriétés viscoélastiques de l'échantillon. Cette technique a été notamment appliquée pour le suivi de la coagulation sanguine entraînant un changement de viscoélasticité du sang [Tripathi, 2014]. Les temps caractéristiques calculés à partir des corrélations temporelles effectuées dans le cadre de ces études sont de l'ordre de quelques ms. L'analyse du contraste de speckle en appliquant des ondes de cisaillement (Shear-Wave Laser Speckle Analysis SW-LASCA) a également été utilisée dans le but de déterminer des propriétés mécaniques de matériaux. Des ondes de cisaillement sont générées dans les échantillons par une onde ultrasonore modulée en amplitude à une fréquence de modulation de quelques centaines de Hertz. Les images de speckle prises à l'aide d'une caméra avec un temps d'exposition de 2 ms sont analysées, et la différence de contraste de speckle liée à la viscosité de l'échantillon est calculée à partir de la mesure de la vitesse des ondes de cisaillement [Cheng, 2013]. Cette technique a permis de remonter à des viscosités de l'ordre du Pa.s. Sa principale limitation réside dans sa faible sensibilité.

Dans notre étude, l'objectif consiste à mesurer avec une bonne sensibilité de très faibles variations de la viscosité de milieux liquides à partir de l'analyse du champ de speckle. Les milieux que nous avons choisis d'étudier possèdent donc des temps caractéristiques très courts en raison de leur faible viscosité. Afin d'accéder à la dynamique temporelle du champ de speckle, deux approches sont exposées et comparées : une approche spatiale, et une autre temporelle.

## III.2- Montage expérimental

### III.2.1- Description des échantillons biomimétiques

Les échantillons utilisés dans notre étude sont des milieux faiblement diffusants ( $\mu'_s$  de l'ordre de quelques  $\text{mm}^{-1}$ ) et de faible viscosité (quelques mPa.s, de 1 à 5 fois la viscosité de l'eau). Des microsphères en Polystyrène (Polysciences Inc. USA), en suspension dans de l'eau dé-ionisée avec des concentrations variables de sucrose ultra-pur ( $\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$ , de masse molaire  $M=342.3 \text{ g/mol}$ ) sont utilisées. Ce type de milieu diffusant est choisi puisqu'il est facile à manipuler et présente une flexibilité vis-à-vis du contrôle de la variation de ses paramètres optiques ( $\mu_s, g, \mu'_s$ ) et visqueux. L'indice de réfraction des microbilles est  $n_1 = 1.59$ , tandis que celui du milieu est de  $n_0 = 1.33$  pour une suspension sans sucrose, et croît en fonction de la concentration de sucrose pour arriver à 1.40 pour une solution contenant 0.45 g/ml de sucrose. Des billes de diamètre de 0.22, 0.50, 1.53, 3.00 et 4.52  $\mu\text{m}$  sont mises en suspension avec différentes concentrations afin d'étudier la sensibilité de la mesure optique de la viscosité aux paramètres optiques du milieu.

Le coefficient de diffusion  $\mu_s$  des échantillons est calculé en utilisant la théorie de Mie [Van De Hulst, 1981] [Bohren, 1983]. La diffusion est essentiellement engendrée par la présence des microbilles dans les solutions, la diffusion par les molécules de sucrose étant négligeable, le diamètre de ces molécules étant de l'ordre de 0.9 nm [Nesin, 2011]. Pour des solutions aqueuses contenant de 0.1 jusqu'à 0.45 g/ml de sucrose, le coefficient de diffusion varie de  $7.45 * 10^{-6}$  à  $2.3 * 10^{-5} \text{ mm}^{-1}$ , valeurs de  $\mu_s$  négligeables devant les ordres de grandeurs de celles induites par les microbilles.

### III.2.1- Description du montage expérimental

Le montage expérimental de mesure du champ de speckle est représenté à la Figure III.1. Un laser Hélium-Néon délivre un faisceau de longueur d'onde 632.8 nm dont l'intensité incidente est contrôlée par une lame demi-onde. Un polariseur et un analyseur assurent une polarisation linéaire parallèle ou croisée. Les lames quart-d'onde sont utilisées pour la génération et la collection d'une polarisation circulaire. Compte tenu de la nature des échantillons et de leur faible viscosité, le détecteur est une caméra rapide (MotionBLITZ EoSens

mini, taille du pixel=14  $\mu\text{m}$  x 14  $\mu\text{m}$  avec un shutter électronique) permettant une cadence d'acquisition variable (ici 1950 images par secondes), afin de pouvoir suivre avec une bonne résolution temporelle le mouvement rapide des diffuseurs dans l'échantillon.

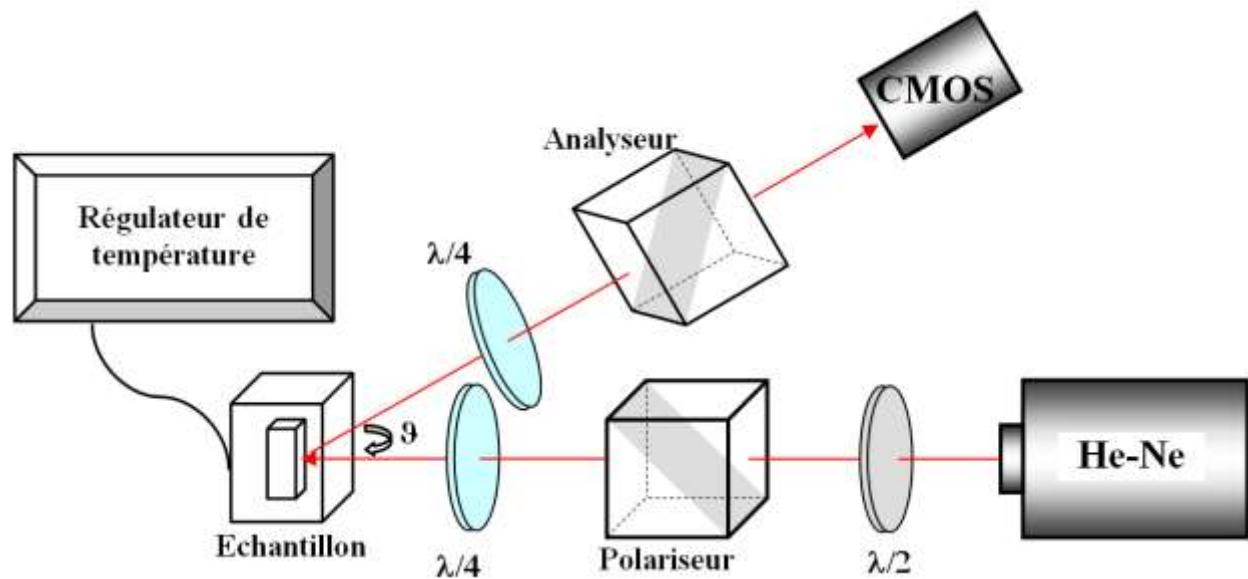


Figure III.1 Schéma du montage expérimental.  $\lambda/2$  est une lame demi-onde.  $\lambda/4$  est une lame quart-d'onde

Dans l'approche temporelle directe de l'analyse du champ de speckle généré par des solutions de viscosités variables, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms. Le temps de latence du shutter est d'environ 6 ns. La taille des images est égale à 192 pixels x 200 pixels, afin de permettre une cadence d'acquisition élevée. Le coefficient de corrélation de l'échantillon reflète les variations temporelles de l'activité de speckle [Nassif, 2014]. Si l'on considère le mouvement Brownien des diffuseurs dans la solution, le coefficient de corrélation temporelle chute jusqu'à une valeur minimale et le taux de décroissance de cette décorrélation reflète les fluctuations moyennes dans l'échantillon. Un ajustement exponentiel des courbes de corrélation de la forme  $a \cdot \exp(b\sqrt{t})$  avec  $b = \sqrt{\frac{1}{\tau_c}}$  permet l'estimation de la constante de temps de décorrélation  $\tau_c$  comme le suggère l'approximation de diffusion (équation I.120).

Dans l'approche spatiale, le calcul du contraste des images de speckle est effectué suivant la formule (I.65) pour différents temps d'exposition. Ce temps est ajusté en fonction de la dynamique que présente l'échantillon. En le faisant varier, les fluctuations du champ de speckle sont plus ou moins intégrées. Une augmentation du temps d'exposition entraîne une diminution du contraste spatial de l'image de speckle. Compte tenu de la relation entre le contraste et la corrélation temporelle des images, la connaissance du contraste et du temps d'exposition permet également de déterminer un temps caractéristique (équation I.126 et Figure I.14).

Les solutions sont disposées dans des cuves en quartz. Une régulation de la température de l'échantillon est assurée : la cuve contenant les solutions baigne dans de l'eau thermostatée pour éviter qu'une variation de température ne cause une variation de la viscosité de l'échantillon, mais également de l'indice de réfraction du milieu et donc du coefficient de diffusion. De plus, le mouvement Brownien des diffuseurs est directement lié à la température de l'échantillon. Enfin, la viscosité des solutions de sucrose étudiées a été estimée précisément pour chaque concentration par une mesure à l'aide d'un rhéomètre mécanique (Low shear 30, Contraves).

### **III.3- Influence de paramètres intrinsèques et extrinsèques des échantillons sur l'estimation de la viscosité**

La capacité des méthodes spatiale et temporelle de suivi de la dynamique du champ de speckle, proposées dans ce chapitre, pour la détection des variations de viscosité dépend fortement du milieu étudié. Un défi majeur pour une détermination exacte de la viscosité ou de la viscoélasticité du milieu par analyse du champ de speckle est la connaissance des paramètres optiques de l'échantillon. Dans ce paragraphe, une étude de l'influence de paramètres tels que la température et les propriétés optiques de l'échantillon, sur l'estimation de la viscosité à partir du temps caractéristique déduit des fluctuations des images de speckle est présentée. Nous menons également une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux prédits par la théorie de la diffusion multiple DWS exposée au paragraphe I.3.2.b et c.

La constante  $\tau_c$  correspondant au temps de décorrélation des images de speckle n'étant pas seulement dépendante des propriétés rhéologiques de l'échantillon, mais aussi d'autres propriétés intrinsèques, une estimation de l'influence de ces propriétés sur ce facteur est nécessaire.

Des variations du coefficient d'absorption  $\mu_a$  ou de diffusion réduit  $\mu'_s$  de l'échantillon influent sur l'évolution du temps de décorrélation  $\tau_c$  mesuré à partir des images de speckle. Une augmentation de  $\mu_a$  réduit le diamètre de la tache de diffusion, et par conséquent la contribution des photons ayant des chemins optiques plus longs est diminuée [Witt, 1977] [Abou Nader, 2015], ce qui donne une valeur de  $\tau_c$  qui croît. D'autre part, une augmentation de  $\mu'_s$  induit plus d'évènements de diffusion, et par conséquent une accélération du processus de décorrélation. L'indice du milieu, la taille des diffuseurs présents dans l'échantillon et sa température sont également des paramètres affectant directement l'estimation du paramètre  $\tau_c$  (équation I.121). Etant donné que le mouvement Brownien des particules est directement lié à leur taille et à la température du milieu, l'influence de ces paramètres sera également étudiée [Bonner, 1987] [Mackintosh, 1989].

### III.3.1- Effet de la constitution du milieu

Nous discutons, dans cette partie, de l'influence des propriétés optiques, notamment du coefficient de diffusion (en fonction de la constitution du milieu en termes de taille et de concentrations de particules), sur l'estimation de la viscosité à partir de l'analyse du champ de speckle.

#### *a) Distribution des tailles des diffuseurs*

Dans un échantillon biologique, les diffuseurs ont différentes tailles qui vont de l'ordre du nanomètre jusqu'à plusieurs dizaines de micromètres [Welch, 1995]. Le mouvement d'agitation des particules dans un liquide visqueux est essentiellement lié au mouvement Brownien de la particule dans ce liquide. Or, le mouvement Brownien n'est pas seulement dépendant de la viscosité du milieu, mais également de sa température, ainsi que de la taille des particules subissant ce mouvement. En effet, comme nous l'avons exposé au chapitre I en décrivant les fonctions de corrélation temporelle du champ électrique et de l'intensité, le

déplacement d'un diffuseur soumis à l'agitation Brownienne pendant un temps  $\tau$  s'écrit

$$\langle \Delta r^2(\tau) \rangle = \frac{k_B T}{\pi \eta a} \tau \quad (\text{équations I.105 et I.106})$$

Dans la dernière partie du chapitre 2, la variation du contraste spatial de l'image de speckle en fonction de la taille des particules a été démontrée (voir Figure II.21). Des solutions contenant des particules de même taille et des mélanges de différentes tailles ont présenté des valeurs de contraste  $C$  variables. De plus, les petites particules ont apporté une plus grande contribution au signal collecté en rétrodiffusion que les grandes particules en raison de leur diffusion plus isotrope.

Ici, le coefficient de corrélation  $c(\tau)$  moyenné sur l'ensemble des pixels de l'image de speckle ainsi que le contraste spatial  $C$  ont été calculés à partir des images générées par des milieux contenant des diffuseurs de différentes tailles baignant dans de l'eau dé-ionisée à 20°C. Le coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$  des milieux étudiés était constant et égal à 10 cm<sup>-1</sup>. La Figure III.2 représente l'évolution du coefficient de corrélation temporelle pour les milieux ayant différentes tailles de diffuseurs. La gamme de variation du temps caractéristique associé  $\tau_c$  dépend fortement du rayon des particules. En effet, plus la particule est petite, plus son mouvement brownien est rapide (équation I.121). Par conséquent,  $\tau_c$  croît avec l'augmentation de la taille des diffuseurs dans le milieu (voir Figure III.3).

En considérant un régime de diffusion multiple dans l'approximation de diffusion, les courbes de corrélation  $c(\tau)$  sont ajustées selon la loi de la forme  $y = B e^{-\sqrt{\frac{\tau}{\tau_c}}}$  afin d'en extraire le temps caractéristique  $\tau_c$  présenté dans l'équation I.121. En effet, le choix de se placer dans le cadre de l'approximation de diffusion constitue une première approche d'analyse. De ce fait, une variation du rayon  $a$  des diffuseurs dans le milieu induit une augmentation de  $\tau_c$  selon une loi linéaire affine d'après les prédictions théoriques. Un ajustement sur la Figure III.3 montre l'évolution de  $\tau_c$  en fonction du diamètre des diffuseurs. Un bon accord entre les mesures expérimentales et les prédictions de l'approximation de la diffusion données par l'équation I.121 est observé.

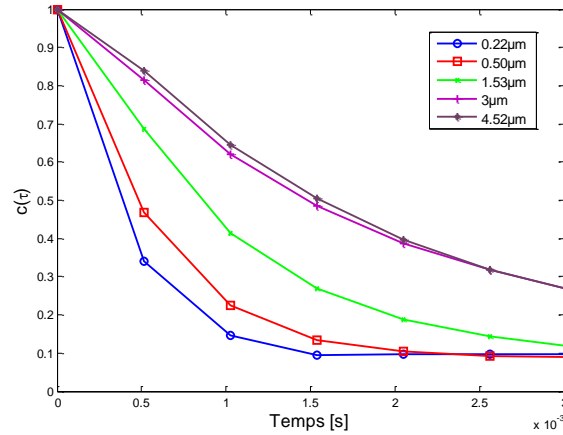


Figure III.2 Courbes de corrélation temporelle  $c(\tau)$  pour des solutions ayant différentes tailles de diffuseurs en suspension dans de l'eau déionisée à 20°C (coefficients de diffusion réduits constants  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ ). Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms.

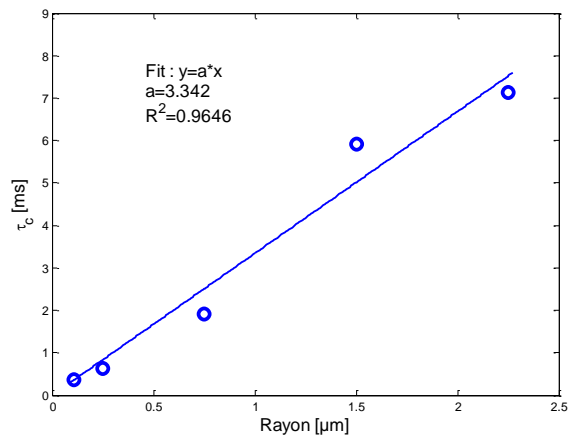
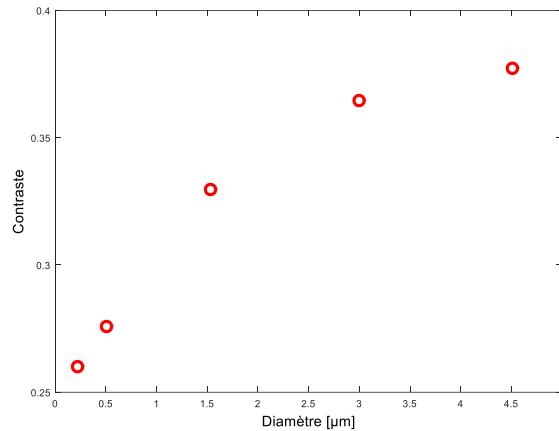


Figure III.3 Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  en fonction du rayon des diffuseurs en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C (coefficients de diffusion réduits constants  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ ). Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms.



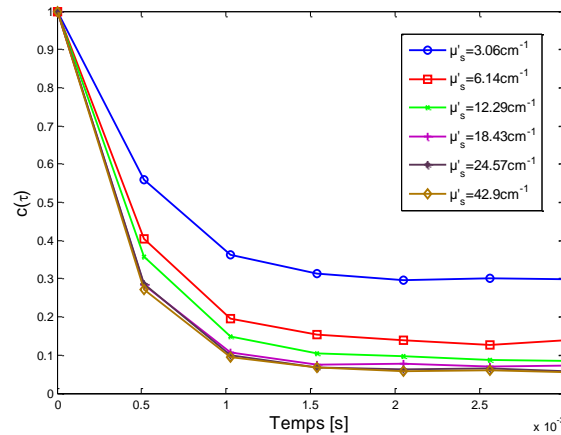


**Figure III.4** Variation du contraste en fonction du diamètre des diffuseurs en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C (coefficients de diffusion réduits constants  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ ). Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms

Le contraste  $C$ , illustré à la Figure III.4, montre le même comportement qualitatif que le temps caractéristique  $\tau_c$  vis-à-vis de la taille des diffuseurs, à savoir que, lorsque tous les autres paramètres sont constants, le contraste associé aux gros diffuseurs est plus élevé que celui des petits diffuseurs. Ceci se conçoit aisément, puisque le temps caractéristique des gros diffuseurs est plus élevé que celui des petits. L'observation de ces mouvements très différents avec une fenêtre d'intégration fixe, conduit donc bien à un contraste plus élevé pour les gros diffuseurs. Le contraste est en effet une « observation intégrée » du phénomène observé plus directement par la corrélation temporelle. Ces deux paramètres (le temps caractéristique  $\tau_c$  et le contraste  $C$ ) sont donc naturellement sensibles au mouvement Brownien des diffuseurs dans le milieu.

#### **b) Coefficient de diffusion réduit $\mu'_s$**

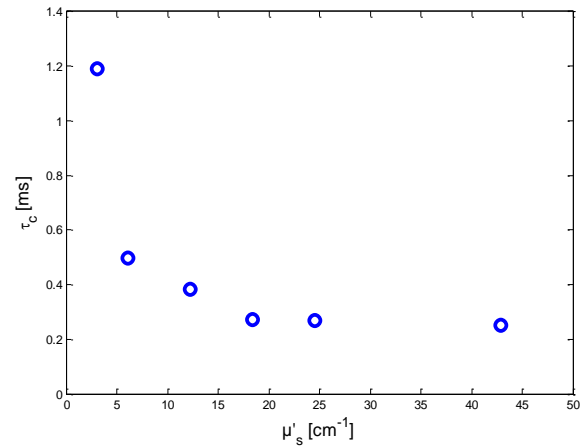
Le coefficient de diffusion réduit de l'échantillon est un paramètre influant fortement sur les fluctuations des images de speckle. En effet, au sein de solutions ayant un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$  élevé, les photons rencontrent statistiquement plus de particules diffusantes, ce qui implique plus d'évènements de diffusion [Gandjbakhche, 1993].



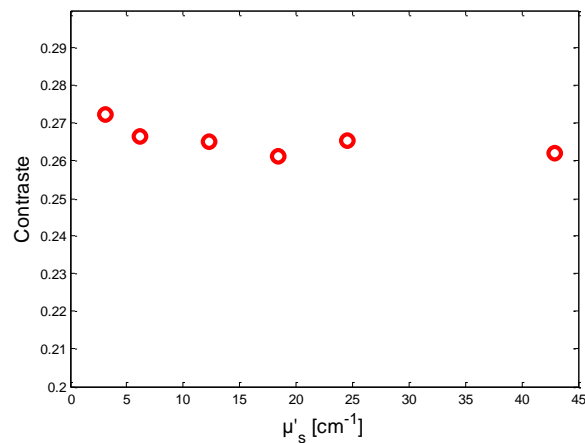
**Figure III.5** Variation du coefficient de corrélation  $c(\tau)$  en fonction du temps pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau dé-ionisée à  $20^\circ\text{C}$  pour différents coefficients de diffusion réduits. Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ .

Etant donné que le temps caractéristique des photons multidiffusés est plus court que celui des photons ayant subi un seul événement de diffusion, le temps caractéristique  $\tau_c$  associé à des solutions de  $\mu'_s$  élevé est plus court. Ce comportement est mis en évidence aux Figure III.5, Figure III.6 et Figure III.7 qui montrent respectivement l'évolution du coefficient de corrélation  $c(\tau)$ , du temps caractéristique  $\tau_c$  qui en est extrait et du contraste  $C$ , pour des billes de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau dé-ionisée.

D'après le modèle établi à partir de l'approximation de diffusion (équation I.120), en absence d'absorption, le coefficient de diffusion du milieu n'est pas censé avoir d'influence sur l'estimation du temps caractéristique. Or, à la Figure III.6 où sont reportés des résultats expérimentaux correspondant à des solutions de différentes valeurs de  $\mu'_s$ , nous remarquons une diminution de  $\tau_c$  au fur et à mesure de l'augmentation de  $\mu'_s$ . Ceci démontre donc expérimentalement une dépendance forte de  $\tau_c$  relativement à la valeur de  $\mu'_s$  [Hajjarian, 2014]. Il n'existe pas à notre connaissance un modèle unifié liant explicitement le temps caractéristique  $\tau_c$  au coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$ ; en effet, le cadre théorique dans lequel nous nous plaçons dépend de  $\mu'_s$  et de la taille des particules en configuration d'analyse en rétrodiffusion.



**Figure III.6** Variation du temps caractéristique en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau déionisée à  $20^\circ\text{C}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ .



**Figure III.7** Variation du contraste spatial en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau déionisée à  $20^\circ\text{C}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ .

La Figure III.7 montre l'évolution du contraste en fonction du coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$ . Contrairement à ce qui était attendu, le contraste ne présente aucune variation significative en fonction du coefficient de diffusion réduit. Ceci est en fait la conséquence du choix dans cette expérience d'un temps d'intégration mal adapté au temps caractéristique des solutions considérées. Cet aspect sera discuté plus tard dans ce paragraphe.

### Chapitre 3 : Estimation de la dynamique temporelle dans des milieux visqueux

La même étude a été réalisée pour de grandes particules, de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$  afin de comparer les effets du changement du coefficient de diffusion entre des petites et des grandes particules. Les résultats sont présentés aux Figure III.8, Figure III.9 et Figure III.10.

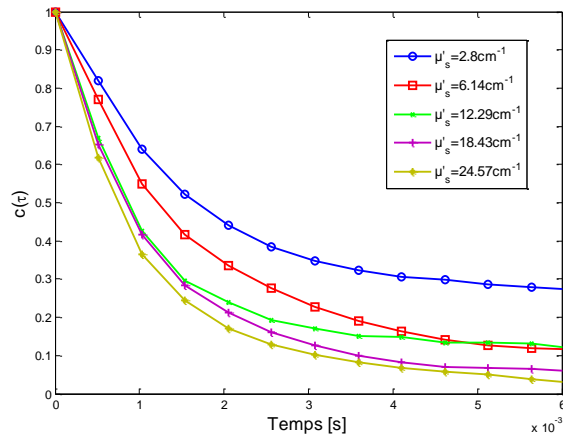


Figure III.8 Variation du coefficient de corrélation  $c(\tau)$  en fonction du temps pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau dé-ionisée à  $20^\circ\text{C}$  pour différents coefficients de diffusion réduits  $\mu'_s$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ .

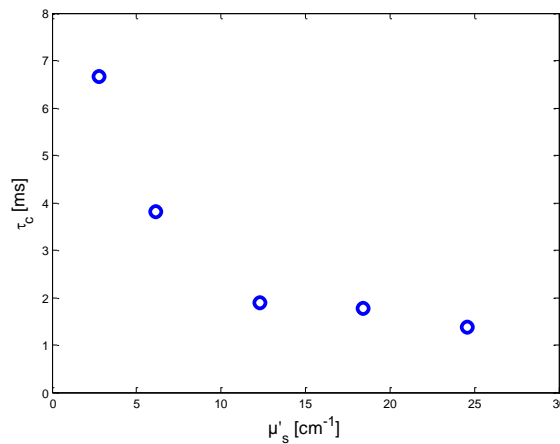
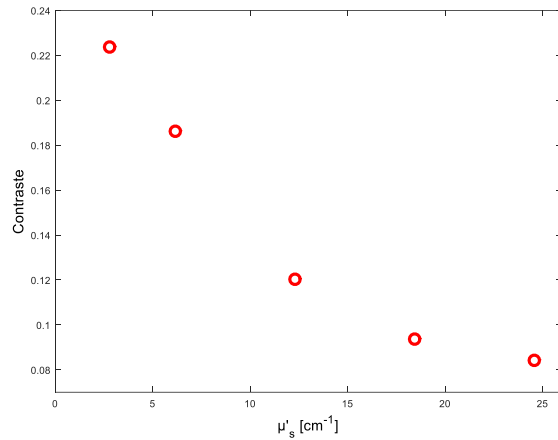


Figure III.9 Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau dé-ionisée à  $20^\circ\text{C}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ .



**Figure III.10** Variation du contraste en fonction du coefficient de diffusion réduit pour des solutions contenant des diffuseurs de diamètre 1.53  $\mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau dé-ionisée à 20°C. Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 3 ms.

Ces résultats montrent la dépendance des paramètres considérés à la valeur du coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$  pour les petites et les grandes particules. En effet, une augmentation de  $\mu'_s$  fait augmenter le nombre d'événements de diffusion. Ceci « amplifie l'agitation » du champ de speckle par effet cumulatif des multiples diffusions.

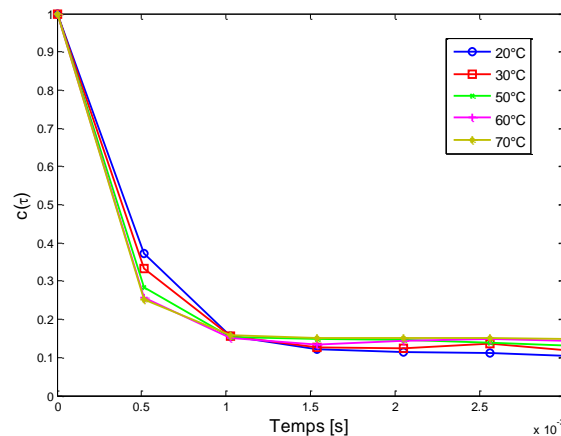
L'évolution du contraste dans le cas des petits diffuseurs (Figure III.7) est non significative par rapport à l'évolution que présente ce paramètre dans le cas des diffuseurs de grande taille (Figure III.10). Ceci est relié au temps d'exposition de l'image dans le cas des petits diffuseurs (0.5 ms). En effet, pour un  $\mu'_s > 5 \text{ cm}^{-1}$ , le temps caractéristique mesuré est inférieur à 0.5 ms. Or, le temps d'exposition de l'image de speckle doit être inférieur au temps caractéristique pour que l'estimation du contraste ait un sens. Ce problème pourrait être réglé en fixant le temps d'exposition à une valeur plus basse que le temps caractéristique mesuré.

### III.3.2- Effet de la température

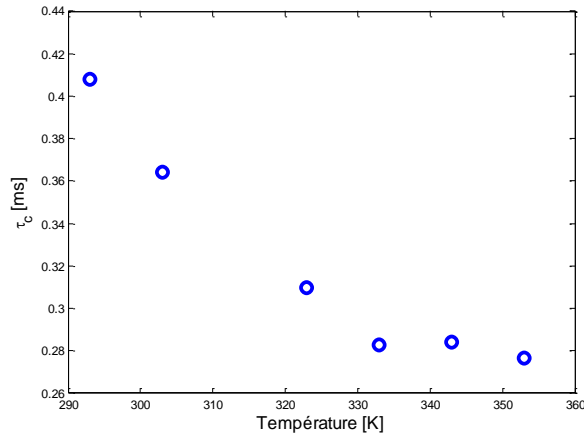
Une augmentation de la température d'un milieu induit un accroissement de l'agitation thermique. Le mouvement Brownien des particules diffusantes dans une solution étant influencé par la température de ce milieu, le mouvement des diffuseurs croît avec l'augmentation de la température (équation I.121). Les Figure III.11 et Figure III.12 représentent

la variation de  $c(\tau)$  et de  $\tau_c$  en fonction de la température du milieu pour des petites particules de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  en suspension dans de l'eau dé-ionisée.

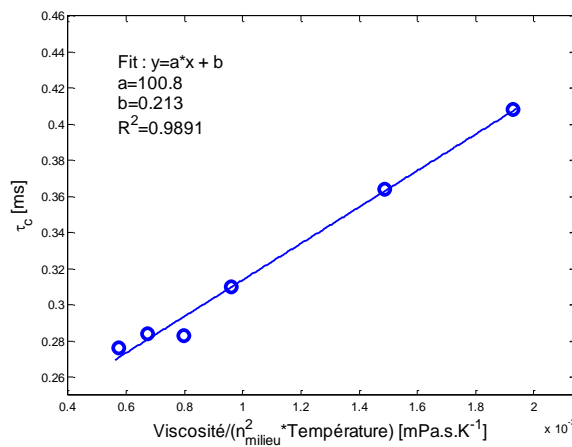
Cependant, il faut prendre quelques précautions, car un changement de température induit également un changement de la viscosité de l'eau et de son indice de réfraction, influant à leurs tours sur l'estimation du temps caractéristique  $\tau_c$ . La viscosité de l'eau varie de 1.006 à 0.345 mPa.s et son indice varie de 1.333 à 1.322 lorsque la température varie dans la plage considérée ici, de 20 à 70°C [Bashkatov, 2003]. Par conséquent, les variations de  $\tau_c$  avec la température sont dues à un effet cumulatif de la variation de la viscosité et de l'indice de l'eau, et de la variation de l'agitation Brownienne. La Figure III.13 représente la variation de  $\tau_c$  en fonction du rapport entre la viscosité d'une part et le produit de la température et du carré de l'indice du milieu d'autre part (voir équation I.121). D'après les prédictions théoriques, la dépendance du temps caractéristique à ce rapport est linéaire. L'ajustement des valeurs expérimentales de la Figure III.13 montre effectivement cette dépendance linéaire. La valeur non nulle de l'ordonnée à l'origine, obtenue par l'ajustement linéaire, est probablement due à des imprécisions expérimentales. En effet, le temps caractéristique des solutions considérées est extrêmement faible et proche de la limite des capacités de la caméra utilisée, d'où ce biais de mesure.



**Figure III.11** Variation du coefficient de corrélation  $c(\tau)$  en fonction du temps pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  à différentes températures. Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms.

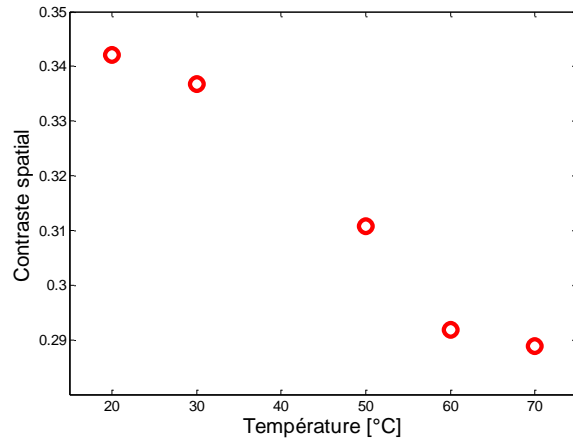


**Figure III.12** Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ . Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .



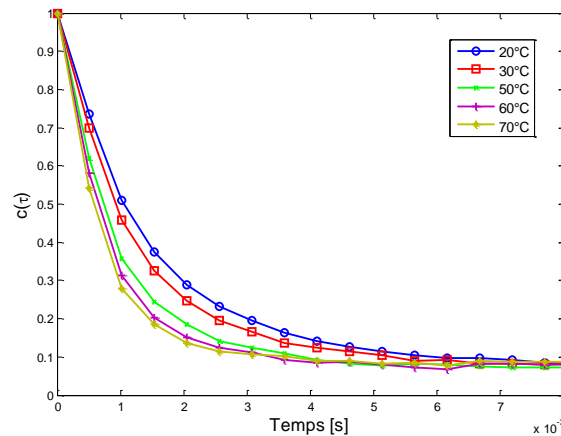
**Figure III.13** Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  en fonction du rapport entre la viscosité et le produit de la température par l'indice du milieu au carré, pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ . Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .

Comme cela a déjà été commenté au paragraphe précédent, puisque le contraste est le résultat d'une « observation intégrée » de la dynamique du champ de speckle, son évolution présentée à la Figure III.14 présente un comportement analogue à celui du temps caractéristique, traduisant la dynamique du milieu, la variation de son indice et de sa viscosité.



**Figure III.14** Variation du contraste spatial en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ . Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .

La même étude a été effectuée pour des grandes particules de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$  qui, du fait de leur diamètre supérieur à celui des particules de  $0.22 \mu\text{m}$ , possèdent un temps caractéristique plus élevé. Les mesures sont donc ici réalisées dans de bonnes conditions, compte tenu du temps d'intégration de la caméra. Les mêmes tendances que celles observées avec les diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  sont obtenues comme illustré aux Figure III.15, Figure III.16, Figure III.17, et Figure III.18.



**Figure III.15** Variation du coefficient de corrélation  $c(\tau)$  en fonction du temps pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$  à différentes températures. Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à  $0.5 \text{ ms}$ . Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .



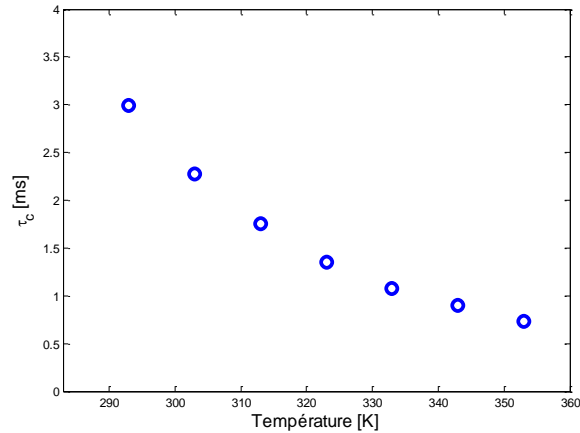


Figure III.16 Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms. Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .

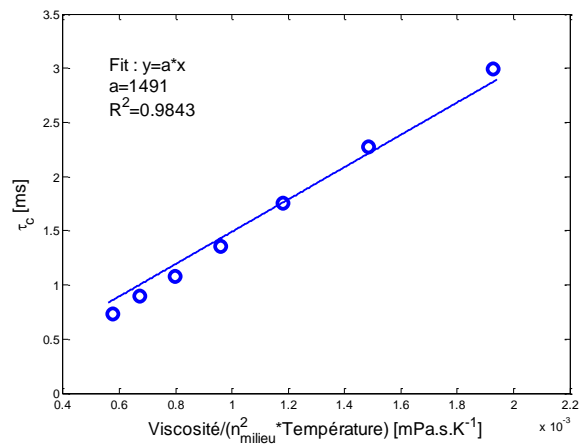
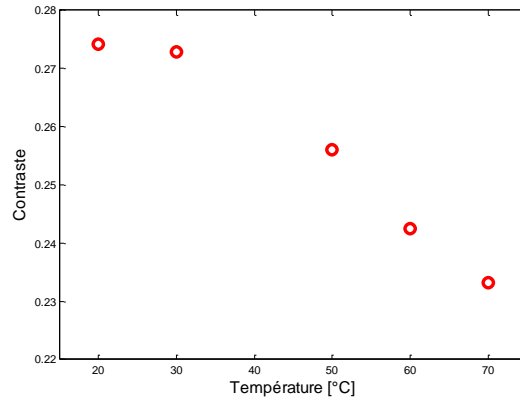


Figure III.17 Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  en fonction du rapport entre la viscosité et le produit de la température par l'indice du milieu au carré, pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms. Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .

L'ajustement des valeurs expérimentales de la Figure III.17 montre une dépendance linéaire affine, en accord avec les prédictions données par l'équation I.121. De plus, le contraste spatial représenté à la Figure III.20 reflète la même tendance que celle observée à partir de l'estimation du temps caractéristique.



**Figure III.18** Variation du contraste en fonction de la température pour une solution aqueuse contenant des diffuseurs de diamètre  $1.53 \mu\text{m}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 3 ms. Les solutions ont un  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .

#### III.4- Mesures relatives de faibles viscosités en milieux visqueux mono-dispersés

Afin de modifier uniquement la viscosité des échantillons biomimétiques utilisés dans le cadre de cette étude, nous varions la concentration en sucrose dans les solutions. En effet, comme cela a été discuté plus haut, une variation de la température d'une solution ne modifie pas uniquement la viscosité mais également l'indice de réfraction du milieu. Trois approches pour la détermination de la viscosité des différents échantillons vont être présentées : des mesures mécaniques servant de méthode de référence, une étude spatiale du champ de speckle permettant une analyse quantitative à partir d'une seule image, et une étude par corrélation temporelle nécessitant une cadence d'acquisition d'images adaptée à la viscosité de l'échantillon étudié.

Les échantillons choisis dans le cadre de cette étude ne présentent pas d'absorption et contiennent des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$ . De plus, il est important de noter que l'augmentation de l'indice de réfraction engendrée par la présence de sucrose dans les solutions affecte la section efficace de diffusion et donc le coefficient de diffusion  $\mu_s$  de l'échantillon. Une diminution de  $1.3 \text{ mm}^{-1}$  de  $\mu_s$  peut être observée en comparant une solution ne contenant pas de sucrose à une solution contenant  $0.45 \text{ g/ml}$  de sucrose [Swindells, 1957], les deux solutions contenant le même nombre de diffuseurs en termes de microbilles.

Sachant qu'un changement du coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s$  peut impacter la mesure optique de viscosité (aspect discuté au paragraphe III.3.1), nous adaptions la concentration des diffuseurs parallèlement à l'évolution de la concentration en sucrose de façon à maintenir une valeur constante de  $\mu'_s$  pour toutes les solutions considérées dans ce paragraphe.

#### III.4.1- Mesures mécaniques de la viscosité

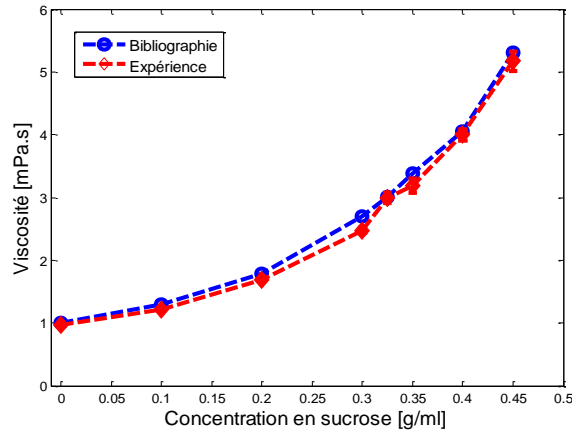
Les mesures mécaniques de la viscosité sont effectuées à l'aide d'un viscosimètre *Contraves Low Shear 30* (Figure III.19). Ces mesures sont basées sur le principe de Couette ; le liquide de viscosité dynamique  $\eta$  donnée est placé entre deux cylindres coaxiaux verticaux. Le cylindre extérieur est fixe alors que le cylindre intérieur est animé d'un mouvement de rotation à vitesse constante. La contrainte exercée par le fluide est alors mesurée et est proportionnelle à la viscosité  $\eta$  et à la vitesse de rotation via un coefficient prenant en compte les caractéristiques géométriques de l'appareil. Le viscosimètre utilisé est équipé d'un régulateur de température afin de stabiliser la température de l'échantillon.



Figure III.19 Viscosimètre Contraves Low Shear 30 utilisé pour mesurer la viscosité des solutions étudiées

La viscosité de solutions de sucrose à différentes concentrations est disponible sous forme de tableau dans la littérature [Swindells, 1957]. Les résultats issus de la bibliographie et ceux provenant des mesures associées aux solutions préparées spécialement pour notre étude, et

ayant différentes concentrations en sucre, sont présentés à la Figure III.20. On constate un excellent accord entre nos propres mesures et celles précédemment publiées.



**Figure III.20** Variation de la viscosité de solutions aqueuses (en mPa.s) en fonction de leur concentration en sucre (en g/ml) à 20°C

Nous allons maintenant présenter les deux approches, spatiale et temporelle, de l'analyse du champ de speckle. Elles sont menées conjointement dans le but de mettre en évidence la capacité de chaque méthode à remonter aux propriétés rhéologiques des échantillons. L'étude est effectuée à une température constante de 20°C pour tous les échantillons. Une comparaison avec les prédictions théoriques de l'approximation de diffusion (équations I.120, I.121 et I.126) est également menée.

#### III.4.2- Etude par corrélation temporelle

Les courbes de corrélation temporelle  $c(\tau)$  sont présentées à la Figure III.21 en fonction du temps pour les différentes concentrations de sucre étudiées. Les courbes présentent différentes vitesses de décorrélation. La décorrélation la plus rapide correspond à la solution aqueuse ne contenant pas de sucre, tandis que la décorrélation la plus lente est liée à l'échantillon contenant la plus grande concentration de sucre, en d'autres termes, ayant la plus grande viscosité.

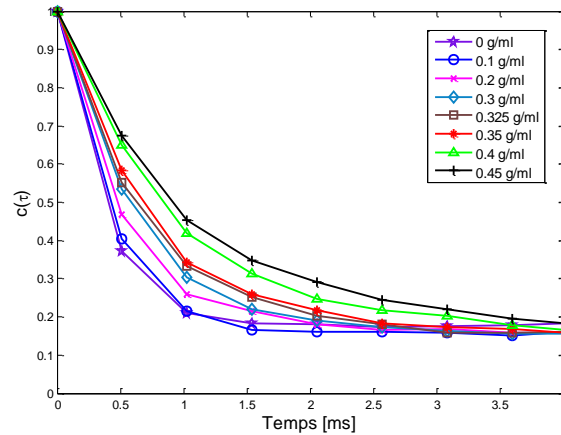


Figure III.21 Variation du coefficient de corrélation  $c(\tau)$  des images de speckle en fonction du temps d'acquisition (en ms) pour des solutions ayant différentes concentrations de sucre et un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms.

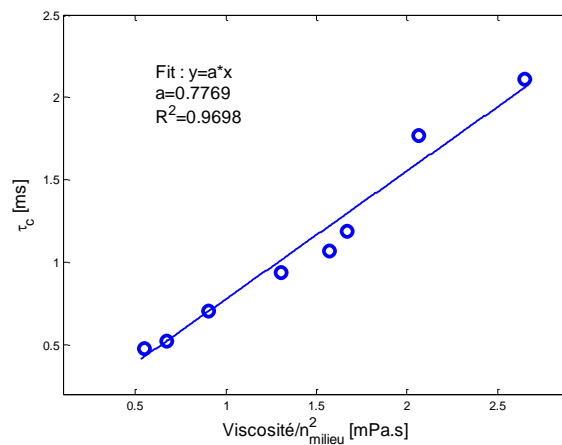


Figure III.22 Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  (en ms) en fonction du rapport entre la viscosité des échantillons (en mPa.s) et le carré de l'indice de réfraction du milieu pour des solutions ayant différentes concentrations de sucre et un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ . Lors de l'acquisition, le temps d'exposition est fixé à 0.5 ms.

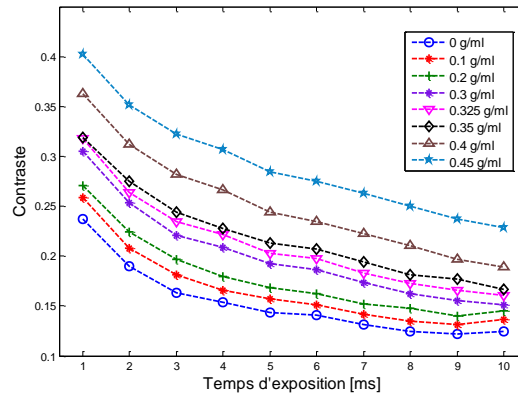
La Figure III.22 montre la variation de  $\tau_c$  en fonction du rapport entre la viscosité des échantillons et le carré de l'indice de réfraction du milieu. On rappelle que ce dernier varie avec la variation de la concentration en sucre (de 1.333 à 1.397) [Swindells, 1957]. Une augmentation de la viscosité fait croître le temps caractéristique sachant que les particules tendent à se déplacer plus lentement dans ce cas.  $\tau_c$  peut donc clairement être corrélé à la viscosité du milieu avec une sensibilité de l'ordre de 0.78 (en  $\text{ms.mPa}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) (pente de la Figure

III.22). Ces données expérimentales s'ajustent parfaitement au modèle donné par l'approximation de diffusion (équation I.121).

Le facteur  $\gamma$ , apparaissant dans l'équation I.121 et lié aux conditions expérimentales, a été calculé après l'estimation des pentes correspondant aux différentes courbes donnant l'évolution de  $\tau_c$  (Figure III.3, Figure III.17, et Figure III.22) et est de l'ordre de 0.5 pour notre dispositif. Ce facteur peut valoir jusqu'à 2/3 dans certaines conditions expérimentales et pour certaines polarisations de la lumière [Hajjarian, 2014].

### III.4.3- Etude spatiale via le contraste

Concernant l'analyse spatiale, nous faisons varier le temps d'exposition des images dans l'intervalle [1 ; 10 ms]. Le comportement du contraste des images de speckle est étudié pour des échantillons de billes de  $0.22 \mu\text{m}$  ayant différentes concentrations de sucrose, et donc différentes viscosités, les autres paramètres étant fixés (coefficient de diffusion réduit et température).

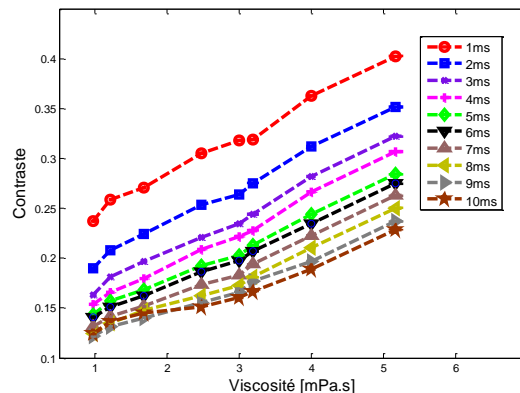


**Figure III.23** Variation du contraste spatial des images de speckle en fonction du temps d'exposition  $T_{\text{exp}}$  (en ms) pour des solutions ayant différentes concentrations de sucrose et contenant des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  et un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ .

La variation du contraste spatial en fonction du temps d'exposition pour les différents échantillons étudiés est représentée à la Figure III.23. Pour chaque échantillon, le contraste de l'image de speckle  $C$  diminue avec l'augmentation du temps d'exposition. En effet, plus le temps d'exposition augmente, plus les fluctuations d'intensité de speckle sont moyennées, ce qui cause une diminution du contraste puisque l'intensité moyenne de l'image reste inchangée,

alors que l'écart-type est réduit. En choisissant un temps d'exposition largement supérieur au temps de fluctuations de l'intensité de l'image de speckle, C tend vers une valeur minimale en raison de l'intégration de toutes les fluctuations d'intensité [Briers, 1996].

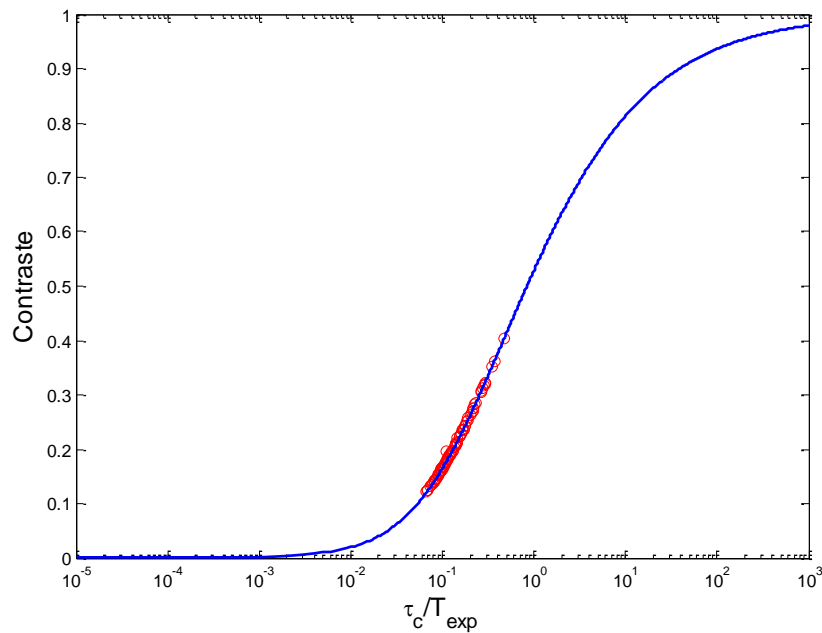
Si l'on considère un temps d'exposition donné, les solutions ayant différentes viscosités possèdent un contraste différent (Figure III.24). En effet, une concentration croissante de sucre augmente la viscosité de la solution, et par suite elle ralentit le mouvement Brownien des microsphères en suspension, ce qui réduit l'activité du speckle. Par conséquent, le contraste des images de speckle, illustré aux Figure III.23 et Figure III.24, augmente de façon significative avec la concentration en sucre et avec la viscosité. En régime de diffusions multiples, la relation entre le contraste et le temps caractéristique est développée dans l'équation I.126. Sachant que le temps caractéristique est proportionnel à la viscosité, une estimation de cette dernière devient alors possible par l'intermédiaire du contraste.



**Figure III.24** Variation du contraste des images de speckle en fonction de la viscosité (en mPa.s) pour différents temps d'exposition. Les solutions contiennent des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  et ont différentes concentrations de sucre et un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$

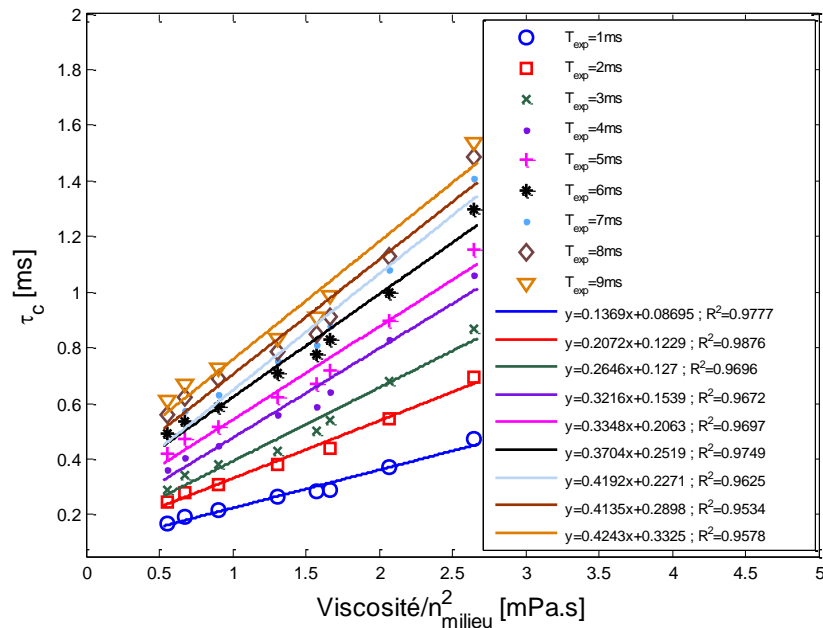
Une estimation de  $\tau_c$  d'après la mesure du contraste à un temps d'exposition donné est ainsi effectuée par inversion du modèle théorique proposé à l'équation I.126. La Figure III.25 montre une comparaison de l'évolution du contraste expérimental (en rouge) en fonction du rapport entre le temps caractéristique et le temps d'exposition. Le modèle théorique (en bleu) (équation I.126) est également tracé.

La Figure III.26 présente la variation du temps caractéristique  $\tau_c$  estimé à partir du contraste en fonction du rapport entre la viscosité et le carré de l'indice du milieu pour différents temps d'exposition  $T_{exp}$ . On retrouve une relation linéaire qui permet de faire un lien direct entre temps caractéristique et viscosité, bien que les courbes d'ajustement linéaires possèdent une ordonnée à l'origine non prévue par le modèle donné par l'équation I.121. De plus, nous constatons que cette ordonnée à l'origine augmente avec le temps d'exposition de l'image. Ceci pourrait être dû au poids croissant du bruit de fond lorsque le temps d'exposition augmente. En effet, le contraste diminue fortement dans ce cas et, de ce fait, le rapport signal/bruit se dégrade quand le temps d'exposition croît.



**Figure III.25** Variation du contraste théorique et expérimental des images de speckle en fonction du rapport entre le temps caractéristique  $\tau_c$  et le temps d'exposition  $T_{exp}$ . Les solutions contiennent des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  et ont différentes concentrations de sucre et un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$ . Les symboles rouges correspondent aux valeurs expérimentales





**Figure III.26** Variation du temps caractéristique  $\tau_c$  calculé à partir du contraste expérimental des images de speckle en fonction du rapport entre la viscosité et le carré de l'indice du milieu pour différents temps d'exposition  $T_{exp}$ . Les solutions contiennent des diffuseurs de diamètre  $0.22 \mu\text{m}$  et ont différentes concentrations de sucre et un coefficient de diffusion réduit  $\mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}$

La sensibilité de cette méthode est donnée par les pentes des ajustements linéaires réalisés à la Figure III.26. Cette sensibilité croît avec l'augmentation du temps d'exposition, mais elle reste toutefois inférieure à la sensibilité de la méthode directe estimant les temps caractéristiques par exploitation des coefficients de corrélation.

### III.4.4- Conclusion et perspectives

Les deux méthodes présentées, basées sur l'analyse temporelle par échantillonnage et par intégration spatio-temporelle du champ de speckle généré par un milieu diffusant, ont prouvé leur capacité à estimer des viscosités faibles, de l'ordre de quelques mPa.s, et à détecter une variation de viscosité d'une solution donnée en accord avec les outils théoriques développés dans le chapitre 1. La cadence d'acquisition élevée de la caméra, ainsi que la moyenne spatiale sur différents temps d'exposition ont permis le suivi de fluctuations rapides avec des constantes de temps très faibles.

Ces résultats constituent une première étape pour la mise au point d'une détection non-invasive et sans contact de variations de faibles valeurs de viscosité. L'intérêt de cette méthode dans le domaine du diagnostic médical, par exemple, est sa capacité potentielle à détecter des maladies engendrant de faibles changements de viscosité dans les fluides biologiques. Ainsi, le diagnostic de la maladie Polycythemia Vera pourrait être réalisé en effectuant des mesures sur des échantillons de sang complet, sachant que la viscosité du sang est 3 fois plus élevée que celle de l'eau, et peut devenir encore 3 fois plus élevée en présence de cette pathologie [Guyton, 2006]. Le syndrome d'hyperviscosité du sérum sanguin pourrait également être détecté grâce à cette méthodologie car il cause une augmentation de la viscosité du sérum sanguin de 1.4 - 1.8 mPa.s à 4 - 5 mPa.s [Stone, 2012] [Mehta, 2003]. Une autre application médicale envisageable serait la détection de l'hyperviscosité du sperme qui témoigne d'un dysfonctionnement de la prostate et un problème éventuel de fertilité [Plessis, 2013] [Flint, 2014]. Les méthodes utilisées actuellement pour la quantification de la viscosité du sperme sont très peu précises. Or, cette maladie cause des changements dans la viscosité du sperme de l'ordre de 7 à 9 mPa.s, des valeurs facilement détectables par les deux méthodes décrites dans ce chapitre. Enfin, une détection de la protéinurie provoquant une augmentation de la viscosité de l'urine qui est souvent un signe de maladie rénale serait également possible.

En outre, les temps d'exposition des images, ainsi que la cadence d'échantillonnage peuvent être modifiés afin d'adapter cette technique de mesure à d'autres applications visant des milieux de viscosité ou viscoélasticité plus élevées. Cette méthode pourrait, par exemple, être une procédure de mesure alternative aux viscosimètres et rhéomètres classiques dans le cas de limitations expérimentales, liées à la température ou à la pression, ou encore à la présence de radiations.

En comparant les deux méthodes présentées en termes de sensibilité, on peut considérer que l'information donnée par la corrélation temporelle présente plus de sensibilité. Par contre, la technique de mesure du contraste spatial permet l'accès à l'information à l'aide d'un appareil photo standard, sans avoir besoin d'utiliser une caméra coûteuse ayant une cadence d'acquisition très élevée. Economiquement parlant, ceci peut être un avantage. En

### Chapitre 3 : Estimation de la dynamique temporelle dans des milieux visqueux

conclusion, le choix entre ces deux approches sera conditionné par un compromis coût/performances du système.



## Chapitre 4 – Speckle polarisé en odontologie

Les problématiques de diagnostic précoce de maladies dentaires, ainsi que le développement de nouveaux matériaux de reconstitution dentaire efficaces, constituent de nos jours des centres d'intérêt en odontologie. En effet, les pathologies dentaires sont un fardeau économique pour les services de santé. Le montant des traitements odontologiques représente un pourcentage non négligeable des dépenses totales en soins de santé. Une étude menée par les associations américaines et internationales pour la recherche dentaire (International Association for Dental Research IADR et American Association for Dental Research AADR) a estimé le coût des traitements directs liés aux maladies dentaires à un total de 298 milliards de dollars américains en 2010 [Listl, 2015], ce qui représente 4.6% des dépenses mondiales de santé. En France, le coût des soins dentaires s'est élevé à 10.6 milliards d'euros en 2013 d'après la Confédération Nationale des Syndicats Dentaires CNSD. Actuellement, la recherche dans le domaine dentaire s'oriente de plus en plus vers le développement d'outils de diagnostic précoce et vers l'élaboration de nouveaux matériaux bioactifs permettant la réparation des dents en cas de maladies.

En raison de son caractère non destructif, de sa facilité de mise en œuvre, ainsi que de son faible coût, il est intéressant d'évaluer la capacité des informations portées par le speckle comme outil de suivi de l'érosion dentaire et de caractérisation de matériaux de reconstitution coronaire dentaire. Ce sont les deux études qui vont être présentées dans ce chapitre.

Dans une première partie, nous exposons brièvement les principales caractéristiques des dents humaines ainsi que les pathologies qui les affectent. La deuxième partie présente les résultats obtenus lors du suivi de l'érosion induite par des boissons acides sur des échantillons de dents humaines par speckle polarisé et imagerie microscopique. Dans une troisième partie, nous nous intéressons au suivi, par speckle polarisé, du séchage de matériaux utilisés pour la restauration dentaire. Les conclusions et les perspectives sont exposées dans la dernière partie.

### IV.1- Caractéristiques et pathologies des dents humaines

La dent est un organe minéralisé des vertébrés composé de structures organiques parmi les plus dures connues. Elle est constituée d'une partie implantée dans une structure osseuse et recouverte de gencive, la racine, et d'une partie libre dans la cavité buccale, la couronne (voir Figure IV.1). La zone de transition entre ces deux parties est appelée le collet [Darwish, 2014].

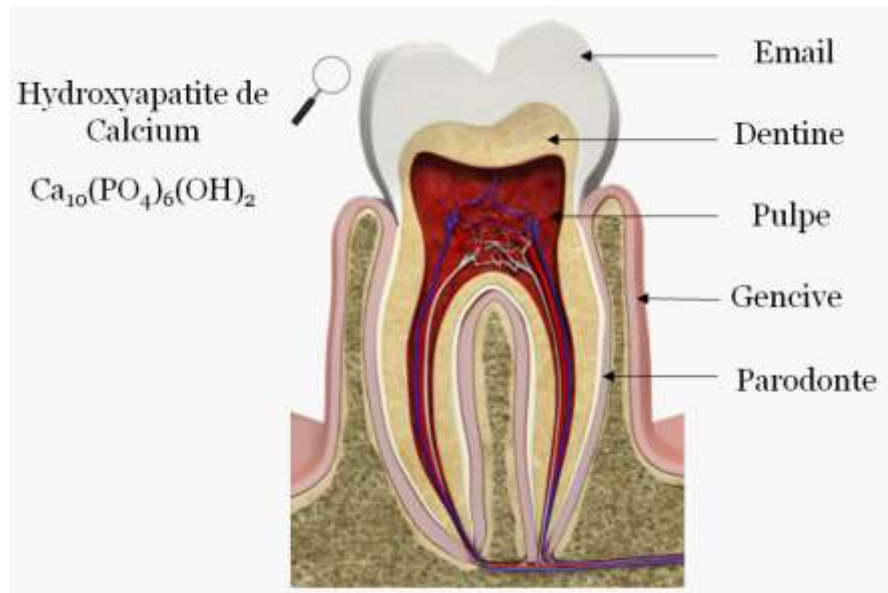


Figure IV.1 Constitution de la dent humaine

La couronne est formée de trois couches :

- L'émail forme la structure externe. Ce tissu est minéralisé à 97% par l'hydroxyapatite de calcium. Les 3% restants constituent la trame organique, composée essentiellement de collagène et d'eau ;
- La dentine constitue la couche intermédiaire. Ce tissu est minéralisé à 70% par l'hydroxyapatite de calcium. Les 30% restants (dont 12% d'eau) constituent la trame organique, composée essentiellement de collagène. La dentine est perforée de microtubes ou tubulis dentaires. Ceux-ci contiennent les prolongements des cellules dentaires, les odontoblastes ;
- La chambre pulpaire est située tout au centre de la couronne et assure l'innervation et la vascularisation en provenance des racines dentaires. Les odontoblastes en tapissent

## Chapitre 4 : Speckle polarisé en odontologie

la périphérie et envoient leurs prolongements dans les tubulis dentinaires. Ils synthétisent la dentine secondaire tout au long de la vie, de manière centripète, et à un rythme très lent. En réponse à une agression carieuse ou traumatique, ils peuvent sécréter à un rythme plus rapide de la dentine réactionnelle aussi appelée dentine tertiaire.

La racine est constituée de trois parties :

- Le cément recouvre la surface externe des racines. Les fibres collagéniques et élastiques du ligament alvéolo-dentaire s'y enracinent ;
- La dentine constitue la couche intermédiaire ;
- Le canal pulpaire est situé tout au centre de la racine et assure l'innervation et la vascularisation.

Parmi les maladies dentaires coronaires les plus fréquentes, on retrouve la carie et l'érosion. Quand la partie extérieure de l'émail est exposée à un acide ( $\text{pH} < 5.5$  [Hicks, 2005]) non bactérien [Baumgartner, 1998] provenant potentiellement d'une alimentation acide, de reflux gastro-œsophagien (suc gastrique de  $\text{pH}$  inférieur à 2), ou de vomissement (anorexie), l'émail subit une perte de minéraux. Ce processus de déminéralisation des cristaux d'hydroxyapatite provoque l'érosion dentaire. L'érosion de l'émail le rend plus sensible à l'usure par abrasion [Correr, 2007].

La formation d'une carie dentaire débute également par une attaque acide. Par contre, contrairement à l'érosion, l'acide provoquant la carie est un acide bactérien. En effet, certaines bactéries adhèrent à la surface de la dent et forment la plaque dentaire produisant de l'acide bactérien. Ce dernier provoque la déminéralisation et les cavités. Durant la déminéralisation, le calcium et le phosphate de l'émail, puis de la dentine, sont dissous.

L'émail dentaire fonctionne comme une structure extérieure résistante, permettant à la dent de résister aux forces abrasives, et possède une structure très compacte. La dentine est légèrement plus dure que les os, mais considérablement moins que l'émail. Une fois l'émail détruit, la dentine est rapidement attaquée par la carie dentaire.

L'érosion dentaire étant irréversible, il est important de la diagnostiquer à des phases assez précoces. Le traitement proposé dépendra de la gravité de la dégradation de l'émail. Une fois que l'érosion est diagnostiquée, des méthodes de ralentissement de l'usure peuvent être proposées, comme par exemple l'adaptation du régime alimentaire, ainsi que l'utilisation de dentifrices et de bains de bouches spéciaux [Singh, 2009]. Dans les cas plus avancés, le traitement consiste à reconstituer la dent à l'aide de matériaux spécifiques [Rekow, 2013], ou à poser une couronne [Daguci, 2012].

Aux premiers stades de déminéralisation de l'émail [Correr, 2007], il se produit :

- Une dislocation des cristaux superficiels d'hydroxyapatite,
- Un élargissement des espaces intercrystallins.

Il se produit alors une augmentation de la porosité de l'émail. Ceci facilite la diffusion en profondeur des acides dans l'émail [Chala, 2004]. A ces stades particuliers, la détection des lésions par les moyens classiques de diagnostic (examen visuel, sondage et radiographie) n'est pas possible. On parle alors de lésion infra-clinique ou sub-clinique [Jaquot, 1995].

La perte de substance de l'émail associée à l'érosion conduit également à d'autres formes d'usure comme l'attrition et l'abrasion. La surface de la dent est ramollie, et la déminéralisation et la perte de substance par la mastication ou le brossage sont favorisées. En cas d'absence d'interventions cliniques efficaces, une perte totale de l'émail aura lieu. La dentine sera donc découverte, ce qui pourra causer des problèmes graves de sensibilité et d'esthétique.

### **IV.2- Détection de phases préliminaires d'érosion dentaire par speckle polarisé**

En cas de détection à des phases précoces, l'érosion dentaire peut être arrêtée. Une stabilisation de l'émail est envisageable par l'utilisation de bains de bouche fluorés et l'adaptation du régime alimentaire. Plusieurs méthodes sont employées pour détecter et étudier l'érosion de l'émail. Certaines reposent sur l'analyse chimique des minéraux dissous dans la salive ; l'analyse du calcium, par exemple, utilisant une électrode sélective d'ions [Hara, 2008]. Bien que ces techniques aient été utilisées in-vivo [Young, 2006], aucune



information morphologique n'est fournie. Elles ne sont pas non plus sensibles à une éventuelle reminéralisation de l'émail. D'autres méthodes, à coût élevé et de nature destructive, telles que la profilométrie de surface [Field, 2010] et la microradiographie [Hall, 1997] sont également utilisées pour la détection et la quantification de la perte de minéraux par érosion dentaire.

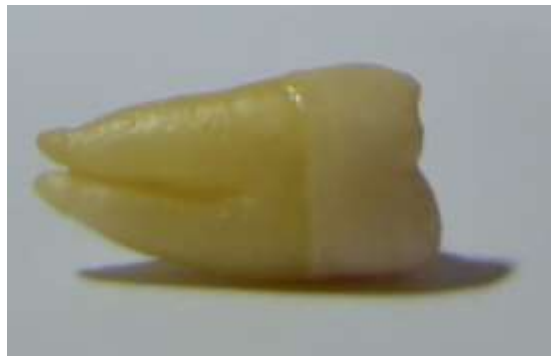
Les méthodes optiques sont de plus en plus considérées comme des méthodes alternatives pour la détection de maladies dentaires, en raison de leur caractère non-invasif, leur simplicité de mise en œuvre, et leur coût relativement faible. Plusieurs méthodes basées sur la modification de propriétés optiques entre dents saines, érodées et cariées ont été proposées [Baumgartner, 1998] [Schlueter, 2011] [ko, 2000] [Darling, 2006] [Borisova, 2006]. La fluorescence induite [Correr, 2007], en particulier par laser (sur laquelle repose le mode de fonctionnement de l'appareil commercialisé "DIAGNOdent") [Lussi, 2004], ou la transillumination avec une lumière proche infrarouge [Jones, 2003], ont été utilisées afin de détecter et de quantifier la présence de lésions sous la surface de l'émail, mais l'exactitude de la prédiction de ces méthodes reste très discutée [Costa, 2008]. En effet, le processus de déminéralisation est accompagné par un changement du coefficient de diffusion [Ko, 2000] [Darling, 2016], de la capacité à dépolariiser la lumière incidente [Everett, 2003], et de la réponse spectrale de la dent [Chung, 2011]. Dans le cas d'une lésion de l'émail, par exemple, une augmentation du coefficient de diffusion et de la capacité à dépolariiser la lumière, ainsi qu'une perte en auto-fluorescence ont été démontrées. La Tomographie par Cohérence Optique (OCT) a également montré sa capacité à générer des images en surface et en profondeur de l'émail en utilisant la lumière proche infrarouge [Wilder-Smith, 2009] et à fournir des informations structurelles précises. Cependant, les études in vivo sont limitées, principalement en raison de la difficulté d'accessibilité et de positionnement de la sonde en OCT.

L'imagerie de speckle a déjà été proposée comme outil de détection de l'érosion dentaire [Koshiji 2015]. Le contraste des images de speckle a été relié au degré d'avancement de l'érosion de dents exposées à une boisson acide. Des études ont été également menées en utilisant la polarisation de la lumière comme outil d'identification de lésions carieuses [Everett,

2003]. Dans notre étude, nous proposons de coupler les informations portées par le speckle à celles données par la polarisation [Abou Nader, 2, 2015] dans le but de réaliser une détection précoce de l'érosion dentaire avec une fiabilité supérieure à celle des méthodes précédemment citées.

#### IV.2.1- Protocole expérimental

Des molaires humaines extraites pour des raisons orthodontiques, ne montrant aucun signe d'érosion ou de caries détectables par un examen visuel effectué par un dentiste expérimenté, ont été utilisées dans notre étude. Les dents ont été exposées à une boisson acide (boisson gazeuse décaféinée (Seven Up de pH = 3,4) au cours de différents cycles d'immersion (de 0 à 660 min). Avant l'exposition à la boisson acide, les surfaces des dents n'ont pas été traitées. A chaque fois que les dents sont retirées de la boisson acide, elles sont lavées avec de l'eau déminéralisée puis séchées ; les mesures de speckle sont ensuite effectuées sur les deux faces de chaque dent. Les dents ont été conservées dans de l'eau distillée à température ambiante après chaque expérience. Durant l'étude, les échantillons ne subissent pas de déminéralisation visible macroscopiquement (voir la Figure IV.2) et ne présentent aucune tache blanche indiquant un début de carie dentaire avant ou après exposition à l'acide.



**Figure IV.2 Image d'une dent à la fin de l'étude, après une immersion cumulative de 660 minutes dans une boisson acide**

Le montage expérimental est illustré à la Figure IV.3. Un laser Hélium-Néon vert émettant à 543 nm, et d'une puissance de 5 mW est utilisé comme source de lumière. Un polariseur à la sortie du laser assure une polarisation linéaire de la lumière incidente. Un analyseur placé devant le détecteur permet de sélectionner les photons ayant une polarisation

particulière, soit parallèle, soit croisée par rapport à la polarisation incidente. Les images de speckle sont prises à un angle  $\theta=21^\circ$  et un temps d'exposition de 10 ms par une caméra CMOS (Photon Focus, taille du pixel= $8\ \mu\text{m} \times 8\ \mu\text{m}$ , 12 bits).

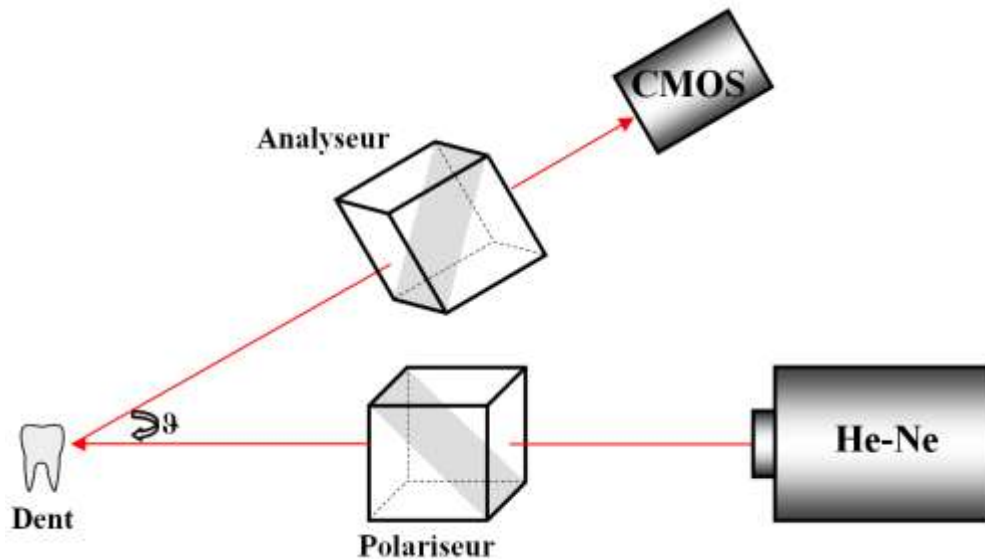


Figure IV.3 Schéma du montage expérimental

#### IV.2.2- Suivi par speckle et imagerie structurale : résultats et interprétations

##### a) Exploitation de l'information polarimétrique

Les intensités moyennes des images enregistrées en choisissant des positions d'analyse parallèle et croisée par rapport à la polarisation incidente sont calculées. Le taux d'extinction  $ER$  représentant le rapport de l'intensité moyenne en polarisation parallèle et celle en polarisation croisée [Everett, 2003] (défini par :  $ER = \frac{I_{\parallel}}{I_{\perp}}$ ) est illustré à la Figure IV.4. Ce facteur varie entre 0 et 1 :  $ER = 0$  indique une préservation de l'état de polarisation initial, par contre  $ER = 1$  reflète une dépolarisation totale. Une diminution du taux d'extinction  $ER$  est observée au fur et à mesure de l'exposition à l'acide.

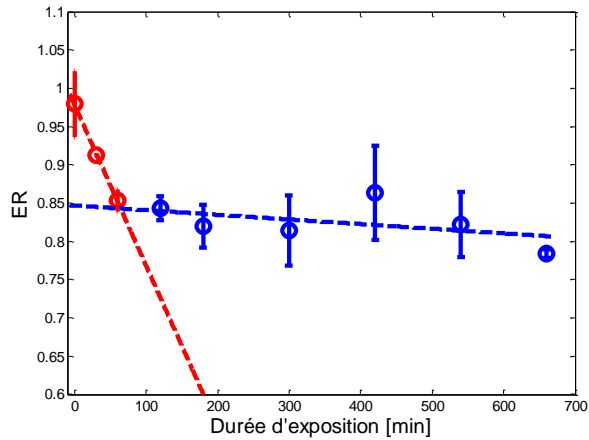


Figure IV.4 Variation du taux d'extinction  $ER$  en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide. Les barres d'erreur correspondent aux écart-types

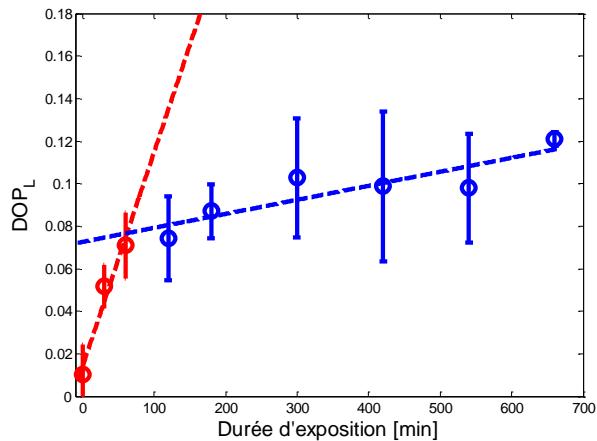


Figure IV.5 Variation du  $DOP_L$  en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide. Les barres d'erreur correspondent aux écart-types

La Figure IV.5 montre la variation du degré de polarisation linéaire, donc la capacité de la dent à dépolariiser la lumière incidente polarisée linéairement en fonction de la durée d'exposition à la boisson acide. Les deux paramètres  $ER$  et  $DOP_L$  font apparaître un brusque changement de comportement mis en évidence par deux ajustements en régression linéaire (voir les traits tiretés aux Figure IV.4 et Figure IV.5) au début et à la fin des mesures. Ce changement montre une sensibilité de la polarisation aux modifications structurelles induites par l'érosion. Avant l'attaque acide (durée d'exposition égale à 0), une forte dépolarisation est observée avec un taux d'extinction proche de 1 et un  $DOP_L$  proche de 0. Cette forte

dépolarisation initiale peut s'interpréter par une forte pénétration de la lumière incidente dans la dent lorsque la surface de celle-ci est lisse (émail non érodé). Quand la durée d'exposition à l'acide augmente, la surface de l'émail est progressivement attaquée et devient plus rugueuse [Rakhmatullina, 2011].

En effet, l'émail, constitué de cristaux d'hydroxyapatite de calcium entourés par une zone inter-prismatique, est soumis à une attaque chimique qui provoque une destruction progressive de cette zone inter-prismatique. La surface étant de plus en plus rugueuse, comme nous le verrons sur les images en microscopie confocale (Figure IV.10, Figure IV.11, Figure IV.12, et Figure IV.13), une composante de diffusion surfacique qui tend à être moins dépolarisée apparaît. Ceci est confirmé par les tendances observées aux Figure IV.4. et Figure IV.5 puisque  $ER$  diminue au fur et à mesure de l'attaque et  $DOP_L$  augmente. Le changement brutal de pente observé après 70 minutes d'exposition à l'acide semble indiquer que la contribution de la diffusion surfacique l'emporte sur la diffusion volumique à cet instant. Ces interprétations vont être confrontées dans la suite de ce chapitre aux informations fournies par les images de speckle : contraste  $C$ , taille de grains  $dx$ , et corrélation temporelle  $c(\tau)$ , ainsi qu'à celles issues de l'observation en microscopie confocale de la surface de la dent avant et après érosion.

*b) Exploitation des informations issues des images de speckle polarisé*

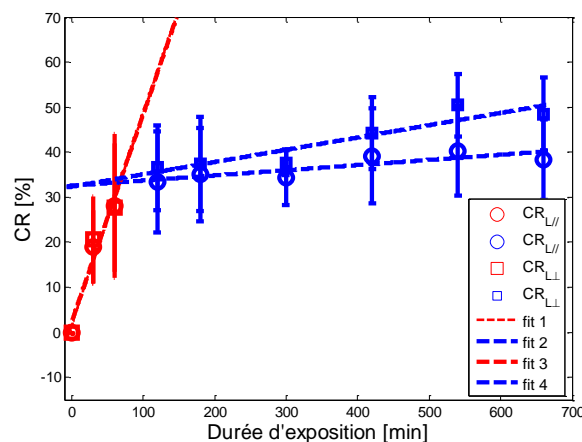
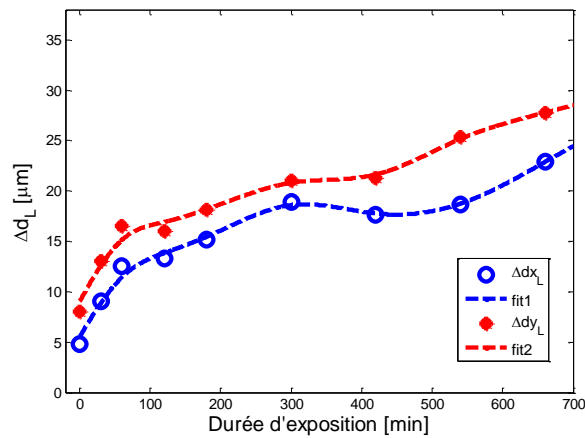


Figure IV.6 Rapport de contraste  $CR$  (en %) en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide

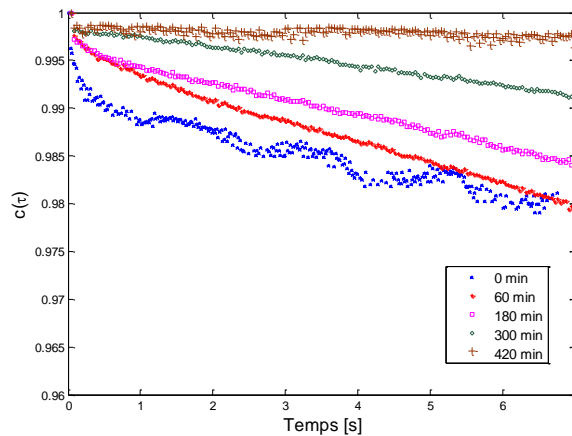


**Figure IV.7 Différence de la taille de grains en configurations parallèle et croisée (en µm) en fonction de la durée d'exposition des dents à une boisson acide**

La relation entre les statistiques du premier et du second ordre du speckle avec la rugosité de la surface imagée a déjà été étudiée pour des rugosités inférieures à la longueur d'onde [Persson, 1992]. Le rapport de contraste défini par  $CR = 1 - \frac{\langle C_{saine} \rangle}{\langle C_{érodée} \rangle}$ , où  $\langle C_{saine} \rangle$  et  $\langle C_{érodée} \rangle$  sont les contrastes moyens des images de speckle prises pour la dent avant et après attaque acide. Son évolution en fonction de la durée d'exposition à une boisson acide est présentée à la Figure IV.6. On remarque une variation dans le contraste de l'image de speckle avec un contraste plus grand dans le cas des dents érodées. Ce comportement a déjà été observé dans une étude menée par Koshoji et al. en 2015 [Koshoji, 2015]. Le changement de pente de la courbe de  $CR$  après environ 70 minutes d'exposition à l'acide est similaire à celui observé sur les courbes de taux d'extinction et de degré de polarisation.  $CR$  peut être relié à la rugosité de surface [Uchino, 2004], et donc à une possible transition entre une diffusion volumique et une diffusion surfacique.

En outre, en considérant les statistiques du second ordre des images de speckle, la taille des grains peut être un paramètre porteur d'informations sur la rugosité de la surface imagée et la profondeur de diffusion. En effet, les tailles des grains de speckle  $dx$  et  $dy$  sont inversement proportionnelles au diamètre de la tache de diffusion. Les photons rétrodiffusés par la surface produisent une tache de diffusion plus petite que celle générée par les photons pénétrant plus profondément dans le volume de l'échantillon éclairé, et ainsi génèrent de plus

grandes tailles de grains  $dx$  et  $dy$ . Les différences de tailles de grains  $\Delta dx_L$  et  $\Delta dy_L$  sont représentées à la Figure IV.7 où les courbes représentent les résultats collectés pour une seule dent en raison de la grande variabilité entre les dents étudiées en termes de tailles de grains. Cette variation de taille de grain est probablement due à l'historique inconnu de ces dents, principalement l'hygiène buccale, et à la différence de structure dentaire variable d'un individu à un autre. Cependant, pour toutes les dents étudiées, on observe les mêmes tendances pour les tailles de grains en fonction de l'augmentation du temps d'exposition à l'acide.  $\Delta dx_L$  et  $\Delta dy_L$  augmentent avec l'érosion subie par la dent.



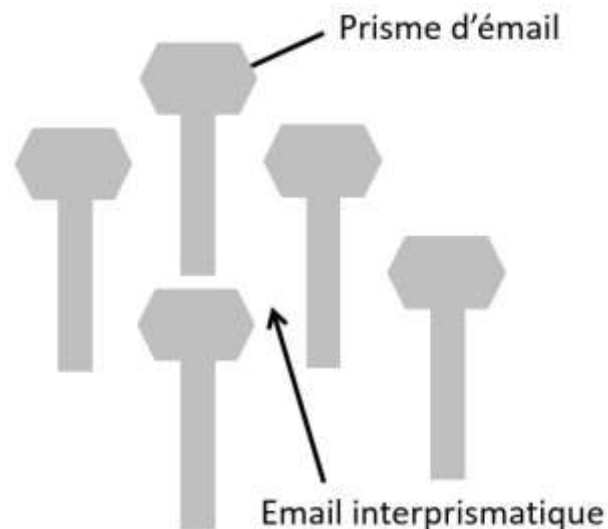
**Figure IV.8 Evolution du coefficient de corrélation  $c(\tau)$  pour différentes durées d'exposition cumulée à une boisson acide. Ces courbes sont obtenues avec des images enregistrées à l'aide de la caméra MotionBLITZ EoSens mini (taille du pixel =  $14 \mu\text{m} \times 14 \mu\text{m}$ ). Le temps d'exposition est égal à 0.5 ms**

Une étude du suivi de l'érosion par une analyse de corrélation temporelle des images de speckle a également été menée sur des dents sèches. L'évolution de la corrélation  $c(\tau)$  est exploitée, non pas pour détecter la viscosité de matériaux comme au chapitre 3, mais pour déceler un éventuel changement de régime de diffusion. La Figure IV.8 montre l'évolution de  $c(\tau)$  pour les dents subissant une attaque acide croissante. Les hypothèses formulées précédemment se trouvent confirmées. Avant exposition de la dent à l'acide, la diffusion est essentiellement volumique : des photons multidiffusés sont principalement collectés, d'où une décorrélation rapide. Au fur et à mesure de l'érosion, la contribution de la diffusion surfacique est croissante, d'où une décorrélation plus lente. Une augmentation de la rugosité de surface

induit donc une élévation du nombre de photons rétrodiffusés par la surface, et de ce fait moins de dépolarisation et un  $c(\tau)$  plus proche de 1.

### *c) Microscopie confocale*

L'émail dentaire se caractérise par sa structure prismatique. Les cristaux d'hydroxyapatite sont organisés typiquement en unités compactes appelées prismes de 4 à 8  $\mu\text{m}$  de large et sont striés longitudinalement. La disposition de ces cristaux à l'intérieur de chaque prisme est très complexe. La Figure IV.9 montre l'imbrication des prismes de l'émail dentaire. Chaque prisme est enveloppé d'une gaine et séparé de son homologue par un espace rempli d'eau et de matière organique appelé émail interprismatique. Ce dernier a la même composition que l'émail organisé en prisme ; l'orientation des cristaux de l'émail interprismatique est différente. La gaine prismatique est la limite pour laquelle les cristaux d'émail prismatique et interprismatique se touchent.



**Figure IV.9 Représentation schématique d'une coupe transversale montrant l'imbrication des prismes de l'émail**

L'émail est non homogène ; il présente différentes structures parmi lesquelles les stries de Retzius qui sont les bandes apparaissant sur l'émail quand il est observé microscopiquement en coupe transversale. A la surface externe de l'émail, ces stries forment des sillons légèrement dépressifs, nommés périkyrmies. Ces périkyrmies commencent à s'estomper puis disparaissent avec l'âge du fait de l'attrition et de l'abrasion [Elhechmi, 2010].



## Chapitre 4 : Speckle polarisé en odontologie

La diffusion de la lumière par l'émail dentaire est fortement dépendante de sa structuration à différentes échelles. Afin de pouvoir interpréter les modifications polarimétriques ou liées au champ de speckle, la structure microscopique de la partie superficielle de l'émail dentaire a été imagée par microscopie confocale après des durées cumulées d'attaque acide correspondant à 0, 300 et 600 minutes d'immersion dans la boisson gazeuse de seven-up.

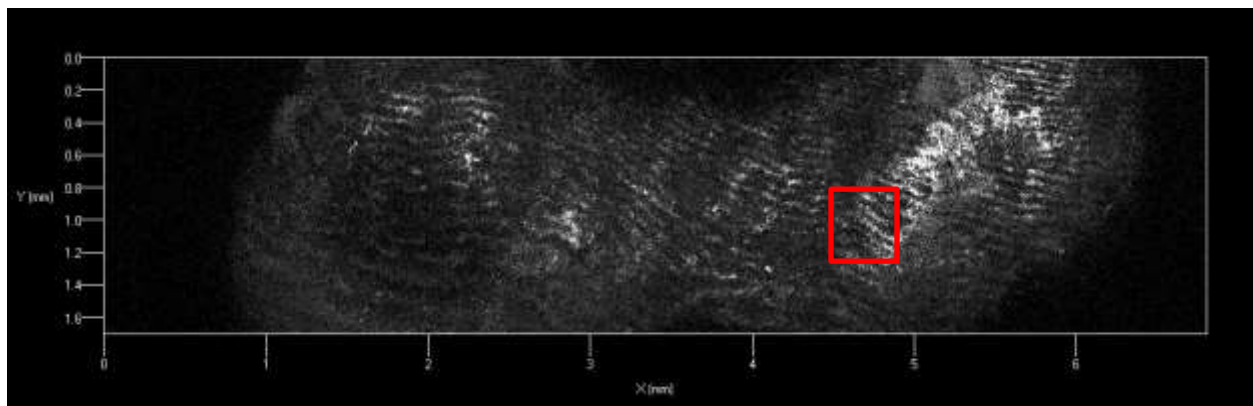


Figure IV.10 Image de réflectance d'une dent saine en microscopie confocale

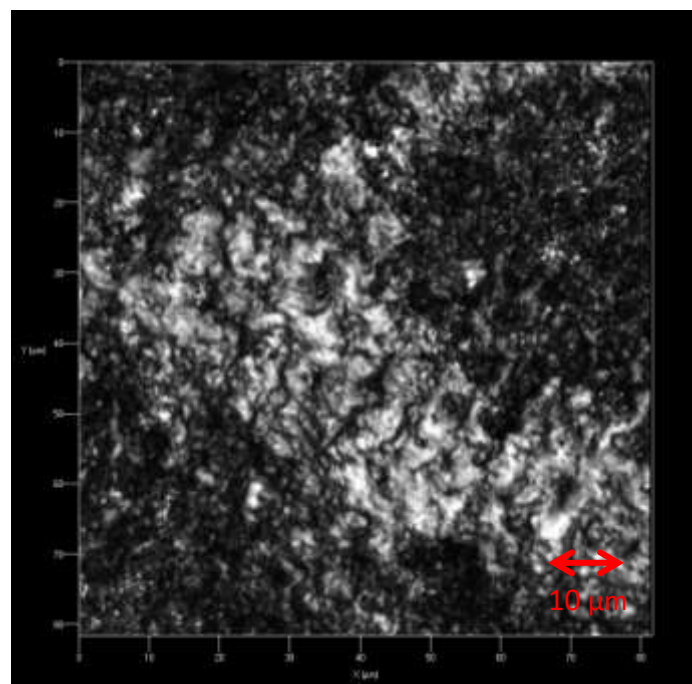
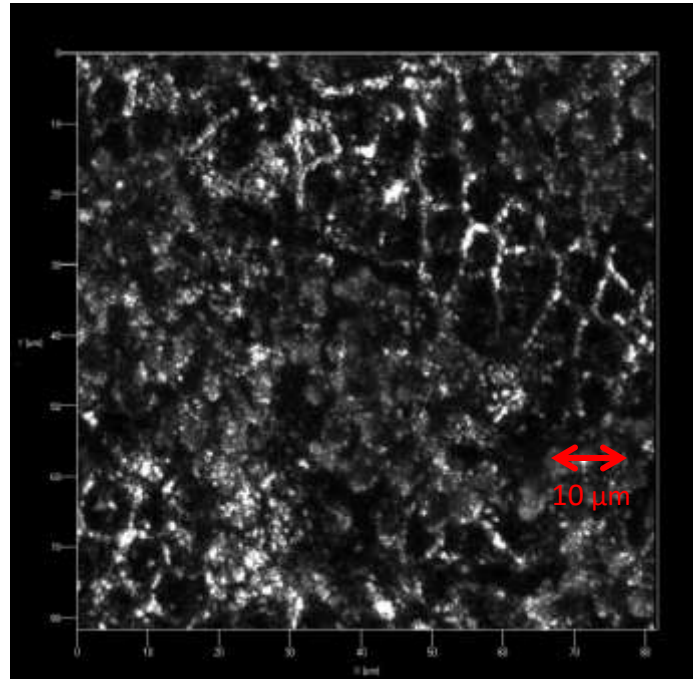


Figure IV.11 Zoom de 80 µm x 80 µm de la Figure IV.10 avant immersion de la dent dans une boisson acide



**Figure IV.12 Zoom de 80 µm x 80 µm de la Figure IV.10 après immersion de la dent dans une boisson acide pendant 600 minutes**

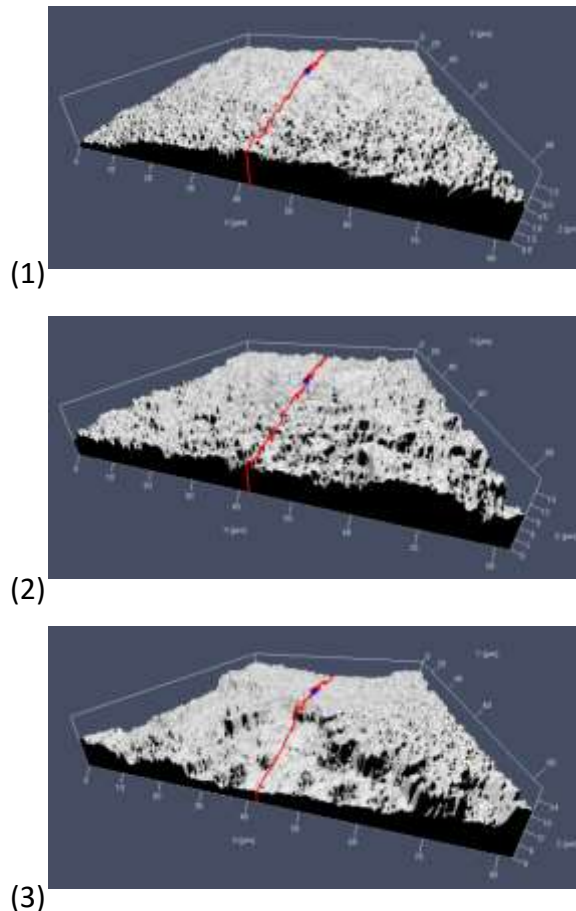
La Figure IV.10 montre une zone de la dent imagée en microscopie confocale. En utilisant un objectif avec un grossissement supérieur (x20), une partie de cette zone, de dimension 80 µm x 80 µm, est imagée avant et après immersion de la dent durant 600 minutes dans une boisson acide (Figure IV.11 et Figure IV.12).

Les images montrent une déminéralisation de la surface de la dent au fur et à mesure de l'érosion. La surface de l'émail devient de plus en plus rugueuse. Cet effet a été également observé en Microscopie Electronique à Balayage (MEB ou SEM) [Rakhmatullina, 2011]. La Figure IV.11 montre une strie de Retzius et la couche amorphe présente sur la surface de l'émail. Après immersion prolongée dans une boisson acide, cette couche n'est plus présente (Figure IV.12). L'attaque acide fait apparaître la structure des prismes de l'émail. Des coupes 3D de cette surface sont présentées à la Figure IV.13 où la Figure IV.13 (1) montre la structure de la surface de la dent avant l'attaque acide. Après une exposition de 300 (Figure IV.13 (2)) et 600 minutes (Figure IV.13 (3)), les rugosités de surface augmentent en termes de profondeur. Ceci

## Chapitre 4 : Speckle polarisé en odontologie

démontre l'augmentation de la rugosité de la surface de l'émail causée par l'attaque acide et explique le changement de régime de diffusion de la lumière constaté sur la surface des dents déminéralisées.

L'étude ex-vivo menée a donc démontré la sensibilité de l'imagerie de speckle polarisé à la détection de stades précoces de déminéralisation de l'émail dentaire, et ceci avant même l'apparition de signes cliniques visibles. Les informations apportées par le speckle et la polarisation semblent en effet indiquer l'apparition d'une contribution de la surface à la diffusion. Cette modification des propriétés de diffusion a été reliée à des stades précoces d'érosion dentaire et à une déminéralisation de la surface des dents, grâce à des observations en microscopie confocale.



**Figure IV.13 Coupes 3D d'une zone de 80  $\mu\text{m}$  x 80  $\mu\text{m}$  de la surface de la dent (1) avant et après immersion dans l'acide pendant (2) 300 et (3) 600 minutes**

Des investigations complémentaires sont néanmoins nécessaires afin de mesurer la sensibilité de cette méthode à différentes échelles de rugosités et de déterminer ses limites expérimentales. En effet, une interprétation possible de la rupture de pente que présentent les paramètres illustrés aux Figure IV.4, Figure IV.5 et Figure IV.6 serait qu'elle soit due à une rugosité qui devient supérieure à la longueur d'onde incidente [Persson, 1992]. L'aspect spectral devrait sans doute être pris en compte en complément des informations de cohérence et de polarisation [Chung, 2011].

### **IV.3- Suivi du séchage de matériaux de restauration dentaire par analyse du champ de speckle**

L'obturation coronaire est la méthode utilisée en médecine dentaire restauratrice afin de permettre à la dent cariée ou présentant des lésions d'usure ou traumatiques de retrouver sa fonction et sa forme complète. Ainsi, le matériau d'obturation coronaire est un moyen de restauration artificiel comblant les défauts causés par la carie. Il existe deux types de restauration dentaire : directe et indirecte. Ces terminologies décrivent la méthode d'application du matériau de restauration. Dans le cas direct, le biomatériau est placé directement sur la dent, tandis que dans le cas indirect, la restauration est fabriquée sur mesure à partir d'une empreinte puis est collée à la dent [Lyons, 2003].

Avec le développement de nouveaux matériaux de restauration collants, adhésifs et libérant des fluorures, le concept de l'obturation dentaire et du traitement des caries a connu des changements radicaux. En effet, les recherches récentes dans ce domaine se focalisent sur le développement de nouvelles substances de restauration remédiant à plusieurs problèmes posés par les matériaux déjà existants. Le but est de concevoir une substance biocompatible ayant de bonnes propriétés mécaniques dont une dureté élevée, comparable à celle de l'émail dentaire, un temps de prise assez court afin de diminuer la durée de l'intervention, ainsi qu'une plus grande bio-activité [Cramer, 2011]. L'évaluation d'un matériau de restauration se base sur de nombreux critères : la capacité du matériau à résister à une dégradation complémentaire potentielle, la durabilité, les contraintes qu'il exerce sur les structures dentaires résiduelles, la résistance à l'usure de la surface, la résistance à la rupture, la toxicité, la susceptibilité à une

sensibilité post-opératoire, l'esthétique, la fréquence de réparation, le prix relatif, etc. Tous ces facteurs importants sont à prendre en compte lors du développement d'un nouveau matériau de réparation dentaire [Davidson, 2009].

Afin de déterminer la résistance des matériaux de restauration dentaire, le module de résistance à la rupture en compression, ainsi que le module d'élasticité moyen sont souvent utilisés [Dowling, 2008] [Papadogiannis, 2008] [Dowling, 2009]. De plus, les contraintes de contraction de ces matériaux pendant leur mise en place sur la dent sont un aspect important à considérer. Le comportement viscoélastique du biomatériau, surtout lors des premières minutes après son application clinique, influe sur son adhésion à la dent et sur la douleur post-opératoire engendrée chez le patient. Dauvillier et al. ont étudié, par une méthode mécanique conventionnelle, les paramètres de viscoélasticité de deux matériaux de restauration dentaire différents (résine composite et ciment verre ionomère) afin de comparer l'efficacité de leur adhésion [Dauvillier, 2000]. La viscoélasticité du ciment verre ionomère est restée relativement basse pendant les 15 premières minutes, et a atteint une valeur maximale après 1h. En outre, il est important de noter que pour des raisons cliniques, il est préférable d'avoir un temps de durcissement post-application court afin d'éviter la gêne du patient.

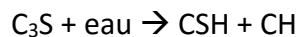
Dans cette étude, nous présentons un suivi de séchage de plusieurs matériaux de restauration dentaire par imagerie de speckle. Une analyse multiparamètre de ces images est menée afin de suivre temporellement, et le plus finement possible, l'évolution du durcissement de chaque matériau.

### **IV.3.1- Matériel utilisé**

Il existe différents types de matériaux de restauration dentaire dont les amalgames, les résines composites, les ciments verre ionomère et les ciments verre ionomère modifiés par adjonction de résine, les ciments tricalcium silicate (matériau de protection pulpo-dentinaire et d'obturation provisoire), ... . Dans notre étude, nous nous intéressons à un ciment silicate de tricalcium pur (Biodentine™, famille des ciments de Portland), et à des ciments verre ionomère (Glass Ionomer Cement GIC) possédant différents mécanismes d'action.

***a) Ciments à base de silicate de calcium: (Biodentine™, tricalcium silicate-based cement)***

Les ciments à base de silicate de calcium ont été introduits dans les années 90. Ces ciments sont caractérisés par l'agrégat minéral de trioxyde (MTA). Ces matériaux sont destinés à remplacer la dentine en cas d'endommagement de cette dernière. Ils sont très biocompatibles. Malgré les avantages qu'ils présentent, leur temps de prise est assez long, de l'ordre de 3 à 4 heures [Torabinejad, 1995]. En outre, ils possèdent une solubilité élevée avant séchage, et ils sont relativement difficiles à manipuler [Kantekin, 2014]. En 2011, le ciment dentaire Biodentine™, une version améliorée des ciments à base de silicate de calcium en termes de temps de prise (temps de prise réduit à 12 minutes environ selon le fabricant [Kantekin, 2014]), de manipulation et de solubilité a été commercialisé. Le ciment Biodentine™ est composé de silicate tri-calcium extra pur en poudre, de poudre de silicate de calcium, de carbonate de calcium et de dioxyde de zirconium. La poudre est disposée dans une capsule à laquelle on ajoute un liquide d'hydratation composé d'eau, de chlorure de calcium et d'un polymère hydrosoluble au moment de la préparation. La réaction chimique d'hydratation lors de la préparation du gel est la suivante :



Ce matériau possède une grande biocompatibilité, une bio-activité, des propriétés de bio-minéralisation et anti-bactériennes, ainsi qu'un effet cytotoxique plus faible que les versions précédentes de MTA [Kantekin, 2014]. Il est intéressant en tant que matériau de coiffage pulpaire direct et indirect, de traitement de perforations, d'obturation en chirurgie endodontique.... Par contre, ce matériau n'est pas un matériau d'obturation coronaire définitive puisqu'il ne doit pas être laissé plus d'un an dans la cavité buccale non recouvert par un autre biomatériau.

***b) Ciments verre ionomère: (Equia Fil™ (Glass Ionomer Cement, GIC))***

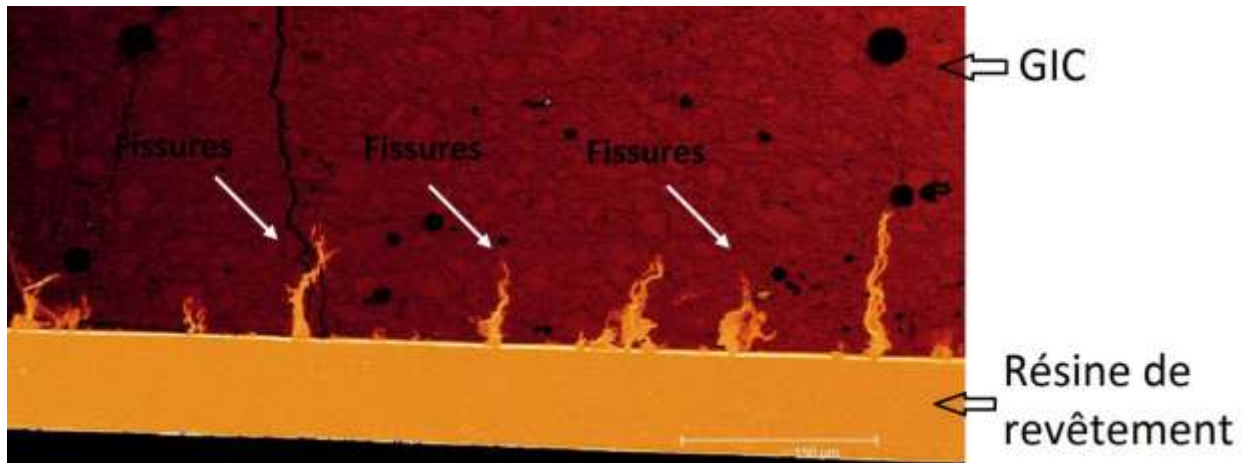
Les GIC ou ciments verre ionomère ont été introduits en 1975. Les GIC conventionnels étaient caractérisés par un temps de prise assez long (24h pour atteindre une dureté optimale)

## Chapitre 4 : Speckle polarisé en odontologie

tout en étant sensibles à l'hydratation pendant l'application clinique. Ceci provoquait une détérioration prématurée de leur surface [Walls, 1986].

Ce matériau est composé d'une poudre contenant essentiellement du verre fluoro-aluminosilicate et d'une solution aqueuse d'acide polyacrylique. Dans le GIC Fuji IXGP™, une des versions les plus récentes de GIC, le strontium a été ajouté afin de se substituer au calcium à cause de ses propriétés radio-opaques [Billington, 2006]. Lors du mélange de la poudre avec la solution liquide, une réaction acide-base se produit entre l'acide polyalcanoïque et les particules ioniques de verre. Cette réaction se fait en deux étapes : la première est une phase de dissolution, pendant laquelle l'acide attaque la surface des particules de verre libérant des ions d'aluminium, fluor, calcium ou strontium. Lors de la seconde étape, le calcium et l'aluminium remplacent les hydrogènes sur le groupe carboxyl du polyacide afin de produire des polysels de calcium et d'aluminium. Le sel s'hydrate pour former une matrice de gel dans laquelle la portion de verre qui n'a pas réagi est piégée [Walls, 1986]. Finalement, le ciment durci sera formé d'un composite de particules de noyaux de verre n'ayant pas réagi, encapsulées dans une matrice polyacide-sel rigide. Le fluorure ne fait pas partie de la matrice, par conséquent, il est susceptible d'être libéré sans compromettre l'intégrité structurelle de la restauration.

Avec les nouvelles générations de GIC (Equia-Fil™ par exemple), le temps de prise a été accéléré et les problèmes d'hydratation ont été réduits [Davidson, 2009]. Le matériau Equia-Fil™ possède des propriétés auto-adhésives et serait insensible à l'humidité. Il fournit une restauration en 195 secondes avec une évolution dans le temps pour atteindre une dureté optimale. Ce matériau est combiné *a posteriori* à une substance de revêtement de surface nano-chargée (G-Coat Plus). Cette résine de revêtement fournit une étanchéité à la surface du GIC en raison de son caractère hydrophobe combiné à une très faible viscosité [Lohbauer, 2010].



**Figure IV.14** Image en microscopie confocale d'un GIC avec sa résine de revêtement. Les porosités de la surface et les fissures de déshydratation sont visibles en mode de fluorescence [Lohbauer, 2010].

Quand un GIC fraîchement mélangé est placé sur de la dentine humide, un échange d'ions entre les deux matériaux a lieu [Yiu, 2004]. L'aluminium, le fluor, et le calcium sortent du ciment pendant que le verre est dissous par le polyacide. Ce processus crée une couche intermédiaire composée d'ions entre le ciment et la dentine. Ceci fournit au GIC un potentiel de reminéralisation des tissus cariés [Ngo, 2006].

### IV.3.2- Protocole expérimental

L'étude présentée est effectuée dans le cadre d'une collaboration avec la faculté d'odontologie de l'Université de Bretagne Occidentale. Les consignes de préparation clinique des matériaux choisis pour notre étude et fournis par les fabricants, sont respectées. Après l'activation du produit, chaque gel est versé dans un moule circulaire faisant 2 mm d'épaisseur et 1 cm de diamètre. Afin de suivre l'évolution du séchage de différentes résines utilisées pour la restauration des dents, des images de speckle sont analysées spatialement et temporellement. Une analyse multiparamètre permettant d'accéder aux dynamiques temporelles de ces différents matériaux est réalisée. L'acquisition des images de speckle est faite à l'instant initial, juste après la mise en place du matériau dans son moule. Puis une nouvelle séquence d'images est prise chaque minute. Compte tenu de la dynamique relativement lente des processus en jeu, les images sont acquises avec un temps d'exposition de 3 ms, une cadence d'acquisition de 47 images par seconde, et une taille de 800 pixels x 768



pixels (Caméra MotionBLITZ EoSens mini, taille du pixel=14  $\mu\text{m}$  x 14  $\mu\text{m}$  avec un shutter électronique).

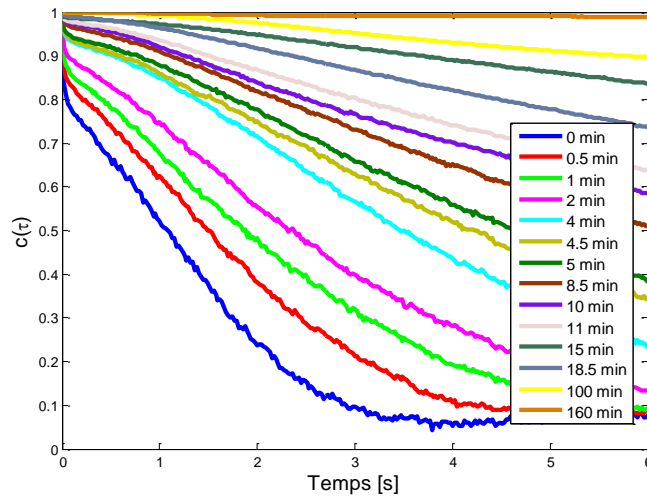
En analysant une série temporelle d'images, nous accédons, d'une part, au coefficient de corrélation temporelle  $c(\tau)$  (équation I.115) et, d'autre part, à la Temporal History of Speckle Pattern, *THSP*, dont on peut extraire le contraste de Briers *BC* (équation I.129) et le moment d'inertie *IM* (équation I.128). Ce suivi temporel du speckle va nous permettre d'accéder directement à la dynamique du milieu étudié. De plus, en effectuant une analyse spatiale et en considérant l'information moyennée sur toute l'image, nous remontons au contraste moyen ainsi qu'à la taille de grain moyenne de speckle. Ce traitement va également nous donner accès, de façon indirecte, aux paramètres dynamiques des échantillons étudiés.

### IV.3.3- Résultats et interprétation

La corrélation temporelle des images de speckle, utilisée pour estimer la viscoélasticité des matériaux [Hajjarian, 2012] est une technique pertinente de suivi des dynamiques de séchage. En effet, le champ de speckle a déjà été employé en tant que tel pour le suivi de séchage de peintures [Arizaga, 2006]. Nous présentons ici les résultats du suivi de séchage des deux matériaux suivants : la *Biodentine*<sup>TM</sup> et l'*Equia Fil*<sup>TM</sup>. Ces matériaux sont des matériaux non photo-polymérisables, la réaction de polymérisation étant uniquement chimique, il n'y a pas d'effets photo-induits.

#### a) Suivi du séchage de la *Biodentine*<sup>TM</sup> :

Les courbes de  $c(\tau)$  présentées à la Figure IV.15 montrent l'évolution de quelques courbes de corrélation temporelle du champ de speckle en fonction du temps, après activation du matériau, et donc le début de la réaction d'hydratation de la *Biodentine*<sup>TM</sup> décrite dans le paragraphe IV.3.1.a Les fluctuations au sein de l'échantillon sont reflétées par le comportement de ces courbes. Au début (courbe à 0 min), l'échantillon présente une dynamique rapide et, avec le temps qui s'écoule, ce mouvement intrinsèque des diffuseurs dans l'échantillon est ralenti. Au bout de 160 minutes, le matériau est complètement sec, et ne présente plus aucune dynamique, l'absence de décorrélation se traduit par une valeur constante de  $c(\tau)$  ( $c(\tau) \approx 1$ ).



**Figure IV.15** Corrélation temporelle des images de speckle pour différents temps après la préparation de la Biodentine™

Compte tenu de l'allure des courbes de corrélation montrant des évolutions temporelles complexes et difficilement reliables aux développements théoriques du chapitre I, l'estimation du temps caractéristique ne peut pas être faite par un ajustement exponentiel. De ce fait, afin de suivre la dynamique d'évolution de l'amortissement, nous introduisons un paramètre noté  $S$  représentant la surface limitée par la courbe de corrélation temporelle et l'axe des  $x$ , de  $x = 0$  jusqu'à une valeur finale que nous choisissons égale à 6.32 s, avec  $S = \int_0^{6.32} c(\tau) d\tau$ .  $S$  est calculé d'après la méthode des trapèzes et son évolution en fonction du temps de séchage est représentée à la Figure IV.16. Cette surface croît avec l'évolution du matériau vers une phase complètement sèche. Des fluctuations sont observées aux alentours de 40 et 100 minutes après activation de la Biodentine™. Ces fluctuations peuvent être dues, soit à un effet d'échauffement thermique du matériau par le laser utilisé comme source de lumière, soit à des effets différenciés en fonction de la profondeur du milieu, le séchage se faisant d'une manière non uniforme de la surface au volume du matériau. Si l'on analyse la Figure IV.16, on peut distinguer dans l'évolution du séchage de la Biodentine™ au moins deux dynamiques différentes : une évolution rapide au début, une rupture de pente au bout de 12 minutes, compatible avec des résultats obtenus par d'autres équipes [Kantekin, 2014], elle-même suivie

d'une évolution lente pour arriver à une stabilisation des propriétés dynamiques au bout de 160 minutes.

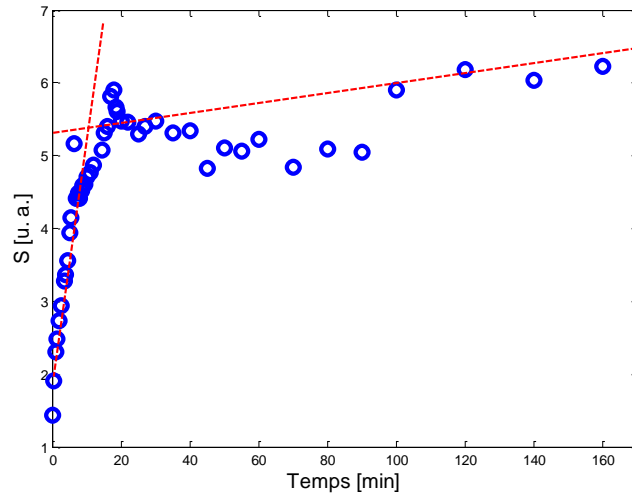


Figure IV.16 Variation du paramètre  $S$  pour différents temps après la préparation de la Biodentine™

Une autre façon d'accéder directement à la dynamique temporelle consiste à analyser les images de  $THSP$  (Figure IV.17). En comparant la figure de  $THSP$  obtenue à  $\tau = 0$  à celle à  $\tau = 160$  minutes, on observe bien des fluctuations au début de la réaction et au contraire une stabilité de la  $THSP$  après le séchage du matériau.

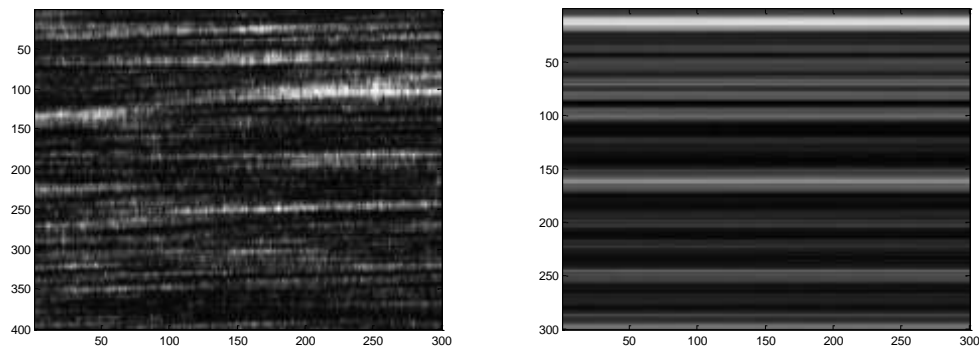


Figure IV.17 Figures de  $THSP$  des images de speckle prises à  $t=0$  (à gauche) et à  $t=160$  minutes (à droite) après la préparation de la Biodentine™

Les deux paramètres  $BC$  et  $IM$  calculés à partir de la  $THSP$  sont présentés aux Figure IV.18 et Figure IV.19. Les valeurs décroissantes de ces paramètres indiquent également une

diminution de l'activité intrinsèque au sein de l'échantillon (paragraphe I.3.2.c.ii) [Braga, 2007]. Ces paramètres présentent également tous les deux une rupture de pente aux alentours de 12 minutes.

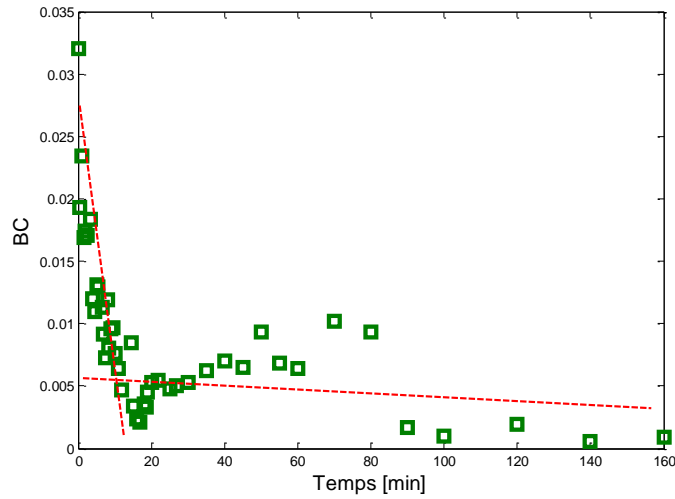


Figure IV.18 Variation du contraste de Briers BC en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™

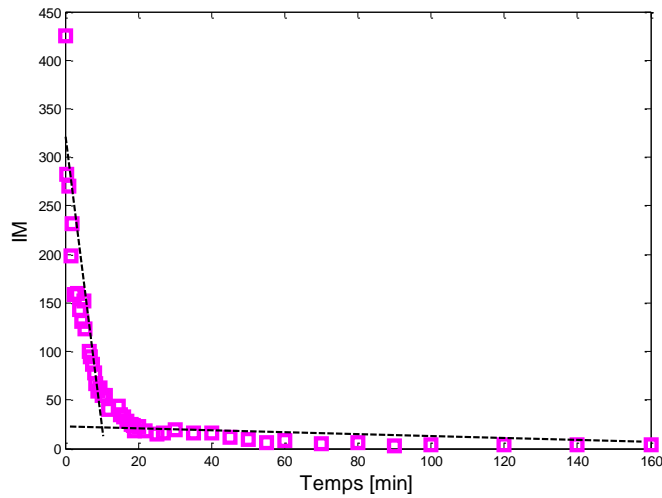


Figure IV.19 Variation du moment d'inertie IM en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™

Une augmentation du contraste spatial des images traduit également une diminution du mouvement des diffuseurs (Figure IV.20). En effet, les images sont de plus en plus contrastées avec le ralentissement de la dynamique de l'échantillon, et donc son séchage. La rupture de pente observée pour le contraste a lieu également aux alentours de 12 minutes après l'activation du matériau. Enfin, au fur et à mesure du séchage, une possible évolution de l'absorption pourrait entraîner une réduction de la tache de diffusion. Ceci s'accompagne, comme le montre la Figure IV.21, d'une légère augmentation moyenne de la taille des grains de speckle  $dx$ . Ce paramètre présente toutefois des fluctuations pendant le séchage, ceci peut être du soit à un bruit expérimental, soit à une fluctuation de l'absorption du biomatériau.

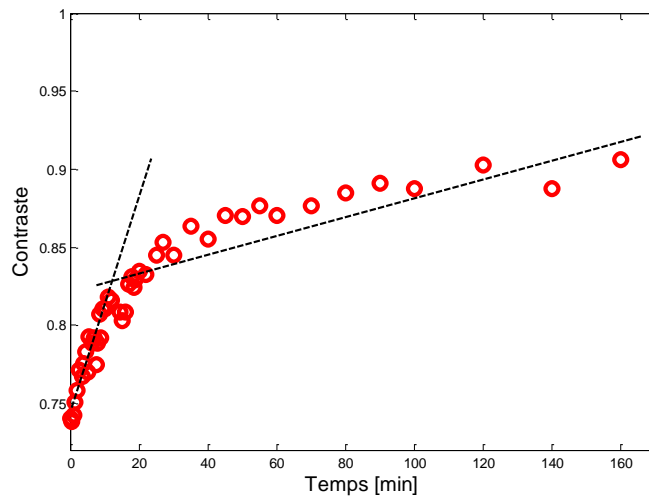


Figure IV.20 Variation du contraste spatial des images de speckle en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™ (temps d'exposition de 3 ms)

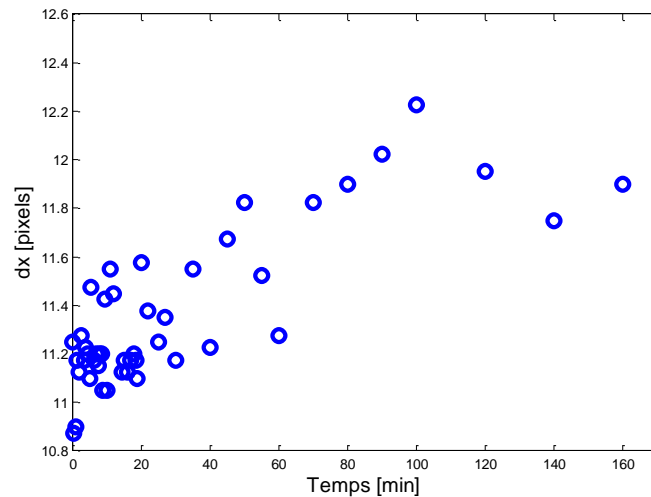


Figure IV.21 Variation de la taille des grains de speckle en fonction du temps après la préparation de la Biodentine™

*b) Suivi du séchage de l'Equia Fil™ :*

Le même suivi spatial et temporel a été effectué dans le cas de l'Equia Fil™. Globalement, les mêmes tendances sont observées pour les différents paramètres envisagés. Elles sont plus monotones et moins bruitées que celles obtenues avec la Biodentine™. Ceci provient probablement de la nature fortement visqueuse de ce matériau dès son activation, contrairement à la Biodentine™ qui possède une texture beaucoup plus fluide.

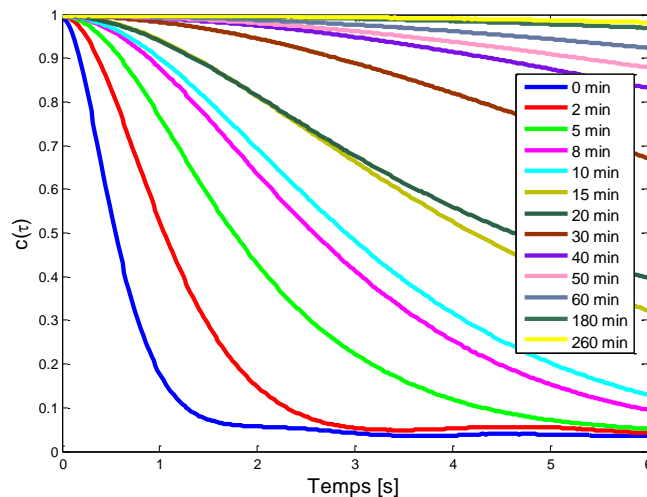


Figure IV.22 Corrélation temporelle des images de speckle pour différents temps après préparation de l'Equia Fil™

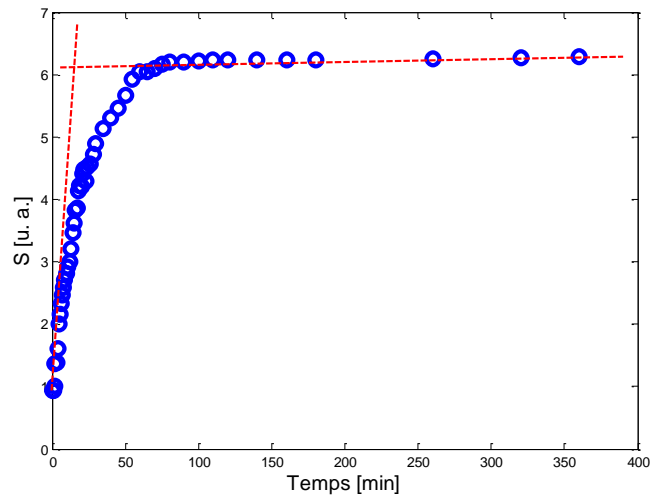


Figure IV.23 Variation du paramètre  $S$  limitée pour différents temps après la préparation de l'Equia Fil™

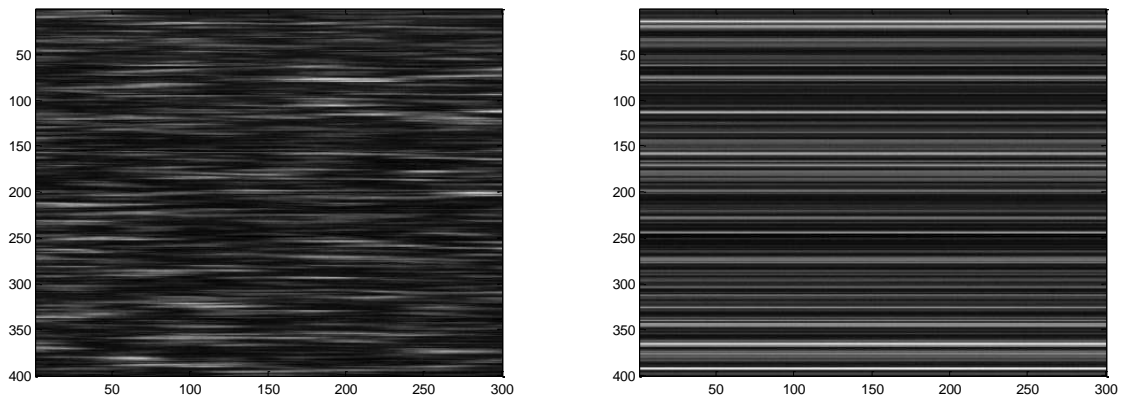


Figure IV.24 Figures de THSP des images de speckle prises à  $t=0$  (à gauche) et à  $t=260$  minutes (à droite) après la préparation de l'Equia Fil™

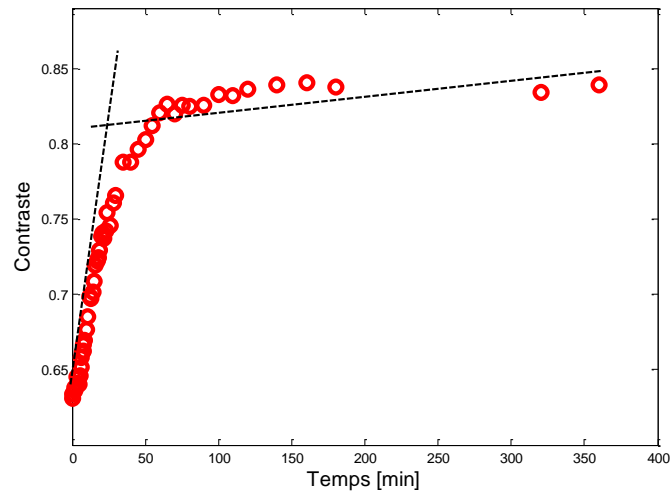


Figure IV.25 Variation du contraste spatial des images de speckle en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™ avec un temps d'exposition des images de 3 ms

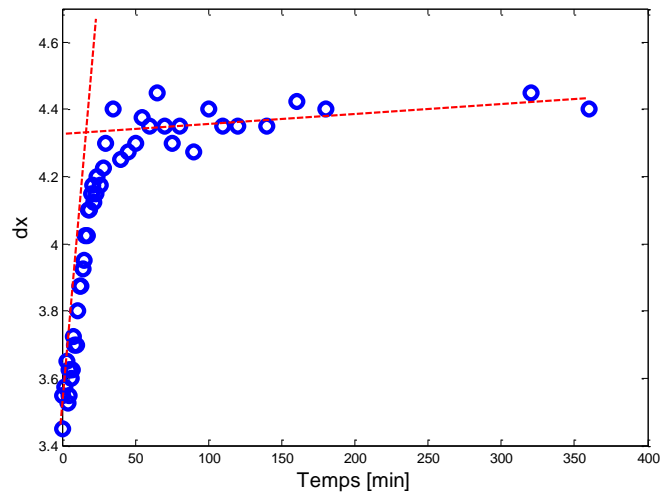


Figure IV.26 Variation de la taille de grain de speckle dx en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™



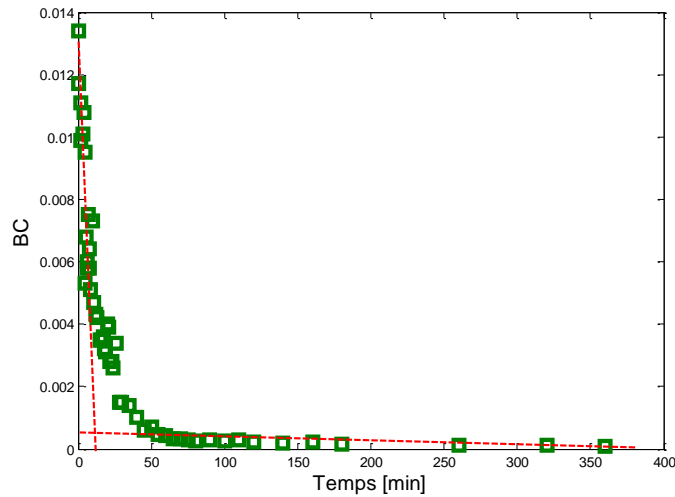


Figure IV.27 Variation du contraste de Briers BC en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™

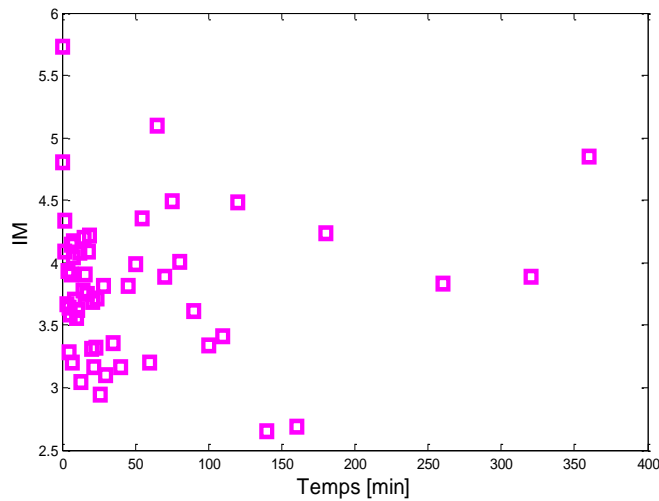


Figure IV.28 Variation du moment d'inertie IM en fonction du temps après la préparation de l'Equia Fil™

A nouveau pour ce matériau, deux régimes de séchage sont observés dans l'évolution du comportement intrinsèque de l'Equia Fil™. Une rupture de pente aux alentours de 9 minutes après activation de ce matériau a été mise en évidence dans les tendances des paramètres calculés à partir du champ de speckle.

## Chapitre 4 : Speckle polarisé en odontologie

Nous avons exclu de notre analyse le paramètre IM présenté à la Figure IV.28, car ce paramètre est extrêmement bruité. Une exploitation complémentaire de ce paramètre sera nécessaire pour justifier ce comportement.

Nous remarquons que les mesures de speckle mettent en évidence une différence de temps de séchage entre les deux matériaux (rupture de pente respectivement observée à 12 minutes et 9 minutes). Cependant, comme pour la Biodentine™, l'influence du flux du laser sur le processus de séchage devra être quantifiée, et des tests avec des épaisseurs variables de matériau devront être menés, puisque le temps de séchage est forcément dépendant de l'épaisseur du matériau considéré. Pour cette même raison, dans l'absolu, une comparaison avec les temps de séchages donnés par les fabricants est difficile, car les conditions exactes de ces estimations par les fournisseurs ne sont pas accessibles.

Dans cette étude, nous avons présenté l'analyse de la diffusion de la lumière comme méthode pertinente pour le suivi du séchage de plusieurs matériaux de restauration dentaire. Une analyse multiparamètre, spatiale et temporelle des images de speckle a reflété l'évolution des matériaux étudiés. Cette technique simple de suivi du séchage pourrait être utilisée dans les laboratoires de recherche élaborant ces matériaux.

### IV.4- Conclusion

L'imagerie de speckle a démontré sa sensibilité à détecter des stades précoces d'érosion dentaire. Toutefois, ces travaux nécessitent un approfondissement afin de mieux comprendre l'impact de l'acide sur la structure dentaire. Cet aspect gagnerait à être étudié en microscopie électronique à balayage. Les aspects de variation de la diffusion par l'émail tout au long du processus d'érosion devraient également être explorés, compte tenu de la structure complexe et variable de l'émail dentaire. Une étude sur un grand nombre d'échantillons de dents devrait être entreprise afin de valider cette technique de suivi, et de quantifier sa précision. Des travaux de mesure en micro-indentation sont également en cours afin d'étudier l'évolution de la micro-dureté des dents en fonction de leur exposition à l'acide. D'autres applications de ce dispositif d'analyse peuvent être envisagées, par exemple : l'évaluation de la restauration et de la reminéralisation dentaire sous l'effet de dentifrices et bains de bouche fluorés, le suivi de

## Chapitre 4 : Speckle polarisé en odontologie

l'impact érosif de certains aliments ou boissons sur les dents. Un suivi du séchage des matériaux de restauration dentaire et l'impact de leurs conditions d'application pourraient également être effectués à partir de l'imagerie de speckle.

## Conclusion et perspectives

Dans ce manuscrit, nous avons adopté une approche multiparamètre de l'analyse du champ de speckle polarisé pour extraire des informations liées à un changement de proportions de tailles de diffuseurs, de coefficient d'absorption, et de dynamique intrinsèque des diffuseurs. Nous avons appliqué ce travail à la caractérisation d'échantillons biologiques, à la détection de phases préliminaires d'érosion dentaire, et au suivi de réactions de polymérisation.

Dans un premier chapitre, nous avons exposé les aspects théoriques du speckle polarisé et détaillé les propriétés optiques d'un milieu matériel interagissant avec une source lumineuse. Les outils d'analyse spatiale d'une image de speckle et d'analyse temporelle d'une série d'images de speckle ont été décrits.

Un deuxième chapitre a détaillé des outils de simulation Monte Carlo, ainsi qu'une étude de suivi de changements dans des milieux biomimétiques liés à la taille et la proportion de diffuseurs, ainsi qu'au coefficient d'absorption du milieu. Les degrés de polarisation linéaire et circulaire, ainsi que la taille de grain de speckle ont permis la détection de changements de tailles des diffuseurs et coefficient d'absorption dans le milieu. Des comparaisons entre les expériences et les simulations ont montré les mêmes tendances vis-à-vis de ce type de changements. Ces études ont permis de justifier scientifiquement des observations effectuées préalablement lors de la caractérisation de milieux biologiques, notamment celle portant sur diverses souches de bio-pesticides de différentes tailles et concentrations.

Dans un troisième chapitre, nous avons étudié la capacité de l'analyse du champ de speckle polarisé à estimer la viscosité de fluides dans une plage allant de 1 mPa.s à 5 mPa.s. Deux méthodes d'analyse ont été proposées et comparées : une analyse temporelle d'une série d'images et une analyse spatiale d'une seule image. Cette étude expérimentale a montré l'influence des paramètres optiques du milieu sur la quantification de la viscosité par analyse du champ de speckle polarisé. Une comparaison des résultats expérimentaux avec un modèle

## Conclusion et perspectives

établi au chapitre 1 à partir de la théorie de la diffusion multiple (Diffusing Wave Spectroscopy DWS) a été réalisée. Ce chapitre a mis en évidence le potentiel de la corrélation temporelle ainsi que du contraste spatial pour l'estimation de la dynamique intrinsèque des fluides liée à leur viscosité. Le contraste spatial, en particulier, a montré sa capacité à déterminer la viscosité d'une solution à partir de l'acquisition d'une seule image de speckle. En effet, nous avons pu relier le contraste à un modèle théorique dans l'approximation de la diffusion afin d'extraire un temps caractéristique reflétant la dynamique du milieu étudié. Malgré la faible sensibilité du contraste par rapport à celle de la corrélation temporelle, ce dernier reste adapté pour plusieurs applications privilégiant le prix bas sur la sensibilité. L'évolution de ces deux paramètres d'intérêt (corrélation temporelle et contraste spatial) avec la température du milieu, le coefficient de diffusion réduit, la taille des diffuseurs qui s'y trouvent, et sa viscosité a été observée expérimentalement. Les perspectives d'application sont nombreuses. Ce type d'analyse pourrait, par exemple, être appliqué dans un cadre médical pour l'estimation de faibles variations de la viscosité de fluides biologiques, associées à des pathologies particulières. Le dispositif de mesure que nous préconisons à cet effet aurait l'avantage d'être sensible et peu coûteux.

Un quatrième chapitre a traité de différentes applications de la méthode proposée dans le domaine de l'odontologie. Une étude de suivi de phases précoces de l'érosion dentaire a montré la capacité du couplage entre l'analyse polarimétrique et l'analyse du champ de speckle à extraire des informations concernant l'état de surface de l'émail dentaire. Le degré de polarisation, le contraste de l'image de speckle, la taille des grains, ainsi que le coefficient de corrélation temporel se sont révélés être des paramètres sensibles aux changements des propriétés de surface d'une dent subissant une érosion par attaque acide. Des images par microscopie confocale ont également permis de suivre ce changement, confirmant les interprétations faites lors de l'analyse du champ de speckle polarisé. Ces observations sont d'autant plus intéressantes qu'elles apparaissent avant tout signe clinique détectable par un praticien. Dans une deuxième partie de ce chapitre, notre approche multiparamètre est utilisée pour le suivi de réactions de polymérisation lors du séchage de matériaux de reconstitution

## Conclusion et perspectives

dentaire. Les paramètres extraits des images de speckle ont démontré une forte sensibilité à la dynamique de séchage et de polymérisation.

De nombreux aspects de nos études restent encore à explorer. Une exploitation approfondie du programme Monte Carlo, en particulier, sera nécessaire afin de rapprocher les résultats expérimentaux et les modèles théoriques simulés. Par exemple, la prise en compte dans le programme des relations de Fresnel aux limites du milieu étudié est nécessaire. L'utilisation d'échantillons de différentes épaisseurs et largeurs pourrait également être envisagée pour confronter théorie et expérience. D'autre part, l'étude de la dimension de la tache de diffusion afin d'estimer la taille des grains reste une piste à exploiter. Une approche multi-spectrale pourrait également être adoptée afin de différencier l'effet de l'absorption de l'effet dû au changement de tailles des diffuseurs sur les paramètres extraits des images de speckle. Une estimation du contraste et du temps caractéristique pour des milieux biomimétiques présentant différents coefficients d'absorption reste également à investiguer. Enfin, il serait intéressant que les coefficients de diffusion et d'absorption soient reliés à un modèle théorique s'inspirant de la théorie de la diffusion multiple. Les applications potentielles de cette étude concernent la caractérisation de différents milieux biologiques en termes de tailles de diffuseurs, de coefficient d'absorption et de diffusion, et de viscosité, notamment des produits alimentaires (huile végétale, vin...) et des fluides biologiques (sang, urine, ...). Des applications industrielles portant sur le suivi du séchage de matériaux (peintures, résines, polymères, colles, ...) constituent également des voies de valorisation possible de ces travaux.



## Bibliographie

[Abou Nader, 1, 2015] C. Abou Nader, R. Nassif, F. Pellen, B. Le Jeune, G. Le Brun, M. Abboud, "Influence of size, proportion, and absorption coefficient of spherical scatterers on the degree of light polarization and the grain size of the speckle pattern," *Appl. Opt.*, **54**(35), 10369-10375 (2015)

[Abou Nader, 2, 2015] C. Abou Nader, F. Pellen, H. Loutfi, R. Mansour, B. Le Jeune, G. Le Brun, M. Abboud, "Early diagnosis of teeth erosion using polarized laser speckle imaging," **21**(7), (2015)

[Abou Nader, 2016] C. Abou Nader, F. Pellen, P. Roquefort, T. Aubry, B. Le Jeune, G. Le Brun, M. Abboud, "Evaluation of low viscosity variations in fluids using temporal and spatial analysis of the speckle pattern," *Optics Letters*, **41**(11), (2016)

[Arizaga, 1999] R. Arizaga, M. Trivi, H. Rabal, "Speckle time evolution characterization by the co-occurrence matrix analysis", *Opt. Laser Technol.*, **31**(2), 163-169 (1999)

[Arizaga, 2006] R. Arizaga, E. E. Grumel, N. Cap, M. Trivi, J. I. Amalvy, B. Yepes, G. Ricaurte, "Following the drying of spray paints using space and time contrast of dynamic speckle," *JCT Research*, **3**(4), 295-299 (2006)

[Backman, 2000] V. Backman, M.B. Wallace, L.T. Perelman, J.T. Arendt, R. Gurjar, M.G. Muller, Q. Zhang, G. Zonios, E. Kline, J.A. McGilligan, S. Shapshay, T. Valdez, K. Badizadegan, J.M. Crawford, M. Fitzmaurice, S. Kabani, H.S. Levin, M. Seiler, R.R. Dasari, I. Itzkan, J. Van Dam, M.S. Feld, "Detection of preinvasive cancer cells," *Nature*, **35** (6), 35-36 (2000)

[Bandyopadhyay, 2005] R. Bandyopadhyay, A. S. Gittings, S. S. Suh, P. K. Dixon, D. J. Durian, "Speckle-visibility spectroscopy: a tool to study time-varying dynamics," *Rev. Sci. Instrum.*, **76**, 093110-11 (2005)

[Bartel, 2000] S. Bartel and A. H. Hielscher, "Monte Carlo simulations of the diffuse backscattering mueller matrix for highly scattering media," *Applied Optics* **39**(10), 1580-1588, (2000)



- [Bashkatov, 2003] A. N. Bashkatov, E. A. Genina, "Water refractive index dependence on temperature and wavelength: a simple approximation", *Proceedings of SPIE* **5068** (2003)
- [Baumgartner, 1998] A. Baumgartner, C.K. Hitzemberger, S. Dichtl, H. Sattmann, A. Moritz, W. Sperr, A.F. Fercher, "Optical coherence tomography of dental structures," *Lasers in Dentistry IV, Proc. SPIE* 3248, 130-136 (1998)
- [Berne, 2000] B.J. Berne, R. Pecora, "Dynamic light scattering: with applications to chemistry, biology, and physics : Dover Publications (2000)
- [Bianchi, 1996] S. Bianchi, A. Ferrara, C. Giovannardi, "Monte Carlos simulations of dusty spiral galaxies: extinction and polarization properties," *American Astronomical Society*, 465(1), 137-144, (1996)
- [Billington, 2006] R. W. Billington, J. A. Williams, G. J. Pearson, "Ion processes in glass ionomer cements," *J. Dent.* 34(8), 544-55 (2006)
- [Boas, 1997] D. A. Boas, A. G. Yodh, "Spatially varying dynamical properties of turbid media probed with diffusing temporal light correlation", *J. Opt. Soc. Am. A*, **14**(1), 192-215 (1997)
- [Bohren, 1983] C. F. Bohren, D. R. Huffman, "Absorption and scattering of light by small particles," Chapter 10, Wiley, New York, (1983)
- [Bonner, 1987] R. F. Bonner, R. Nossal, H. Havlin, G. H. Weiss, "Model for photon migration in turbid biological media", 4(3), 423-432 (1987)
- [Borisova, 2006] E. Borisova, T. Uzunov, L. Avramov, "Laser-induced autofluorescence study of caries model in vitro," *Lasers Med. Sci.*, **21**(1), 34–41 (2006)
- [Boulvert, 2006] F. Boulvert, "Analyse de milieux fortement diffusants par polarimétrie de Mueller et méthodes optiques cohérentes. Application à l'étude du syndrome cutané d'irradiation aiguë," Thèse de doctorat, Université de Bretagne Occidentale, Brest, France (2006)
- [Braga, 2007] R. A. Braga, B. O. Silva, G. Rabelo, R. M. Costa, A. M. Enes, N. Cap, H. Rabal, R. Arizaga, M. Trivi, and G. Horgan, "Reliability of biospeckle image analysis", *Optics and Lasers in Engineering* **45**(3), 390 – 395, (2007)
- [Briers, 1996] J. D. Briers, S. Webster, "Laser speckle contrast analysis (LASCA): a non-scanning, full-field technique for monitoring capillary blood flow," *J. Biomed. Opt.*, **1**(2), 174-179 (1996)

- [Briers, 1978] J. Briers, "The statistics of fluctuating speckle patterns produced by a mixture of moving and stationary scatterers," *Optical and Quantum Electronics* **10**, 364–366, (1978)
- [Brown, 1993] W. Brown, "Dynamic light scattering: the method and some applications," Oxford: Clarendon Press, (1993)
- [Cardinaux, 2002] F. Cardinaux, L. Cipelletti, F. Scheffold, P. Schurtenberger, "Microrheology of giant-micelle solutions," *Europhys. Lett.* **57**(5), 738-744 (2002)
- [Carvalho , 2007] O. Carvalho, B. Clairac, M. Benderitter, and L. Roy, "Statistical speckle study to characterize scattering media: use of two complementary approaches," *Opt. Express*, **15** (21), 13817-13831 (2007)
- [Ceolato, 2015] R. Ceolato, M. Golzio, C. Riou, X. Orlik, N. Riviere, "Spectral degree of linear polarization of light from healthy skin and melanoma," *Opt. Express*, **23** (10), 13605-13612 (2015)
- [Chang, 2004] P.C.Y. Chang, J.G. Walker, K.I. Hopcraft, "Ray tracing in absorbing media, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*," **96**, 327-341 (2005)
- [Chala, 2004] S. Chala, R. Bouamara, F. Abdallaoui, "Diagnostic methods of initial carious lesions," *Rev. Odont. Stomat.* **33**, 297-310 (2004)
- [Chandrasekhar, 1950] S. Chandrasekhar, "Radiative Transfer," Oxford Clarendon Press, (1950)
- [Chau, 2008] A. H. Chau, J. T. Motz, J. A. Gardecki, S. Waxman, B. E. Bouma, G. J. Tearney, "Fingerprint and high-wavenumber Raman spectroscopy in a human-swine coronary xenograft in vivo," *J Biomed Opt*, **13**(4) , 040501 (2008)
- [Chen, 2004] S. Chen, M. Fatemi, J. F. Greenleaf, "Quantifying elasticity and viscosity from measurement of shear wave speed dispersion," *J. Acoust. Soc. Am.*, **115**(6), 2781-2785 (2004)
- [Cheng, 2013] Y. Cheng, S. Li, R. J. Eckersley, D. S. Elson, M. X. Tang, "Viscosity measurement based on shear-wave laser speckle contrast analysis," *J. Biomed. Opt.*, **18**(12), 1215111-1215116 (2013)
- [Chipman, 1995] R. A. Chipmann, Polarimetry, M Bass (Ed.), "Handbook of optics (second ed.) ," McGraw-Hill, New York (1995)
- [Chung, 2011] S. Chung, D. Fried, M. Staninec, C. L. Darling, "Multispectral near-IR reflectance and transillumination imaging of teeth," *Biomed Opt Express*, **2**(10) 2804-2814 (2011)

- [Cipelletti, 1999] L. Cipelletti, D.A.Weitz, "Ultralow angle dynamic light scattering with a charge coupled device camera based multispeckle multitaup correlator," *Rev Sci Instrum*, **70**, 3214–3221 (1999)
- [Correr, 2007] G.M. Correr, R.C.B. Alonso, S. Consani, R.M. Puppini-Rontani, J.L. Ferracane, "In vitro wear of primary and permanent enamel. Simultaneous erosion and abrasion," *Am. J. Dent.* **20**(6), 394-9 (2007)
- [Costa, 2008] A. M. Costa, L. M. De Paula, A. C. B. Bezerra, "Use of Diagnodent for diagnosis of non-cavitated occlusal dentin caries," *J appl Oral Sci*, **16**(1), 18-23 (2008)
- [Cramer, 2011] N. B. Cramer, J. W. Stansbury, C. N. Bowman, "Recent advances and developments in composite dental restorative materials," *J. Dent. Res.* **90**(4), 402,416 (2011)
- [Cross, 2008] S. E. Cross, Y. S. Jin, J. Tondre, R. Wong, J. Rao, J. K. Gimzewski, "AFM-based analysis of human metastatic cancer cells, *Nanotechnology* **19**, 384003 (2008)
- [Daguci, 2012] C. Daguci, L. Daguci, R. Popescu, V. Mercut, M. Bataiosu, A. Pitru, "Considerations on dental bridges stability and balance for mandibular teeth with coronary-root amputation," *Curr. Health Sci. J.*, **38**(4), 188-190 (2012)
- [Darling, 2006] C.L. Darling, G.D. Huynh, D. Fried, "Light scattering properties of natural and artificially demineralized dental enamel at 1310 nm," *J. Biomed. Opt.*, **11**(3), 34023 (2006)
- [Darwish, 2014] S. S. Darwish, S. H. Abd El Mequid, N. A. Wahba, A. A. Mohamed, W. Chrzanowski, E. A. Abou Neel, "Root maturation and dentin pulp response to enamel matrix derivate in pulpotomized permanent teeth," *T. Tissue Eng.*, **2**(5), (2014)
- [Dauvillier, 2000] B. S. Dauvillier, A. J. Feilzer, A. J. De Gee, C. L. Davidson, "Visco-elastic parameters of dental restorative materials during setting," *J. Dent. Res.* **79**(3), 818-23 (2000)
- [Davidson, 2009] C. L. Davidson, "Advances in glass-ionomer cements," *J. Minim. Interv. Dent.* **2**(1), 3-14 (2009)
- [Dowling, 2008] A. H. Dowling, G. J. P. Fleming, "Is encapsulation of posterior glass-ionomer restoratives the solution to clinically induced variability introduced on mixing?," *Dent. Mater.* **24**(7), 957-66 (2008)
- [Dowling, 2009] A. H. Dowling, G. J. P. Fleming, "Are encapsulated anterior glass-ionomer restoratives better than their hand-mixed equivalents?," *J. Dent.* **37**(2), 133-40 (2009)

- [Du, 2014] E. Du, H. He, N. Zeng, M. Sun, Y. Guo, J. Wu, S. Liu, H. Ma, "Mueller matrix polarimetry for differentiating characteristic features of cancerous tissues", *J. Biomed. Opt.*, **19**(7), 0760131-0760138 (2014)
- [Du Plessis, 2013] S. S. Du Plessis, S. Gokul, A. Agarwal, "Semen hyperviscosity: causes, consequences, and cures", *Front. Biosci. (Elite Ed.)*, **1**(5), 224-31 (2013)
- [Elhechmi, 2010] I. Elhechmi, "Instrumentation optique pour la mesure des périkymaties de la couronne dentaire," thèse de doctorat, Université de Franche-Comté (2010)
- [Everett, 2003] M.J. Everett, B.W. Colston, Jr.U.S. Sathyam, L.B. Da Silva, D. Fried, "Optical detection dental disease using polarized light," US 6522407 B2 (2003)
- [Falconet, 2008] J.L. Falconet, R. Sablong, E. Perrin, F. Jaillon, H. Saint-Jalmes, "Analysis of simulated and experimental backscattered images of turbid media in linearly polarized light: estimation of the anisotropy factor," *Appl. Opt.* **47** (31), 5811-5820 (2008)
- [Fercher, 1981] A.F. Fercher, J.D. Briers, "Flow visualisation by means of single-exposure speckle photography," *Optics Communications*, **37**(5), 326-330 (1981)
- [Field, 2010] J. Field, P. Waterhouse, M. German, "Quantifying and qualifying surface changes on dental hard tissues in vitro," *J. Dent.* **38**(3), 182-190 (2010)
- [Flint, 2014] M. Flint, S. S. du Plessis, R. Menkveld, "Revisiting the assessment of semen viscosity and its relationship to leucocytospermia", *Andrologia*, **46**, 837-841 (2014)
- [Flock, 1989] S. Flock, M. Patterson, B. Wilson, D. Wyman, "Monte Carlo modeling of light propagation in highly scattering tissues. i. model predictions and comparison with diffusion theory," *Biomedical Engineering, IEEE Transactions on* **36**(12), 1162-1168, (1989)
- [Fukui, 2010] K. Fukui, Y. Asakuma, K. Maeda, "Determination of liquid viscosity at high pressure by DLS," *J. Phys.: Conf. Ser.* **215**(1), 012073-0120737 (2010)
- [Gandjbakhche, 1993] A. H. Gandjbakhche, R. Nossal, R. F. Bonner, "Scaling relationships for theories of anisotropic random walks applied to tissue optics," *Appl. Opt.* **32**(4), 504-516 (1993)
- [Gerritsen, 1968] H. J. Gerritsen, W. J. Hannan, E. G. Ramberg, "Elimination of speckle noise in holograms with redundancy," *Appl. Opt.*, **7**(11), 2301-11 (1968)

- [Ghabbach, 2014] A. Ghabbach, M. Zerrad, G. Soriano, S. Liukaityte, C. Amra, "Depolarization and enpolarization DOP histograms measured for surface and bulk speckle patterns," *Opt. Express* **22**(18), 21427-21440 (2014)
- [Ghosh, 2003] N. Ghosh, H. Patel, and P. Gupta, "Depolarization of light in tissue phantoms - effect of a distribution in the size of scatterers," *Opt. Express* **11**(18), 2198–2205, (2003)
- [Ghosh, 2011] N. Ghosh and I. A. Vitkin, "Tissue polarimetry: concepts, challenges, applications, and outlook," *J. Biomed. Opt.* **16**(11), 110801 (2011)
- [Graham, 2015] W. Graham, X. Pan, "Polarization-dependant Raman spectroscopy of epitaxial TiO<sub>2</sub>(B) thin films," *Chemistry of Materials* **27**(23), 7896-7902 (2015)
- [Goldstein, 2003] D. Goldstein, "Polarized light, revised and expanded", CRC Press, (2003)
- [Goodman, 1968] J. W. Goodman, "Introduction to Fourier Optics", McGraw-Hill, San Francisco, (1968)
- [Goodman, 1984] J. W. Goodman, "Statistical properties of laser speckle patterns", *Laser Speckle and Related Phenomena* (2eme edition), J. C. Dainty, Springer-Verlag, Berlin, 9-76 (1984)
- [Greenstein, 1941] L. H. et J.L. Greenstein, "Diffuse radiation in the galaxy," *Astrophysical Journal*, **93**, 70 - 83, (1941)
- [Guyton, 2006] A. C. Guyton, J. E. Hall, "Textbook of medical physiology," Chapter 14, 11<sup>th</sup> edition, Elsevier Saunders, 169-170 (2006)
- [Hajjarian, 2012] Z. Hajjarian, S. K. Nadkarni, "Evaluating the viscoelastic properties of tissue from laser speckle fluctuations," *Sci. Rep.*, **2**(316), 1-8 (2012)
- [Hajjarian, 2013] Z. Hajjarian, S. K. Nadkarni, "Evaluation and correction for optical scattering variations in Laser Speckle Rheology of biological fluids", *PLoS one*, **8**(5), 1-12, (2013)
- [Hajjarian, 2014] Z. Hajjarian, S. K. Nadkarni, "Correction of optical absorption and scattering variations in laser speckle rheology measurements," *Opt. Express*, **22**(6), 6349-6361 (2014)
- [Hall, 1997] A.F. Hall, J.P.Sadler, R. Strang, E. De Josselin De Jong, R.H. Foye, S.L. Creanor, "Application of transverse microradiography for measurement of mineral loss by acid erosion," *Adv. Dent. Res.*, **11**(4), 420-425 (1997)

- [Hara, 2008] A.T. Hara, R.L. Karlinsey, D.T. Zero, "Dentine remineralisation by simulated saliva formulations with different Ca and P in contents," *Caries Res.* **42**, 51-56 (2008)
- [Hebden, 1997] J. C. Hebden, S. R. Arridge, D. T. Delpy, "Optical imaging in medicine: I. Experimental techniques," *Phys. Med. Biol.* **42**, 825-840 (1997)
- [Hicks, 2005] J. Hicks, F. Garcia-Godoy, C. Flaitz, "Biological factors in dental caries enamel structure and the caries process in the dynamic process of demineralization and remineralization (part 2)," *J. Clin. Pediatr. Dent.* **29**(2), 119-124 (2005)
- [Hielscher, 1997] A.H. Hielscher, J.R. Mourant, I.J. Bigio, "Influence of particle size and concentration on the diffuse backscattering of polarized light from tissue phantoms and biological cell suspensions," *Appl. Opt.* **36** (1), 125-135 (1997)
- [Hovenier, 1968] J. W. Hovenier, "Symmetry relationships for scattering of polarized light in a slab of randomly oriented particles," *Journal of the Atmospheric Sciences*, **26**, 488-499, (1968)
- [Inman, 2013] B. A. Inman, W. Etienne, R. Rubin, R. A. Owusu, T. R. Oliveira, D.B. Rodrigues, P. F. Maccarini, P. R. Stauffer, A. Mashal, M. W. Dewhirst, "The impact of temperature and urinary constituents on urine viscosity and its relevance to bladder hyperthermia treatment", *Int. J. Hyperther.*, **29** (3), 206-210 (2013)
- [Jacques, 1987] S. L. Jacques, C. A. Alter, and S. A. Prahl, "Angular dependence of HeNe laser light scattering by human dermis," *Lasers Life Sciences* **1**, 309-333, (1987)
- [Jacques, 2000] S. L. Jacques, J. R. Roman, K. Lee, "Imaging superficial tissues with polarized light," *Lasers Surg. Med.* **26**(2), 119-29 (2000)
- [Jacques, 2002] S. L. Jacques, J. C. Ramella-Roman, K. Lee, "Imaging skin pathology with polarized light", *J. Biomed. Opt.*, **7**(3), 329-340 (2002)
- [Jacques, 2003] S. L. Jacques, "Optical properties of biological tissues: a review," *Phys. Med. Biol.* **58**, 37-61 (2003)
- [Jakeman, 1984] E. Jakeman, "Speckle statistics with a small number of scatterers," *Optical Engineering* **23**, 453-461, (1984)
- [Jaquot, 1995] B. Jaquot, A. Fontaine, "Étude clinique de la carie," *Encyclo. médico-chir.* **23**, 10 (1995)

- [Jones, 1941] R. C. Jones, "A new calculus for the treatment of optical systems", *J. Opt. Soc. Am.* **31**(7), 488-493 (1941)
- [Kantekin, 2014] K. Cantekin, S. Avici, "Evaluation of shear bond strength of two resin-based composites and glass ionomer cement to pure tricalcium silicate-based cement (Biodentine)," *J. Appl. Oral Sci.* **22**(4), 302-306 (2014)
- [Kattawar, 1989] G. W. Kattawar, C. N. Adams "Stokes vector calculations of the submarine light field in an atmosphere-ocean with scattering according to a Rayleigh phase matrix: effect of interface refractive index on radiance and polarization," *Limnol. Oceanogr.*, **34**(8), 1453-1472, (1989)
- [Kirkpatrick, 2003] S. J. Kirkpatrick, M. T. Hinds, D. D. Duncan, "Acousto-optical characterization of the viscoelastic nature of a nuchal elastin tissue scaffold," *Tissue Eng.*, **9**(4), 645-656 (2003)
- [ko, 2000] C.C. Ko, D. Tantbiroj, T. Wang, W.H. Douglas, "Optical scattering characterization of mineral loss," *J. Dent. Res.* **79**(8), 1587-1589 (2000)
- [Konishi, 2002] N. Konishi, Y. Tokimoto, K. Kohra, H. Fujii, "New laser speckle flowgraphy system using CCD camera," *Optical Review*, **9**(4), 163-196 (2002)
- [Koshoji, 2015] N. H. Koshoji, S.K. Bussadori, C.C. Bortoletto, R.A. Prates, M.T. Oliveira, A.M. Deana, "Laser Speckle Imaging: A Novel Method for Detecting Dental Erosion," *PLoS one* **10**(2), 0118421-0118429 (2015)
- [Kunnen, 2014] B. Kunnen, C. Macdonald, A. Doronin, S. Jacques, M. Eccles, I. Meglinski, "Application of circularly polarized light for non-invasive diagnosis of cancerous tissues and turbid tissue-like scattering media," *J. Biophotonics*, **1**(7), 317-323 (2014)
- [Lakes, 2004] R. S. Lakes, "Viscoelastic measurement techniques," *Rev. Sci. Instrum.*, **75**(4), 797-810 (2004)
- [Lea, 2011] W. A. Lea, A. Simeonov, "Fluorescence polarization assays in small molecule screening," *Expert Opin. Drug Discov.* **6**(1), 17-32 (2011)
- [Li, 2002] J. Li, G. Yao, L. V. Wang, "Degree of polarization in laser speckles from turbid media: Implications in tissue optics," *J. Biomed. Opt.* **7**(3), 307-312 (2002)
- [Li, 1992] Q. B. Li, F. P. Chiang, "Three-dimensional dimension of laser speckle," *Appl. Opt.*, **31**(29), 6287-6291 (1992)

- [Listl, 2015] S. Listl, J. Galloway, P. A. Mossey, W. Marcenes, "Global economic impact of dental diseases, *Journal of Dental Research*, **95**, 245-247 (2015)
- [Lohbauer, 2010] U. Lohbauer, "Dental Glass Ionomer Cements as permanent filling materials? –Properties, limitations and future trends," *Materials*, **3**, 76-79 (2010)
- [Low, 2015] J. C. M. Low, T. J. Ober, G. H. McKinley, K. M. Stankovic, "Quantitative polarized light microscopy of human cochlear sections," *Biomed. Opt. Express*. **6**(2), 599-606 (2015)
- [Lussi, 2004] A. Lussi, R. Hibst, and R. Paulus, "DIAGNOdent: an optical method for caries detection," *J. Dent. Res.*, **83**(1), C80–C83 (2004)
- [Lyons, 2003] K. Lyons, Ministry of health, "Direct placement restorative materials for use in posterior teeth : the current options," *N. Z. Dent. J.*, **99**(1), 10-15 (2003)
- [Mackintosh, 1989] F. C. Mackintosh, S. John, "Diffusing-wave spectroscopy and multiple scattering of light in correlated random media," *Phys. Rev. B Condens. Matter*, **40**(4), 2383-2406 (1989)
- [Manhas, 2009] S. Manhas, M. K. Swami, H. S. Patel, A. Uppal, N. Ghosh, and P. K. Gupta, "Polarized diffuse reflectance measurements on cancerous and noncancerous tissues," *J. Biophoton*. **2**, 581–587 (2009)
- [Mavilio, 2010] A. Mavilio, M. Fernandez, M. Trivi, H. Rabal, and R. Arizaga, "Characterization of a paint drying process through granulometric analysis of speckle dynamic patterns," *Signal Processing* **90**(5), 1623 – 1630, (2010)
- [McCrone, 1987] W. C. McCrone, L. B. McCrone, J. C. Delly, "Polarized light microscopy," McCrone Research Institute, (1987)
- [Mehta, 2003] J. Mehta, S. Singhal, "Hyperviscosity syndrome in plasma cell dyscrasias", *Semin. Thromb. Hemost.*, **29**(5), 467-71 (2003)
- [Mie, 1908] Gustav Mie, "*Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*," *Annalen der Physik, Leipzig*, **25**, 1908, 377–445 ; traduction anglaise de 1976 par la NASA
- [Morgan, 2000] S. P. Morgan, M. E. Ridgway, "Polarization properties of light backscattered from two layer scattering medium," *Opt. Exp.* **7**(12), 395-402 (2000)



- [Nassif, 2012] R. Nassif, F. Pellen, C. Magné, B. Le Jeune, G. Le Brun, M. Abboud, "Scattering through fruits during ripening: laser speckle technique correlated to biochemical and fluorescence measurements," *Opt. Exp.*, **20**(21), 23887-23897 (2012)
- [Nassif, 1, 2013] R. Nassif, C. Abou Nader, F. Pellen, G. Le Brun, M. Abboud, B. Le Jeune, "Retrieving controlled motion parameters using two speckle pattern analysis techniques: spatiotemporal correlation and the temporal history speckle pattern", *Appl. Opt.*, **52**(31), 7564-7569 (2013)
- [Nassif, 2, 2013] R. Nassif, PhD thesis, Université de Bretagne Occidentale and Université Saint-Joseph de Beyrouth, "Méthodes optiques cohérentes pour l'étude de milieux biologiques : utilisation des phénomènes de speckle, application à l'étude de la maturité et de la conservation des fruits," (2013)
- [Nassif, 2014] R. Nassif, C. Abou Nader, C. Afif, F. Pellen, G. Le Brun, B. Le Jeune, M. Abboud, "Detection of Golden apples' climacteric peak by laser biospeckle measurements", *Appl. Opt.*, **53**(35), 8276-8282 (2014)
- [Nassif, 2015] R. Nassif, C. Abou Nader, J. Rahbany, F. Pellen, D. Salameh, R. Lteif, G. Le Brun, B. Le Jeune, M. Kallasy Awad, M. Abboud, "Characterization of *Bacillus thuringiensis* parasporal crystals using laser speckle technique: effect of crystal concentration and dimension," *Appl. Opt.* **54**(12), 3725-3731 (2015)
- [Nessin, 2011] O. M. Negin, O. N. Pakhomova, S. Xiao, A. G. Pakhomov, "Manipulation of cell volume and membrane pore comparison following single cell permeabilization with 60- and 600-ns electric pulses," *BBA Biomemb.*, **1808**(3), 792-801 (2011)
- [Ni, 2004] X. Ni, R.R. Alfano, "Time-resolved backscattering of circularly and linearly polarized light in a turbid medium," *Opt. Lett.* **29** (23), 2773-2775 (2004)
- [Ngo, 2006] H. C. Ngo, G. Mount, J. Mc Intyre, J. Tuisuva, R. J. Von Doussa, "Chemical exchange between glass-ionomer restorations and residual carious dentine in permanent molars: an in vivo study," *J. Dent.* **34**(8), 608-13 (2006)
- [Oulamara, 1989] A. Oulamara, G. Tribillon, and J. Duvernoy, "Biological activity measurement on botanical specimen surfaces using a temporal decorrelation effect of laser speckle," *Journal of Modern Optics* **36**(2), 165–179, (1989)

- [Ortega-Quijano, 2011] N. Ortega-Quijano, F. Fanjul-Vélez, J. de Cos-Pérez, J.L. Arce-Diego, "Analysis of the depolarizing properties of normal and adenomatous polyps in colon mucosa for the early diagnosis of precancerous lesions," *Opt. Commun.*, **284** (19), 4852-4856 (2011)
- [Papadogiannis, 2008] D. Y. Papadogiannis, R. S. Lakes, Y. Papadogiannis, G. Palaghias, M. Helvatjoglu-Antoniades, "The effect of temperature on the viscoelastic properties of nano-hybrid composites," *Dent. Mater.* **24**(2), 257-66 (2008)
- [Parhl, 1989] S. A. Pahl, M. Keijzer, S. Jacques, A. Welch, "A Monte Carlo model of light propagation in tissue," *Dosimetry of Laser Radiation in Medicine and Biology* **5**, 102-111, (1989)
- [Persson, 1992] U. Persson, "Real time measurement of surface roughness on ground surfaces using laser speckle contrast technique," *Opt. Laser Eng.* **17**, 61-67 (1992)
- [Piederriere, 2003] Y. Piederriere, "Etude du speckle de milieux diffusants liquides. Application à la détermination de paramètres biophysiques," Thèse de doctorat, Université de Bretagne Occidentale, Brest, France (2003)
- [Piederriere, 1, 2005] Y. Piederriere, F. Boulevvert, J. Cariou, B. Le Jeune, Y. Guern, G. Le Brun, "Polarization analysis of backscattered speckle size : influence of particle size and concentration," *Opt. Express*, **13** (13), 5030-5039 (2005)
- [Piederriere, 2, 2005] Y. Piederriere, F. Boulevvert, J. Cariou, Y. Guern, G. Le Brun, "Backscattered speckles size as a function of polarization: influence of particle-size and -concentration," *Opt. Exp.* **13**(13), 5030-5039 (2005)
- [Pierangelo, 2011] A. Pierangelo, A. Benali, M.-R. Antonelli, T. Novikova, P. Validire, B. Gayet, and A. De Martino, "Ex-vivo characterization of human colon cancer by Mueller polarimetric imaging," *Opt. Express* **19**, 1582–1593 (2011)
- [Pine, 1990] D.J. Pine, D.A. Weitz, J.X. Zhu, E. Herbolzheimer, "Diffusing-wave spectroscopy: dynamic light scattering in the multiple scattering limit," *J Phys France* **51**, 2101–2127 (1990)
- [Pecora, 1985] R. Pecora, "Dynamic light scattering : application to photon correlation spectroscopy," New York : Plenum Press, (1985)
- [Potanin, 1993] A. A. Potanin, "On the self-consistent calculations of the viscosity of colloidal dispersions," *Journal of Colloid and Interface Science*, **156**(1), 143-152 (1993)

- [Prasad, 2008] V. S. K. Prasad, K. Balasubramaniam, E. Kannan, K. L. Geisinger, "Viscosity measurements of melts at high temperatures using ultrasonic guided waves, Journal of materials processing technology," **207**, 315-320 (2008)
- [Pu, 2012] Y. Pu, W. Wang, M. Alrubaiee, S. Kumar Gayen, M. Xu, "Determination of Optical Coefficients and Fractal Dimensional Parameters of Cancerous and Normal Prostate Tissues," Applied Spectroscopy, **66** (7), 828-834 (2012)
- [Rabal, 2009] H. J. Rabal, R. A. Braga Jr., "Dynamic laser speckle and applications", CRC Press, Boca Raton, (2009)
- [Ramella-Roman, 1, 2005] S. P. J. Ramella-Roman and S. Jacques, "Three Monte Carlo programs of polarized light transport into scattering media: part i," Optics Express **13**(12), 4420-4438, (2005)
- [Ramella-Roman, 2, 2005] S. P. J. Ramella-Roman and S. Jacques, "Three Monte Carlo programs of polarized light transport into scattering media: part ii," Optics Express **13**(25), 10392-10405, (2005)
- [Rakhmatullina, 2011] E. Rakhmatullina, A. Bossen, C. Hoschele, X. Wang, B. Beyeler, C. Meier, A. Lussi, "Application of the specular and diffuse reflection analysis for in vitro diagnostics of dental erosion: correlation with enamel softening, roughness, and calcium release," J. Biomed. Opt., **16**(10), 107002-12 (2011)
- [Rekhter, 2000] M. D. Rekhter, G. W. Hicks, D. W. Brammer, H. Hallak, E. Kindt, J. Chen, W. S. Rosebury, M. K. Anderson, P. J. Kuipers, M. J. Ryan, "Hypercholesterolemia causes mechanical weakening of rabbit atheroma : local collagen loss as a prerequisite of plaque rupture," Circ Res **86**, 101–108 (2000)
- [Rekow, 2013] E. D. Rekow, S. C. Bayne, R. M. Carvalho, J. G. Steele, "What constitutes an ideal dental restorative material ? ," Adv. Dent. Res. **25**(1), 18-23 (2013)
- [Rowe, 1987] G. E. Rowe, A. Margaritis, "Bioprocess developments in the production of bioinsecticides by *Bacillus thuringiensis*," Crit. Rev. Biotechnol. **6**, 87-127 (1987)
- [Schatzel, 1983] K. Schatzel, "Noise in photon correlation and photon structure functions," J. Mod. Opt **30**, 155-166 (1983)

- [Scheffold, 2012] F. Scheffold, I.D. Block, "Rapid high resolution imaging of diffusive properties in turbid media," *Opt. Express*, **20** (1), 192-200 (2012)
- [Schlueter, 2011] N. Schlueter, A. Hara, R.P. Shellis, C. Ganss, "Methods for the measurement and characterization of erosion in enamel and dentine," *Car. Res.*, **45**(1), 13-23 (2011)
- [Shukla, 2009] P. Shukla, A. Pradhan, "Polarization-gated imaging in tissue phanoms: effect of size distribution," *Appl. Opt.* **48** (32), 6099-104 (2009)
- [Singh, 2009] M. L. Singh, A. S. Papas, "Long term clinical observation of dental caries in salivary hypofunction patients using supersaturated calcium phosphate remineralizing rinse," *J. Clin. Dent.* **20**(3), 87-92 (2009)
- [Sokolov, 2004] K. Sokolov, L. T. Nieman, A. Myakov, A. Gillenwater, "Polarized reflectance spectroscopy for pre-cancer detection," *Technol. Cancer Res. Treat.* **3**(1), 1-14 (2004)
- [Sorrentini, 2011] J. Sorrentini, M. Zerrad, G. Soriano, C. Amra, "Enpolarization of light by scattering media," *Opt. Express*, **19** (22), 21313-21320 (2011)
- [Stone, 2012] M. J. Stone, S. A. Bogen, "Evidence-based focused review of management of hyperviscosity syndrome", *Blood*, **119**(10), 2205-2208 (2012)
- [Stokes, 1852] G. G. Stokes, "On the composition and resolution of streams of polarized light from different sources," *Trans. Camb. Phil. Soc.*, **9**, 399-416 (1852)
- [Strutt, 1871] John Strutt, "On the scattering of light by small particles," *Philosophical Magazine*, **4**(41), 447-454 (1871)
- [Sun, 2013] P. Sun, Y. Ma, W. Liu, C. Xu, X. Sun, "Experimentally determined characteristics of the degree of polarization of backscattered light from polystyrene sphere suspensions," *J. Opt.* **15**, 890731 (2013)
- [Sun, 2015] S. Sun, B. R. Hayes-Gill, D. He, Y. Zhu, S. P. Morgan, "Multi-exposure laser speckle contrast imaging using a high frame rate CMOS sensor with a field programmable gate array," *Optics Letters*, **40**(20), 4587-4590 (2015)
- [Suresh, 2005] S. Suresh, J. Spatz, J. P. Mills, A. Micoulet, M. Dao, C. T. Lim, M. Beil, T. Seufferlein, "Connections between single-cell biomechanics and human disease states: gastrointestinal cancer and malaria," *Acta Biomater.* **1**, 15-30 (2005)

- [Suresh, 2007] S. Suresh, "Biomechanics and biophysics of cancer cells," *Acta Biomater* **3**, 413–438 (2007)
- [Swindells, 1957] J. F. Swindells, C. F. Synder, R. C. Hardy, and P. E. Golden, "Viscosities of sucrose solutions at various temperatures: tables of recalculated values," United States Department of Commerce, Sinclair weeks, Secretary, National Bureau of Standards, 3-7 (1957)
- [Tassieri, 2015] M. Tassieri, F. Del Giudice, E. J. Robertson, N. Jain, B. Fries, R. Wilson, A. Glidle, F. Greco, P. A. Netti, P. L. Maffettone, T. Bicanic, J. M. Cooper, "Microrheology with optical tweezers : measuring the relative viscosity of solutions 'at a glance'," *Scientific reports*, **5**, 8831-88316, (2015)
- [Tchivaleva, 2013] L. Tchivaleva, G. Dhadwal, H. Lui, S. Kalia, H. Zeng, D. I. Mclean, T. K. Lee, "Polarization speckle imaging as a potential technique for in vivo skin cancer detection," *J. Biomed. Opt.* **18**(6), 061211-0612117 (2011)
- [Torabinejad, 1995] M. Torabinejad, C. U. Hong, F. McDonald, T. R. Pitt Ford, "Physical and chemical properties of a new root-end filling material," *J. Endod.* **21**(7), 349-353 (1995)
- [Tripathi, 2014] M. M. Tripathi, Z. Hajjarian, E. M. Van Cott, S. K. Nadkarni, "Assessing blood coagulation status with laser speckle rheology," *Biomed. Opt. Express*, **5**(3), 817-831 (2014)
- [Tuchin, 2006] V. V. Tuchin, L. Wang, D. A. Zimnyakov, "Optical polarization in biomedical applications," Springer, New York, USA (2006)
- [Uchino, 2004] M. Uchin, W. Fujisaki, E. Kurihara, K. Matsuda, T. Koseki, "Characteristics of Laser Speckle Measurement of Tooth Roughness," *Key Engineering Materials* **261**, 1581-1586 (2004)
- [Van Der Laan, 2015] J. D. Van Der Laan, "Evolution and persistence of circular and linear polarization in scattering environments," PhD manuscript, University of Arizona, (2015)
- [Van de Hulst, 1957] H.C. Van de Hulst, "Light scattering by small particles," New York: Wiley, Hoboken (1957)
- [Van De Hulst, 1981] H. C. van de Hulst, "Light scattering by small particles," Chapter 19, Dover, New York, (1981)
- [Volpe, 2014] G. Volpe, G. Volpe, S. Gigan, "Brownian motion in a speckle light field : tunable anomalous diffusion and selective optical manipulation," *Sci. Rep.*, **4**, 3936-3942 (2014)

- [Walls, 1986] A. W. Walls, "Glass polyalkenoate (glass-ionomer) cements: a review," *J. Dent.* **14**(6), 231-46 (1986)
- [Wang, 1992] L. Wang and S. L. Jacques, "Monte Carlo modeling of light transport in multi-layered tissues in standard c," The University of Texas, MD Anderson Cancer Center, Houston, (1992)
- [Wang, 2007] L. Wang, M. Lu, Z. Xu, H. Feng, and Y. Chen, "The dependence of linearly polarized diffuse backscattering patterns on the particle size of turbid media," *J. Opt. A; Pure Appl. Opt.* **9** (15), 15-19 (2007)
- [Weitz, 1993] D.A. Weitz, D.J. Pine, "Diffuse-wave spectroscopy," W. Brown, Editor, *Dynamic Light Scattering*. New York : Oxford Univ. Press
- [Welch, 1995] A. J. Welch, M. J. C. Van Germert, W. M. Star, B. C. Wilson, "Overview of tissue optics," *Optical Thermal Response of Laser Irradiated Tissue*, A. J. Welch and M. J. C. Van Germert, Eds., Plenum, New York (1995)
- [Wilder-Smith, 2009] C.H. Wilder-Smith, P. Wilder-Smith, H. Kawakami Wong, J. Voronets, K. Osann, A. Lussi, "Quantification of dental erosions in patients with GERD using optical coherence tomography before and after double-blind, randomized treatment with esomeprazole or placebo," *Am. J. Gastroenterol.* **104**(11), 2788-2795 (2009)
- [Wilson, 1983] B. C. Wilson, G. Adam, "A Monte Carlo model for the absorption and flux distributions of light in tissue," *Medical Physics* **10**(6), 824-830, (1983)
- [Wiscombe, 1980] W. J. Wiscombe, "Improved Mie scattering algorithms," *Applied Optics* **19**(9), 1505-1509, (1980)
- [Witt, 1977] A. N. Witt, "Multiple scattering in reflection nebulae I: A Monte Carlo approach", *Astrophys. J. Suppl. Ser.*, **35**, 1-6 (1977)
- [Wood, 2010] M. F. G. Wood, N. Ghosh, M. A. Wallenburg, S.-H. Li, R. D. Weisel, B. C. Wilson, R.-K. Li, and I. A. Vitkin, "Polarization birefringence measurements for characterizing the myocardium, including healthy, infarcted, and stem cell treated regenerating cardiac tissues," *J. Biomed. Opt.* **15**, 047009 (2010)
- [Xu, 2005] M. Xu, R. R. Alfano, "Circular polarization memory of light," *Pys. Rev. E Stat. Nonlin. Soft Matter Phys.* **72**(6), 65601 (2000)

[Yiu, 2004] C. K. Yiu, F. R. Tay, N. M. King, D. H. Pashley, S. K. Sidhu, J. C. Neo, M. Toledano, S. L. Wong, "Interaction of glass-ionomer cements with moist dentin," *J. Dent. Res.* **83**(4), 283-289 (2004)

[Young, 2006] A. Young, P.S. Thrane, E. Saxegaard, G. Jonski, G. Rolla, "Effect of toothpaste on erosion-like lesions: an in vivo study," *Eur. J. Oral. Sci.*, **114**(3), 180-183 (2006)

[Zerrad, 2015] M. Zerrad, H. Tortel, G. Soriano, A. Ghabbach, C. Amra, "Spatial depolarization of light from the bulks : electromagnetic prediction," *Opt. Express*, **23**(7), 8246-8260 (2015)

[Zhou, 2015] F. Zhou, H. Wei, X. Ye, K. Hu, G. Wu, H. Yang, Y. He, S. Xie, Z. Guo, "Influence of nanoparticles accumulation on optical properties of human normal and cancerous liver tissue in vitro estimated by OCT," *Phys. Med. Biol.* **60**, 1385-1397 (2015)

# Influence of size, proportion, and absorption coefficient of spherical scatterers on the degree of light polarization and the grain size of speckle pattern

CHRISTELLE ABOU NADER,<sup>1,2,\*</sup> RANA NASSIF,<sup>2</sup> FABRICE PELLEN,<sup>1</sup> BERNARD LE JEUNE,<sup>1</sup>  
GUY LE BRUN,<sup>1,3</sup> AND MARIE ABBOUD<sup>2,4</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire de Spectrométrie et Optique Laser, IBSAM, Université de Bretagne Occidentale, Brest, France

<sup>2</sup>Physics department, UR TVA, Faculty of Science, Saint Joseph University, B.P. 11-514-Riad El Solh, Beirut 1107 2050, Lebanon

<sup>3</sup>e-mail: guy.lebrun@univ-brest.fr

<sup>4</sup>e-mail: marie.abboud@usj.edu.lb

\*Corresponding author: krystel.a.n@live.com

Received 13 August 2015; revised 3 November 2015; accepted 8 November 2015; posted 9 November 2015 (Doc. ID 247912); published 9 December 2015

In this paper, we present the evolution of speckle pattern polarimetric parameters in response to controlled changes in scatterer sizes, proportions, and the absorption coefficient in media. The experimental study was performed on mixtures of polystyrene microspheres with dye in order to ensure biological medium-like properties. The speckle grain sizes and degrees of polarization for linear and circular light were monitored. We observed helicity flipping in the degree of circular polarization for small scatterer proportion around 25%. Furthermore, linear depolarization decreased slightly for media containing more small particles. Good agreement was shown with numerical results computed using a Monte Carlo simulation of polarized light taking into account our experimental configuration. Speckle grain size also evolves with the increase of small scatterers as well as the media absorption coefficient. Such variations of properties are encountered during fruit maturation, in tissues in precancerous stages, and any transformation that causes a modification in particle proportions and absorption coefficient in biological media. The computed parameters proved to be sensitive to these changes. ©2015 Optical Society of America

**OCIS codes:** (030.6140) Speckle; (110.6150) Speckle imaging.

<http://dx.doi.org/10.1364/AO.54.010369>

## 1. INTRODUCTION

The study of the scattering of coherent light by turbid media has been a subject of interest and research for decades. The two main regimes of scattering that can be distinguished are Rayleigh and Mie. Rayleigh scattering occurs when particles are much smaller than the optical wavelength, whereas Mie scattering is light scattering by homogeneous isotropic spheres of any size and coincides with Rayleigh theory when the particle is much smaller than the wavelength [1]. When a diffusive medium is illuminated by coherent light, a speckle pattern is generated. Ever since Goodman and Goldfisher presented the first- and second-order statistical properties of speckle images using power spectral densities and autocorrelation functions [2,3], many applications have been tested in different fields, such as agriculture, medicine, and industry [4–6].

Media containing optically calibrated scatterers have been used to study the effect of changes in properties such as size, refractive index, anisotropy factor, and scatterer concentration on polarized light scattering behavior in order to detect and quantify these changes.

The anisotropy factor and diffusion coefficient (particle size and concentration) were shown to be dependent on spatial intensity variations, speckle size, and image spatial contrast [7–12]. Numerical simulations were developed as well. For example, Wang *et al.* performed Monte Carlo simulations coupled with experiments in order to demonstrate a linear relationship between diameters of monodisperse polystyrene microspheres and polarized backscattered light [13]. Algorithms tracking the state of light polarization in monodisperse and polydisperse media were also used [14–16].



The effect of light polarization on scatterer behavior has also been addressed. Ni *et al.* focused on the polarization memory of the backscattered light for imaging objects within a turbid medium and showed that for a medium containing large particles, the use of circularly polarized light demonstrates a better image contrast [17]. Sun *et al.* investigated the polarization-maintaining ability of backscattered light from Mie scatterers as well as Rayleigh ones and its dependence on scatterer concentration and incident light wavelength [18]. Polarimetric properties of the speckle field were studied at a scale below their transverse correlation width [19–21]. Nonpolarized light was also used to image the speckle pattern and the study was based on the fractional Brownian motion. Carvalho *et al.* introduced this method and compared it to the computation of the speckle grain size for the discrimination of monodisperse microsphere solutions and mixtures with different diameters [22]. Furthermore, signatures for the identification of disordered media under unpolarized illumination have also been reported [23] and light repolarization by scattering media has been investigated at the speckle scale. All of these studies correlating characteristics of diffusing media and speckle pattern parameters allow promising applications to be envisaged.

Biological media are generally composed of a mixture of different sized scatterers, which can undergo changes in their proportions, sizes, absorption coefficient, and mechanical properties due to the evolving character of such media. Measuring speckle pattern parameters coupled with a polarimetric approach can potentially reveal the constitution of such media.

During fruit ripening [4,24], for example, large starch chains initially present in the unripe fruit are hydrolyzed into smaller molecules, causing a change in both sizes and proportions of scatterers. The fruit's ability to absorb light at a certain wavelength also changes during the process of maturation, due to the change in the fruit color as a result of chlorophyll loss.

In the field of medicine, a change in the size of scatterers and absorption coefficient in organs or tissues can be a sign of a malfunction or alteration, as shown by variations in the absorption and scattering coefficients differentiating cancerous and noncancerous tissues [25–29]. Change in scatterer proportions can also be a parameter of interest in these studies. In the case of epithelial cells, healthy epithelial-cell nuclei can be modeled as transparent spheres with a diameter that varies between 0.4 and 0.8  $\mu\text{m}$ , while in early cancerous stages, cell architecture is altered: the nuclei become larger and stain darkly with contrast dye as a result of changes in chromatin content [30]. The transformations that take place in precancerous stages can be observed as an increase in the absorption coefficient and changes in the proportions of scatterers. These physical changes are similar to those seen in fruits undergoing the ripening process.

In this paper, we demonstrate the ability of degrees of circular and linear polarization, as well as speckle grain size, to track changes related to particle sizes and proportions and the absorption coefficient happening in media. We were able to track particle proportion changes by means of the speckle grain size, and observed a change in the diffusion regime at a particular proportion of small to large particles by computing the degree of circular polarization. In Section 2, we present the preparation of optical phantoms along with the speckle experimental

setup and numerical study. Section 3 presents our experimental and numerical results and their discussion. The conclusions of our work are presented in the final section.

## 2. EXPERIMENTAL STUDY

### A. Optical Phantoms

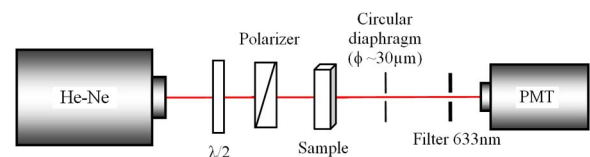
The scattering samples used in our study were aqueous suspensions of polystyrene microspheres (Polysciences Inc. USA). From the initial microsphere solution at 2.5%, we first prepared monodisperse solutions with large (average diameter  $\Phi = 3 \mu\text{m}$ ) and small ( $\Phi = 0.22 \mu\text{m}$ ) scatterers, with anisotropy factors  $g$  of 0.8129 and 0.3857, respectively. The solutions were diluted with de-ionized water in order to obtain a diffusion coefficient  $\mu_s$  of the order of  $30 \text{ cm}^{-1}$ . The exact particle concentration that would provide this diffusion coefficient was computed based on Mie theory [31]. Absorption was introduced into the samples by adding different volumes of diluted black ink resulting in 0, 5, 10, and  $15 \text{ cm}^{-1}$  absorption coefficients  $\mu_a$ . The experimental values of scattering and absorption coefficients were measured using the experimental setup illustrated in Fig. 1. A He–Ne laser delivered a 632.8 nm wavelength beam for which the intensity was controlled by a half-wave plate and linearly polarized by a polarizer. Diaphragms were placed in front of the photomultiplier counter to ensure the exclusive collection of ballistic photons.

The samples were put into capillary tubes of different thicknesses. The study is based on the Beer–Lambert law for collimated transmission given by

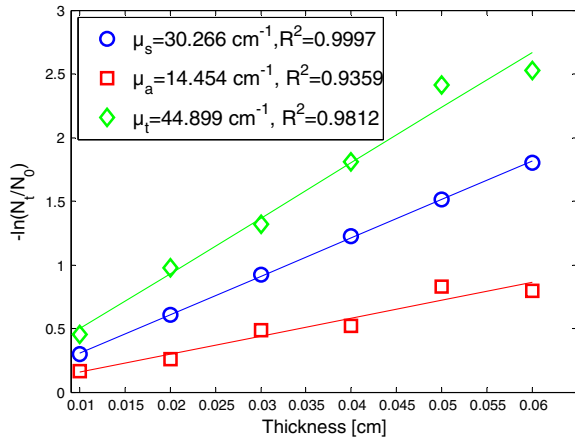
$$N_t = N_0 \exp(-\mu_t L), \quad (1)$$

with  $\mu_t = \mu_a + \mu_s$ , where  $\mu_a$  is the absorption coefficient and  $\mu_s$  the diffusion coefficient.

The number of transmitted photons  $N_t$  is obtained after subtracting the detector noise. The reference value  $N_0$  is measured from capillaries of different thicknesses filled with de-ionized water. Selected results are presented in Fig. 2. The microspheres suspended in de-ionized water show a negligible absorption coefficient considering the optical wavelength, which allows us to consider that the diffusion coefficient as equal to the computed attenuation coefficient  $\mu_t$ . Optical measurements were carried out on mixtures of different volume fractions taken from stock solutions and put in a quartz cell with adequate optical properties. The attenuation coefficients were measured after adding Chinese black dye to the solutions, with a  $\mu_s$  of  $30 \text{ cm}^{-1}$  and a  $\mu_a$  ranging from 0 to  $15 \text{ cm}^{-1}$ . Attention was paid to the absorption and diffusion coefficients in order to identify any potential contribution of a variation in these parameters.



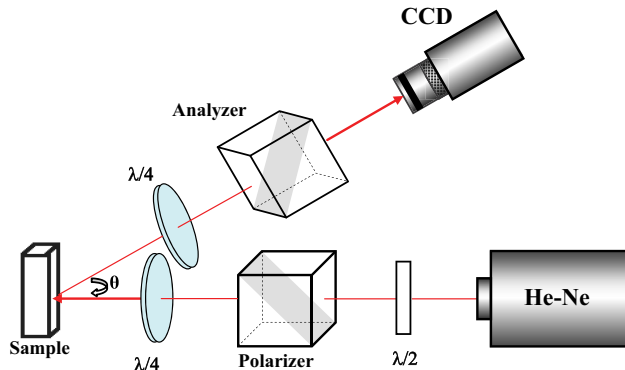
**Fig. 1.** Schematic view of the experimental setup used to measure attenuation coefficients of samples. He–Ne is a Helium Neon laser;  $\lambda/2$  is a half-wave plate; PMT is a photomultiplier tube.



**Fig. 2.** Fraction of transmitted light through solutions of known absorption and diffusion parameters as a function of sample optical thickness. Attenuation coefficients are obtained using linear fits (slopes and correlation coefficients are indicated in the legend). Empty circles, squares, and diamonds correspond to aqueous suspensions of 0.22 μm diameter microspheres, black dye, and 0.22 μm microspheres with black dye, respectively.

**B. Speckle Experiment Setup**

Figure 3 illustrates an overview of the setup used to measure the speckle pattern generated by the samples. A 15 mW He-Ne laser with a wavelength of 632.8 nm, an optical coherence length of 20 cm, and a beam diameter of 2 mm was used as the light source. The backscattered light was collected by a CCD camera (MTV 1082 CB, Mintron, pixel size of 8 × 8 μm) providing an image of 550 × 576 pixels with an exposure time of 0.1 ms. A relatively short exposure time was chosen for the collected images due to the solution characteristic time, which was longer than 0.1 ms [22]. Two different light polarizations were considered: linear and circular. Figure 3 shows how a half-wave plate at the output of the laser regulates light intensity, one polarizer controls the incident light polarization and another in front of the camera serves as an analyzer for the backscattered light. Two quarter-wave plates are coupled with the two polarizers in order to generate and analyze a circular polarization when required. The angle θ between the laser-sample axis and the sample-camera axis is equal to 21°. This angle was chosen in order to avoid specular reflection.



**Fig. 3.** Schematic view of the speckle experiment setup. λ/4 and λ/2 are quarter- and half-wave plates, respectively.

The degree of light polarization in the case of both polarizations is given by

$$DOP = \frac{I_{//} - I_{\perp}}{I_{//} + I_{\perp}} \tag{2}$$

$I_{//}$  and  $I_{\perp}$  are the mean intensities of the images acquired when the linear analyzer is oriented to select the parallel and perpendicular scattered light, respectively.  $DOP_L$  and  $DOP_C$  are the degrees of polarization described in Eq. (2), when incident linear or circular polarization is respectively used.

The horizontal size of the speckle grains  $dx$  was also calculated. The estimation of the average speckle grain size  $dx$  was directly obtained from the estimation of the full width at half-maximum of the autocorrelation function as implied by the Wiener-Khintchine theorem. The autocorrelation of the intensity distribution in the speckle field was computed by calculating the inverse Fourier transform of the normalized power spectral density of the illuminated diffusing zone that is the square of the module of the Fourier transform of the intensity [2]. Calculated from the intensity distribution of the speckle image, the autocorrelation function was given by

$$c(x, y) = \frac{FT^{-1}[|FT[I(x, y)]|^2] - \langle I(x, y) \rangle^2}{\langle I(x, y) \rangle^2 - \langle I(x, y) \rangle^2} \tag{3}$$

We also computed the difference between speckle grain sizes in co- and crossed-polarized configurations for both  $dx_L$  and  $dx_C$  as follows:

$$dx_L = dx_{L//} - dx_{L\perp} \tag{4}$$

and

$$dx_C = dx_{C//} - dx_{C\perp} \tag{5}$$

**C. Monte Carlo Numerical Study**

For numerical calculations, we used a Monte Carlo program that simulates the backscattering of polarized light by turbid media [16]. The algorithm keeps track of light polarization by means of the photon Stokes vector. Experimental parameters such as the distance between the detector and the sample, the detection angle, the sample container dimensions, the particle proportions, etc., are taken into account. We varied the percentage in volume of small particles present in the solutions, keeping a constant diffusion coefficient, media refractive index ( $n = 1.33$ ), and polystyrene sphere refractive index ( $n = 1.59$ ). One million linearly or circularly polarized photons with associated Stokes vectors numerically illuminated the sample. The program follows the Stokes Mueller formalism where the light polarization state is represented by a 4 × 1 vector (Stokes vector) containing four measurable intensities [14] defined as

$$S = [I \quad Q \quad U \quad V]^T, \tag{6}$$

with  $I = I_h + I_v$ ,  $Q = I_h - I_v$ ,  $U = I_p - I_m$ , and  $V = I_r - I_l$ , where  $I_h$ ,  $I_v$ ,  $I_p$ ,  $I_m$ ,  $I_r$ , and  $I_l$  are measured with a horizontal linear, a vertical linear, a 45 deg linear, a -45 deg linear, and a right and left circular polarizers, respectively. T is the transposition of the vector S. The program gives the Stokes vectors of the photons that reach our detector after being diffused by particles in the medium, allowing us to compute the degree of

linear and circular polarization of the backscattered light defined by

$$\begin{cases} \text{DOP}_L = \frac{(Q^2+U^2)^{1/2}}{I} \\ \text{DOP}_C = \frac{V}{I} \end{cases} \quad (7)$$

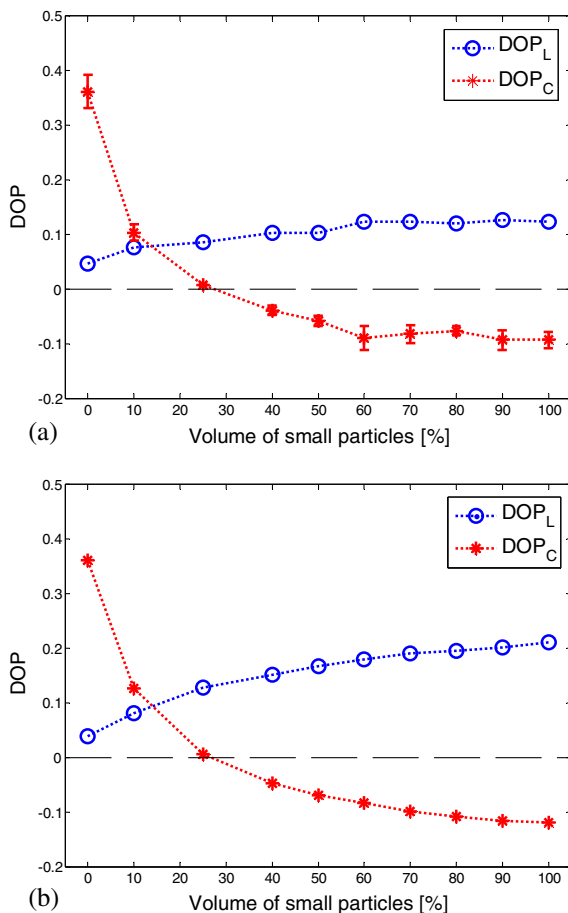
Considering our experimental parameters, the  $U$  term is negligible when compared to the  $Q$  term. Therefore, in the experimental calculation of  $\text{DOP}_L$  [Eq. (2)],  $U$  can be neglected.

### 3. RESULTS AND DISCUSSION

The effects of the proportion of small particles in the solutions and of the absorption coefficient on degrees of linear and circular polarization and speckle grain size were considered.

#### A. Effect of the Proportion of Small Particles

Figure 4(a) illustrates the experimental variation of circular and linear polarization degrees with the increasing proportion of small particles in the sample. Without small scatterers (case of a medium containing only Mie scatterers), forward diffusion is dominant ( $g = 0.8129$ ), and backscattered light with circular polarization is less depolarized than in the case of linear polarization. The opposite happens in the case of a medium

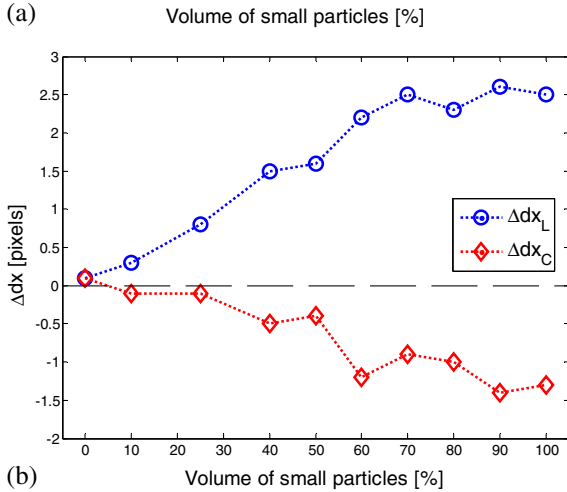
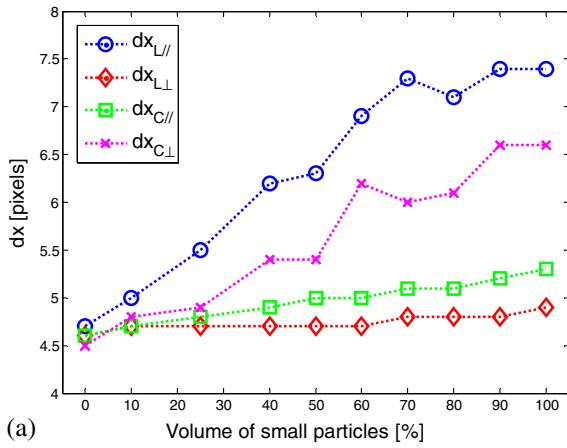


**Fig. 4.** Variation of the degrees of polarization as a function of Rayleigh scatterer proportion in media containing both Rayleigh and Mie scatterers. (a) Corresponds to experimental results; (b) corresponds to numerical Monte Carlo results computed with experimental parameters taken into account.

that contains only Rayleigh scatterers (100% small scatterers) as the diffusion is more isotropic ( $g = 0.3857$ ).  $\text{DOP}_L$  shows a slight growth with the increasing percentage of small particles in the medium while  $\text{DOP}_C$  decreases and shows helicity flipping ( $\text{DOP}_C < 0$ ) when the proportion of Rayleigh scatterers exceeds 25% in the medium. Moreover,  $\text{DOP}_C$  takes lower values than  $\text{DOP}_L$  as soon as the proportion of small particles exceeds 10%. This behavior indicates a transition from a Mie to a Rayleigh diffusion regime in the sample, which is compatible with previous studies [8] where it was shown that the polarimetric behavior of light was dominated by small particles. We were able to visualize this transition by the means of  $\text{DOP}_C$  at these values of particular percentages of 10% and 25% of Rayleigh particles.

Figure 4(b) shows the evolution of the circular and linear polarization degrees computed using the Monte Carlo algorithm when the particle proportions change in the medium. Particle size, refractive indices of polystyrene spheres and water, particle concentration, and detection angle and distance were chosen to be identical to the experimental values. First, we can note the excellent overall agreement between simulations and experiments. Similar trends, with respect to those of our experimental results, are found as the degree of linear polarization increases and the degree of circular polarization decreases, and reaches negative values as soon as the proportion of small particles in the medium equals one-quarter. Despite discrepancies between simulated and experimental results, the Monte Carlo simulation was able to accurately determine  $\text{DOP}_L$  and  $\text{DOP}_C$  values for large scatterers with a 0.2% discrepancy, the exact proportion of Rayleigh scatterers when the helicity flipping occurs at 25% of small particles, the  $\text{DOP}_C$  trend with a 10% discrepancy. The difference between simulated and measured  $\text{DOP}_L$  increases with the proportion of small scatterers. One reason for this discrepancy could be similar to the one mentioned in [14]. In fact, it was reported that small scatterers generate an additional polarization in the case of linearly polarized light because of elements in the Mueller matrix responsible for this transformation, which is not the case for a circular polarization or large scatterers. The overestimation of the linearly polarized diffused photons could possibly explain the gap between experimental and numerical  $\text{DOP}_L$  values for large proportions of Rayleigh scatterers.

Scatterer size also contributes to the change of the speckle grain size, as shown in Fig. 5. A clear increase of speckle grain size, in the four experimental configurations, is obtained when the proportion of small scatterers in the media increases [Fig. 5(a)]. This trend is compatible with previous work [22]. Furthermore, when the scatterers are smaller than the optical wavelength, a crossed circularly polarized light generates a larger grain size than a parallel one  $dx_{c\perp} > dx_{c\parallel}$  [8]. This signature begins to appear in media with small particle proportions exceeding 10%, as shown in Fig. 5(a). This observation is consistent with the previously reported results of  $\text{DOP}_C$  and  $\text{DOP}_L$ . In fact, as soon as  $dx_{c\perp}$  reaches values larger than  $dx_{c\parallel}$ , a transition from a Mie to a Rayleigh regime has occurred. The differences between speckle grain sizes computed from parallel and crossed polarizations  $dx_L$  for a linear polarization and  $|dx_C|$  for a circular one increase as this percentage goes up [Fig. 5(b)]. In the case of linearly polarized light,  $dx_L$  varies

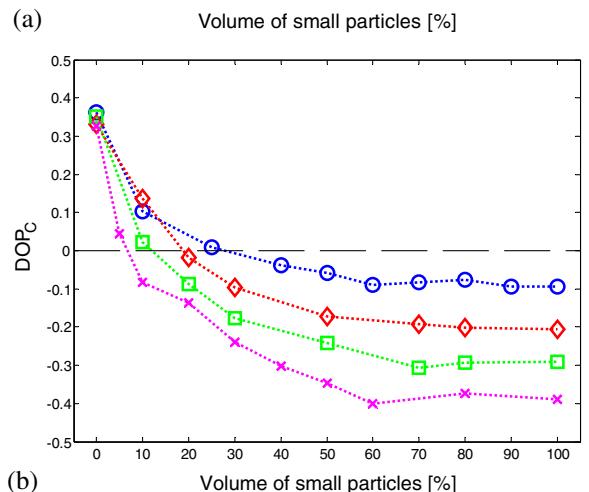
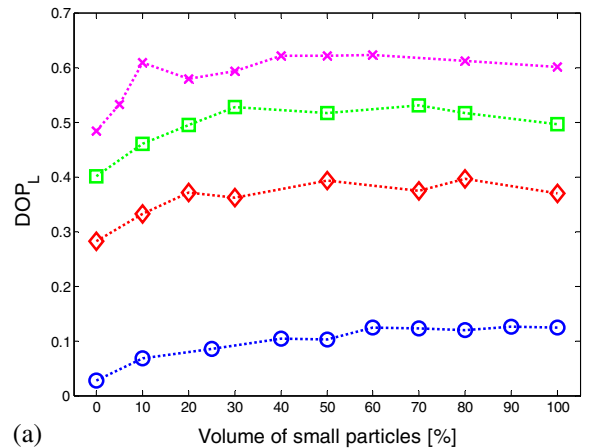


**Fig. 5.** (a) Variation of the horizontal speckle grain sizes  $dx$  with different polarization states as a function of Rayleigh scatterer proportion in media containing both Rayleigh and Mie scatterers. Error bars are of the order of 0.25 pixels. Below (b): Variation in the difference between parallel and crossed speckle grain size (for linear and circular polarizations)  $\Delta dx_L$  and  $\Delta dx_C$  as a function of Rayleigh scatterer proportion in media containing both Rayleigh and Mie scatterers.

from 0.3 to 2.5 pixels, while in the case of circularly polarized light  $dx_C$  increases from 0.1 to 1.3 pixels, demonstrating that the use of different polarizations for the speckle size computation does not only distinguish between small and large particles, but can provide a precise proportion determination. This effect was observed in a previous study, where  $dx_L$  increased with decreasing particle size in the media considered [6].

**B. Effect of the Absorption Coefficient**

Speckle parameters were also considered for samples with different absorption coefficients. Figures 6(a) and 6(b) show the evolution of the degree of light polarization as a function of scatterer proportions and absorption coefficients. As  $\mu_a$  increases, the trends followed by  $DOP_C$  and  $DOP_L$  show an increase in the case of linear polarization and a decrease, with a transition to negative values, in the case of circular polarization. With light depolarized to different extents,  $DOP_L$  [Fig. 6(a)] shows a significant decrease in the depolarization phenomenon as  $\mu_a$  increases. This attenuation can be attributed to the absorption of the photons that are highly depolarized by the medium. Effectively, this means that it is the photons that

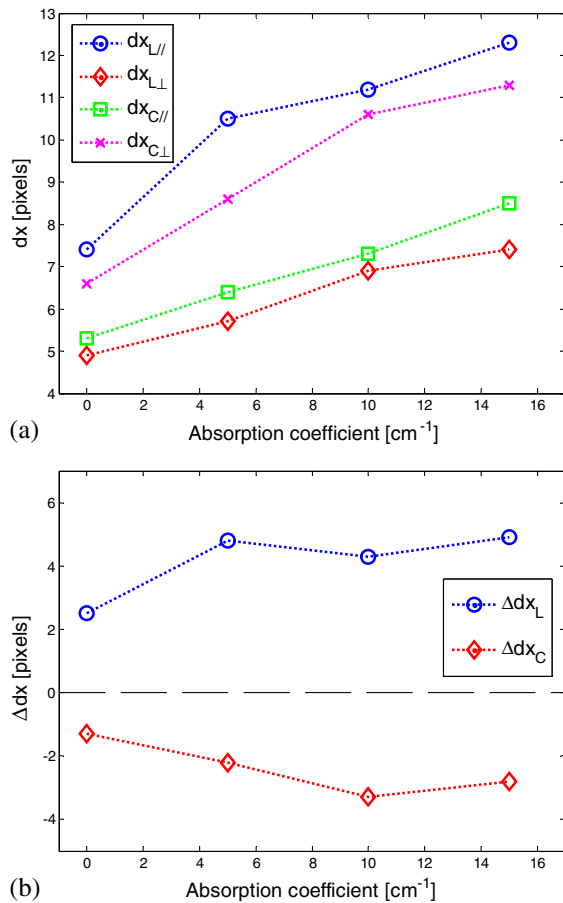


**Fig. 6.** Experimental variations of the degrees of polarization as a function of Rayleigh scatterer proportion in media containing both Rayleigh and Mie scatterers. Empty circles, diamonds, squares, and crosses correspond to absorption coefficient of 0, 5, 10, and 15  $\text{cm}^{-1}$ , respectively. The upper figure (a) corresponds to linear polarization and the lower one (b) to circular polarization. Error bars are of the order of 0.01.

are less deeply penetrating, and thus “shallower,” that are detected.

For media containing large particles (at 0%), for a fixed  $\mu_s$  and different  $\mu_a$ ,  $DOP_C$  is almost the same [Fig. 6(b)] with values located around  $0.35 \pm 0.02$ . Indeed, in the case of large particles, forward diffusion is favored, which reduces the influence of absorption on backscattered light. On the contrary, for small particle suspensions ( $g = 0.3857$ ), the effect of absorption is characterized by a preservation of polarization; therefore, an increase in the  $DOP_C$  absolute value is obtained. Furthermore, the transition of  $DOP_C$  to negative values occurs for smaller proportions of small particles, with the increase of  $\mu_a$ . This leads us to conclude that the increase in absorption reinforces the influence of small scatterers in the medium polarimetric response.

We consider small particle solutions with  $\mu_s = 30 \text{ cm}^{-1}$  and a variable  $\mu_a$ . In fact, the increase in absorption reduces the diameter of the diffusion spot in which photons have a shorter mean free path [32]. This results in a smaller diffusion spot diameter and, therefore, a larger speckle grain size [Fig. 7(a)]



**Fig. 7.** Above (a): Experimental variations of the horizontal speckle grain sizes  $dx$  with different polarization states as a function of the absorption coefficient in media containing only small scatterers. Error bars are of the order of 0.25 pixels. Below (b): Variation of the difference between parallel and crossed speckle grain size (for linear and circular polarizations)  $\Delta dx_L$  and  $\Delta dx_C$  as a function of the absorption coefficient in media containing only small scatterers (0.22  $\mu\text{m}$ ). Error bars are of the order of 0.5 pixels.

that is inversely proportional to the diameter of the diffusing area [33], which leads us to collect more photons with helicity flipping in the case of circularly polarized light and to maintain photons in the case of linearly polarized light. Figure 7(b) shows negative  $dx_C$  and positive  $dx_L$  values indicating that  $dx_{C\perp} > dx_{C//}$  and  $dx_{L//} > dx_{L\perp}$ . The polarized speckle grain size discriminates absorption effects even if the absorption coefficient is unknown.

#### 4. CONCLUSION

In this paper, we have reported an experimental study where the measurement of diffused backscattered light was demonstrated as a reliable technique to detect variations in scatterer proportions, size, and absorption coefficients in diffusing media. The degree of circular and linear polarization and the speckle grain size have demonstrated significant reactions to such changes in media properties, as confirmed by both experimental and numerical results. In media containing small and large scatterers in different proportions, one can rely on the degree of

circular polarization in order to track the evolution of particles proportions. And if the speckle grain size is also considered, one can follow any change in the scatterers proportion or the absorption coefficient. In order to be able to apply these results to complex media, and fully solve this inverse problem, further investigations are needed. Promising applications exist for this technology in agricultural, medical, and industrial fields, e.g., in biological media: to detect speckle parameter changes accompanying fruits ripening, to differentiate between cancerous and noncancerous cells, or to characterize proteic crystal geometry and production by different *Bacillus thuringiensis* strains. The sensitivity of this method, its low cost, its noninvasive characteristics, and ability to compute multiple parameters from polarized speckle images make this technique a competitive tool for a variety of applications.

#### REFERENCES

1. R. M. Drake and J. E. Gordon, "Mie Scattering," *Am. J. Phys.* **53**, 955–962 (1985).
2. J. W. Goodman, "Statistical properties of laser speckle patterns," in *Laser Speckle and Related Phenomena*, J. C. Dainty, ed. (Springer, 1984).
3. L. I. Goldfisher, "Autocorrelation function and power spectral density of last-produced speckle pattern," *J. Opt. Soc. Am.* **55**, 247–253 (1964).
4. R. Nassif, F. Pellen, C. Magné, B. Le Jeune, G. Le Brun, and M. Abboud, "Scattering through fruits during ripening: Laser speckle technique correlated to biochemical and fluorescence measurements," *Opt. Express* **20**, 23887–23897 (2012).
5. B. Kunnen, C. Macdonald, A. Doronin, S. Jacques, M. Eccles, and I. Meglinski, "Application of circularly polarized light for non-invasive diagnosis of cancerous tissues and turbid tissue-like scattering media," *J. Biophotonics* **1**, 317–323 (2014).
6. R. Nassif, Ch. Abou Nader, J. Rahbani, F. Pellen, D. Salameh, R. Lteif, G. Le Brun, B. Le Jeune, M. Kallassy, and M. Abboud, "Characterization of *Bacillus thuringiensis* parasporal crystals using laser speckle technique: effect of crystal concentration and dimension," *Appl. Opt.* **54**, 3725–3731 (2015).
7. A. H. Hielscher, J. R. Mourant, and I. J. Bigio, "Influence of particle size and concentration on the diffuse backscattering of polarized light from tissue phantoms and biological cell suspensions," *Appl. Opt.* **36**, 125–135 (1997).
8. Y. Piederrriere, F. Boulvert, J. Cariou, B. Le Jeune, Y. Guern, and G. Le Brun, "Polarization analysis of backscattered speckle size: influence of particle size and concentration," *Opt. Express* **13**, 5030–5039 (2005).
9. J. L. Falconet, R. Sablong, E. Perrin, F. Jaillon, and H. Saint-Jalmes, "Analysis of simulated and experimental backscattered images of turbid media in linearly polarized light: estimation of the anisotropy factor," *Appl. Opt.* **47**, 5811–5820 (2008).
10. P. Shukla and A. Pradhan, "Polarization-gated imaging in tissue phantoms: effect of size distribution," *Appl. Opt.* **48**, 6099–6104 (2009).
11. F. Scheffold and I. D. Block, "Rapid high resolution imaging of diffusive properties in turbid media," *Opt. Express* **20**, 192–200 (2012).
12. Z. Hajjarian and S. K. Nadkarni, "Estimation of particle size variations for laser speckle rheology of materials," *Opt. Lett.* **40**, 764–767 (2015).
13. L. Wang, M. Lu, Z. Xu, H. Feng, and Y. Chen, "The dependence of linearly polarized diffuse backscattering patterns on the particle size of turbid media," *J. Opt. A* **9**, 15–19 (2007).
14. S. Bartel and A. H. Hielscher, "Monte Carlo simulations of the diffuse backscattering Mueller matrix for highly scattering media," *Appl. Opt.* **39**, 1580–1588 (2000).
15. J. C. Ramella-Roman, S. A. Prael, and S. L. Jacques, "Three Monte Carlo programs of polarized light transport into scattering media: part I," *Opt. Express* **13**, 4420–4438 (2005).
16. R. Nassif, "Méthodes optiques cohérentes pour l'étude de milieux biologiques: utilisation des phénomènes de speckle, application à l'étude de la maturité et de la conservation des fruits," Ph.D. thesis

- (Université de Bretagne Occidentale and Université Saint-Joseph de Beyrouth, 2013).
17. X. Ni and R. R. Alfano, "Time-resolved backscattering of circularly and linearly polarized light in a turbid medium," *Opt. Lett.* **29**, 2773–2775 (2004).
  18. P. Sun, Y. Ma, W. Liu, C. Xu, and X. Sun, "Experimentally determined characteristics of the degree of polarization of backscattered light from polystyrene sphere suspensions," *J. Opt.* **15**, 55708–55715 (2013).
  19. J. Dupont, X. Orlik, A. Ghabbach, M. Zerrad, G. Soriano, and C. Amra, "Polarization analysis of speckle field below its transverse correlation width: application to surface and bulk scattering," *Opt. Express* **22**, 24133–24141 (2014).
  20. M. Zerrad, H. Tortel, G. Soriano, A. Ghabbach, and C. Amra, "Spatial depolarization of light from the bulks: electromagnetic prediction," *Opt. Express* **23**, 8246–8260 (2015).
  21. A. Ghabbach, M. Zerrad, G. Soriano, S. Liukaityte, and C. Amra, "Depolarization and enpolarization DOP histograms measured for surface and bulk speckle patterns," *Opt. Express* **22**, 21427–21440 (2014).
  22. O. Carvalho, B. Clairac, M. Benderitter, and L. Roy, "Statistical speckle study to characterize scattering media: use of two complementary approaches," *Opt. Express* **15**, 13817–13831 (2007).
  23. J. Sorrentini, M. Zerrad, G. Soriano, and C. Amra, "Enpolarization of light by scattering media," *Opt. Express* **19**, 21313–21320 (2011).
  24. R. Nassif, Ch. Abou Nader, C. Afif, F. Pellen, G. Le Brun, B. Le Jeune, and M. Abboud, "Detection of Golden apples climacteric peak by laser biospeckle measurements," *Appl. Opt.* **53**, 8276–8282 (2014).
  25. Y. Pu, W. Wang, M. Alrubaiee, S. Kumar Gayen, and M. Xu, "Determination of optical coefficients and fractal dimensional parameters of cancerous and normal prostate tissues," *Appl. Spectrosc.* **66**, 828–834 (2012).
  26. Y. Pu, W. Wang, M. Alrubaiee, S. K. Gayen, and M. Xu, "Systematic studies of fractal dimension parameters, absorption and scattering coefficients for cancerous and normal prostate tissues," *Proc. SPIE* **8207**, 82071H (2012).
  27. F. Zhou, H. Wei, X. Ye, K. Hu, G. Wu, H. Yang, Y. He, S. Xie, and Z. Guo, "Influence of nanoparticles accumulation on optical properties of human normal and cancerous liver tissue in vitro estimated by OCT," *Phys. Med. Biol.* **60**, 1385–1397 (2015).
  28. N. Ortega-Quijano, F. Fanjul-Vélez, J. de Cos-Pérez, and J. L. Arce-Diego, "Analysis of the depolarizing properties of normal and adenomatous polyps in colon mucosa for the early diagnosis of pre-cancerous lesions," *Opt. Commun.* **284**, 4852–4856 (2011).
  29. R. Ceolato, M. Golzio, C. Riou, X. Orlik, and N. Riviere, "Spectral degree of linear polarization of light from healthy skin and melanoma," *Opt. Express* **23**, 13605–13612 (2015).
  30. V. Backman, M. B. Wallace, L. T. Perelman, J. T. Arendt, R. Gurjar, M. G. Muller, Q. Zhang, G. Zonios, E. Kline, J. A. McGilligan, S. Shapshay, T. Valdez, K. Badizadegan, J. M. Crawford, M. Fitzmaurice, S. Kabani, H. S. Levin, M. Seiler, R. R. Dasari, I. Itzkan, J. Van Dam, and M. S. Feld, "Detection of preinvasive cancer cells," *Nature* **35**, 35–36 (2000).
  31. H. C. Van de Hulst, *Rayleigh-Gans Scattering* (Dover, 1981).
  32. A. N. Witt, "Multiple scattering in reflection nebulae I: A Monte Carlo approach," *Astrophys. J. Suppl. Ser.* **35**, 1–6 (1977).
  33. W. S. Bickel and W. M. Bailey, "Stokes vectors, Mueller matrices, and polarization of scattered light," *Am. J. Phys.* **53**, 468–478 (1985).

# Journal of Biomedical Optics

BiomedicalOptics.SPIEDigitalLibrary.org

## **Early diagnosis of teeth erosion using polarized laser speckle imaging**

Christelle Abou Nader  
Fabrice Pellen  
Hadi Loutfi  
Rassoul Mansour  
Bernard Le Jeune  
Guy Le Brun  
Marie Abboud

# Early diagnosis of teeth erosion using polarized laser speckle imaging

Christelle Abou Nader,<sup>a,b,\*</sup> Fabrice Pellen,<sup>b</sup> Hadi Loutfi,<sup>a</sup> Rassoul Mansour,<sup>a</sup> Bernard Le Jeune,<sup>b</sup> Guy Le Brun,<sup>b</sup> and Marie Abboud<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Saint Joseph University, Physics Department, Faculty of Science, UR TVA, B.P. 11-514-Riad El Solh, Beirut 1107 2050, Lebanon

<sup>b</sup>Université de Bretagne Occidentale, UEB, EA 938 Laboratoire de Spectrométrie et Optique Laser, IBSAM, 6 avenue le Gorgeu, C.S. 93837, 29238 Brest Cedex 3, France

**Abstract.** Dental erosion starts with a chemical attack on dental tissue causing tooth demineralization, altering the tooth structure and making it more sensitive to mechanical erosion. Medical diagnosis of dental erosion is commonly achieved through a visual inspection by the dentist during dental checkups and is therefore highly dependent on the operator's experience. The detection of this disease at preliminary stages is important since, once the damage is done, cares become more complicated. We investigate the difference in light-scattering properties between healthy and eroded teeth. A change in light-scattering properties is observed and a transition from volume to surface backscattering is detected by means of polarized laser speckle imaging as teeth undergo acid etching, suggesting an increase in enamel surface roughness. © 2015 Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) [DOI: 10.1117/1.JBO.21.7.071103]

Keywords: speckle; scattering; polarized light; teeth; erosion.

Paper 150653SSPR received Oct. 1, 2015; accepted for publication Nov. 10, 2015; published online Dec. 22, 2015.

## 1 Introduction

Tooth enamel is a highly mineralized tissue. It is constituted of inorganic material (96%), an organic matrix (enamel proteins, enamelin, and lipids, 3%), and water (1%); this high mineral content gives it strength and hardness. The enamel is a very compact structure demonstrating a low permeability. Tooth erosion and tooth decay are the most commonly encountered problems when it comes to oral health. Due to acid exposure (pH < 5.5),<sup>1</sup> the enamel is subject to demineralization (loss of minerals) causing dental erosion. This process is defined as the loss of tooth substance by acid exposure not involving bacteria.<sup>2</sup> Acidic drink or food intake causes dental erosion that starts with enamel surface softening and progressive tissue loss, making the enamel more susceptible to abrasive wear.<sup>3</sup>

Tooth decay occurs due to bacterial acid, differently from the erosion process. In fact, certain bacteria adhere to the tooth surface in bacterial communities known as dental plaque, producing acid that causes the demineralization and cavities. The first clinical sign indicating a tooth cavity is the white spot lesion that is characterized by a chalky white appearance. The manifestation of such spots on the tooth surface is a sign of their demineralization. During the demineralization process, calcium and phosphate are dissolved from the enamel and dentin and are lost in the mouth via saliva or plaque. The white spot lesion is thus characterized by dissolution of hard tissues of the subsurface layer.

However, it is possible to reverse the demineralization process by acting quickly on these lesions, stimulating and guiding a remineralization process. In fact, even though teeth can naturally remineralize themselves if the ions of phosphorus and calcium remaining in saliva are redeposited, this process cannot persist

when there is a change in biological factors. Therefore, various technologies have been developed to prevent the progress of demineralization by delivering calcium, phosphate, and fluoride.<sup>4</sup> Patients are strongly advised to use toothpastes containing amorphous calcium phosphate<sup>5</sup> or calcium sodium phosphosilicate,<sup>6</sup> and mouth rinses supersaturated in soluble calcium and phosphate ions.<sup>7</sup> Thus, the sooner tooth erosion and decay are detected, the simpler it is to fix the damage before the onset of serious lesions requiring destructive care for teeth.

Multiple methods can be used to detect and study the erosion of enamel. Some rely on chemical analysis of dissolved minerals such as calcium analysis using an ion-selective electrode.<sup>4</sup> Although these techniques have been used *in vivo*,<sup>8</sup> they do not give any morphological information and are not sensitive to possible mineral gain. High-cost and destructive methods such as surface profilometry<sup>9</sup> and microradiography<sup>10</sup> are also used for the detection and quantification of mineral loss due to acid erosion.

As alternative methods and due to their relatively affordable price and noninvasive nature, optical methods are being investigated and considered for the detection and quantification of dental erosion. Many methods based on the change in optical properties between healthy, demineralized, eroded, and carious teeth have been proposed for this purpose.<sup>2,11-15</sup> Quantitative light-induced fluorescence,<sup>3</sup> laser-induced fluorescence (which is the basis of the "diagnodent" device),<sup>16</sup> or transillumination with near-infrared light<sup>17</sup> have been used to detect and quantify the presence of lesions in subsurface enamel. Indeed, the demineralization process is accompanied by a change in the tooth scattering coefficient,<sup>12,13</sup> in the ability of enamel and dentine to depolarize incident light,<sup>18</sup> and in the spectral response of teeth. In fact, increased scattering coefficients and ability to depolarize light, as well as a loss in autofluorescence, are

\*Address all correspondence to: Christelle Abou Nader, E-mail: [krystal.a.n@live.com](mailto:krystal.a.n@live.com)



demonstrated in the case of enamel lesions. Optical coherence tomography has also demonstrated its capacity to generate surface and subsurface images of enamel samples using near-infrared light<sup>19</sup> and to provide precise information.

Speckle imaging has emerged over the past decade as a powerful yet low-cost technique for imaging biological media. In addition to its accessibility and simplicity, this method allows *in vivo* measurements and is not restricted to clinical research in laboratories. It has previously been considered as a tool for assessing dental erosion, where Koshiji et al.<sup>20</sup> showed the sensitivity of speckle image contrast ratios toward the degree of dental erosion in early stages after exposure to erosive acidic beverages using coherent visible light. Studies were also undertaken using light polarization to evaluate surface and subsurface structures.<sup>21</sup> For instance, Everett et al.<sup>18</sup> were able to identify precarious and carious lesions by detecting the change of polarization of incident light backscattered from dental tissues. Both speckle and polarized light imaging were proven to be sensitive for the discrimination of surface and bulk-scattering.<sup>22,23</sup>

In this study, we report and prove the capacity of polarized laser speckle imaging to detect early demineralization stages, even before the appearance of visible signs that an experienced dentist can spot while performing a checkup. Information given by speckle images is combined with the ones provided by polarization, making it a sensitive technique for the detection of early dental erosion stages.

## 2 Experimental Study

### 2.1 Sample Handling

Five human molars extracted for orthodontic reasons and showing no signs of visible erosion or decay after a detailed visual examination by experienced dentists were used in our study. The teeth were exposed to an acidic beverage [noncaffeinated soft drink (7-Up), pH = 3.4] during different immersion cycles, day after day for 2 weeks. Before exposure to the acidic beverage, the tooth surface had not been treated. When taken out of the acidic solution, the teeth were washed with mineral water and dried before speckle measurements were performed on both sides of each tooth. Teeth were preserved in a humid environment at room temperature after each experiment. During the period of our study, the samples did not undergo sufficient demineralization (see Fig. 1) for detection to become possible by frequently used conventional methods, such as x-ray measurements, and no white spot lesions were visible to trained dentists.

### 2.2 Speckle Experimental Setup

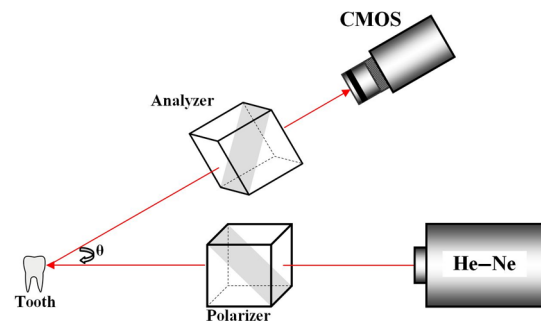
The experimental setup is presented in Fig. 2. A green He-Ne laser (543 nm, 5 mW) is shot through a polarizer and onto the sample. The backscattered light then goes through an analyzer where it is collected by a CMOS camera (Photon Focus, pixel size of  $8 \mu\text{m} \times 8 \mu\text{m}$ , 12 bits) in the  $\theta = 20$  deg direction. Speckle images of the samples were acquired at 10 ms exposure time.

### 2.3 Extracted Parameters

In the analysis of speckle patterns, both spatial and temporal aspects coupled to polarimetric measurements were investigated.



**Fig. 1** Photo of a tooth sample at the end of the study after cumulative immersion in acidic beverage for 660 min.



**Fig. 2** Overview of the speckle experimental setup.

The changes taking place in the teeth during the demineralization are accompanied by a change in their ability to depolarize incident light. In order to detect this variation, one of the parameters studied is the extinction ratio, defined in previous studies<sup>18</sup> as follows:

$$ER = \frac{I_{\perp}}{I_{//}}. \quad (1)$$

ER ranges between 0 and 1; an ER value of 1 indicates a total loss of incident polarization, whereas  $ER = 0$  reflects a complete preservation of the incident polarization. Considering our image collection method,  $I_{//}$  is the mean intensity measured at the camera surface when the polarization of the incident light is fully transmitted, and  $I_{\perp}$  is the mean intensity when the transmitted light results from a cross-linear polarization.

We also define the degree of linear polarization given by

$$DOP_L = \frac{I_{//} - I_{\perp}}{I_{//} + I_{\perp}}, \quad (2)$$

where  $DOP_L = 0$  indicates a total loss of the initial polarization state and  $DOP_L = 1$  shows a preservation of the initial polarization state.

Teeth surface erosion was also monitored previously<sup>20</sup> using laser contrast analysis (LASCA). The average contrast of the speckle image is given by

$$C = \frac{\sigma}{\langle I \rangle}, \quad (3)$$

where  $\langle I \rangle$  is the speckle image mean intensity and  $\sigma$  is its standard deviation. The contrast ratio CR is defined by

$$CR = 1 - \frac{\langle C_{Healthy} \rangle}{\langle C_{Eroded} \rangle}, \quad (4)$$

with  $\langle C_{Healthy} \rangle$  standing for the contrast of the acquired image on a healthy tooth surface and  $\langle C_{Eroded} \rangle$  on an eroded one.

Another parameter of interest in our study is the average speckle grain size  $dx$ , estimated by the width at half maximum of a horizontal cut taken from the speckle image autocorrelation function. This function is calculated by computing the inverse Fourier transform of the normalized power spectral density of the diffusing zone that is the square of the modulus of the Fourier transform of the intensity. The autocorrelation function is given by

$$c(x, y) = \frac{FT^{-1}\{[FT[I(x, y)]]^2\} - \langle I(x, y) \rangle^2}{\langle I(x, y)^2 \rangle - \langle I(x, y) \rangle^2}. \quad (5)$$

$$C(t, x, y) = \frac{\langle I(t_0, x_0, y_0)I(t, x, y) \rangle - \langle I(t_0, x_0, y_0) \rangle \langle I(t, x, y) \rangle}{\{[\langle I^2(t_0, x_0, y_0) \rangle - \langle I(t_0, x_0, y_0) \rangle^2][\langle I^2(t, x, y) \rangle - \langle I(t, x, y) \rangle^2]\}^{1/2}}, \quad (7)$$

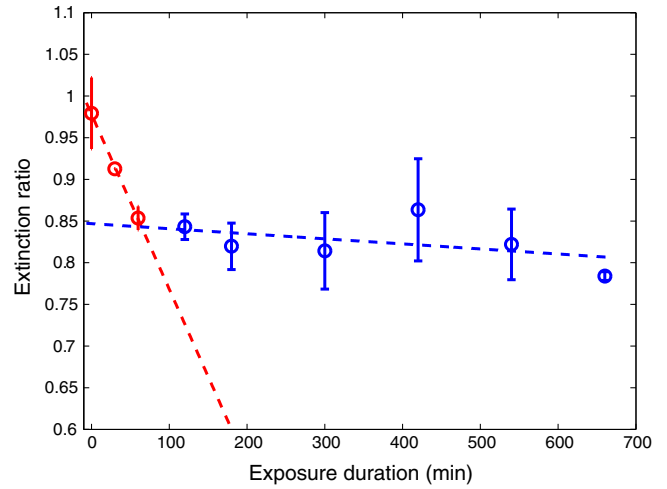
where the time  $t = k\Delta t$ ,  $\Delta t$  is the time step,  $(x, y) = (m\Delta r, n\Delta r)$ ,  $m$  and  $n$  are the pixel positions in the image, and  $\Delta r$  is the pixel size.

### 3 Results and Discussion

#### 3.1 Polarimetry Results

The information carried by light polarization is deduced directly from mean intensities of images recorded using different light polarizations. The ratio of cross- versus copolarized light scattered [Eq. (1)] from the enamel is plotted in Fig. 3. A decrease in the ER is observed as the tooth undergoes demineralization.

Figure 4 represents the variation of the  $DOP_L$  parameter as teeth undergo a cumulative acid attack. As defined in Eq. (2),  $DOP_L$  indicates the depolarization ability of the imaged medium. In fact, both  $DOP_L$  and ER demonstrate sensitivity to structural alteration of the tooth surfaces. The strong depolarization, or in other terms the loss of initial polarization before any acid attack ( $ER = 1$  and  $DOP_L = 0$ ), can be explained by the predominance of a volume backscattering contribution from



**Fig. 3** Variation of the extinction ratio as a function of duration of tooth exposure to acid (in minutes). Error bars correspond to the standard deviation. Circles correspond to experimental data. Lines are guides for the eyes.

The differences between linearly co- and cross-polarized speckle grains sizes  $\Delta dx_L$  and  $\Delta dy_L$ <sup>24</sup> were also computed as follows:

$$\Delta d_{\cdot L} = d_{\cdot L}^{\prime\prime} - d_{\cdot L}^{\perp}. \quad (6)$$

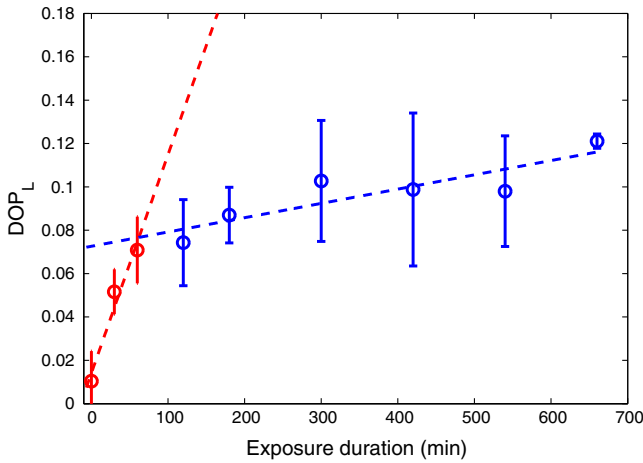
The two dots in Eq. (6) can be replaced by  $x$  or  $y$ , referring to the horizontal and vertical axes, respectively.

Similarly to the LASCA technique, temporal correlation of speckle images provides information about speckle dynamics. A series of the acquired speckle images was also temporally analyzed using a cross-correlation analysis of the first speckle image with the image number  $k$  as follows:<sup>25</sup>

subsurface layers of the tooth. Indeed, before the acid attack, tooth surfaces do not scatter highly; therefore, the volume diffusion is essentially captured. Inversely, as teeth become eroded due to an acid attack, the surface degradation leads to more scattering events by the enamel surface, thus less loss of initial polarization. A brutal change of slopes in our curves (as indicated by the eye-guides in Figs. 3 and 4) at around 70 min of acid exposure is observed, indicating that the surface scattering contribution overcomes the volume scattering contribution. These interpretations are supported in the next section by information provided by the analysis of spatial and temporal aspects of speckle images.

#### 3.2 Polarized Speckle Results

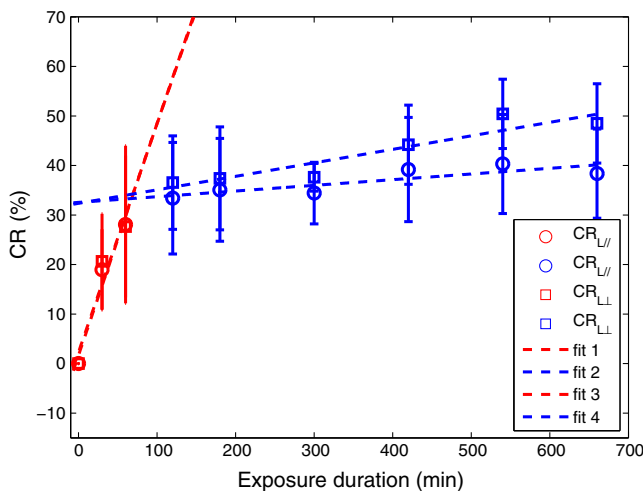
In this section, we consider the effects of the duration of tooth exposure to acid on first- and second-order statistics parameters and associate the variations to the surface roughness based on results reported in Ref. 26. The measured values of the contrast ratio (CR) defined in Eq. (4) are presented in Fig. 5. As the



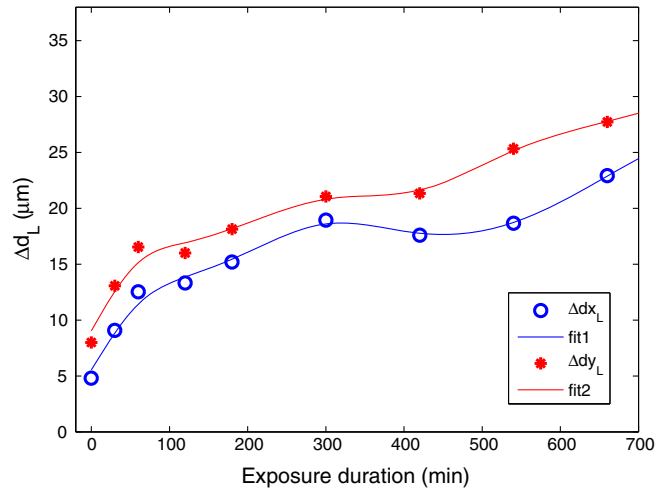
**Fig. 4** Variation of linear degree of polarization as a function of duration of tooth exposure to acid (in minutes). Error bars correspond to the standard deviation. Circles correspond to experimental data. Lines are guides for the eyes.

duration of tooth exposure to acid increased, variations in the image contrast occur; the contrast is larger in the case of eroded enamels. This behavior was also previously measured in Ref. 20. Furthermore, the change of the CR curve slope at around 70 min of acid exposure is similar to the one observed in the curves representing the variations of the extinction ratio and the linear degree of polarization. Similarly, this parameter is connected to tooth surfaces presenting roughness,<sup>26</sup> and therefore to the transition from volume to surface scattering.

Moreover, when considering second-order statistics of speckle images, the size of the speckle grains can provide information about surface roughness and diffusion depth as  $dx$  and  $dy$  are inversely proportional to the diameter of the diffusing area.<sup>27</sup> Thus photons backscattered by the surface, and producing a smaller diffusion spot than the ones penetrating more deeply, lead to larger speckle sizes. The use of polarized light for the computation of  $dx$  and  $dy$  allows a better understanding of these parameters. The speckle grain size differences  $\Delta dx_L$



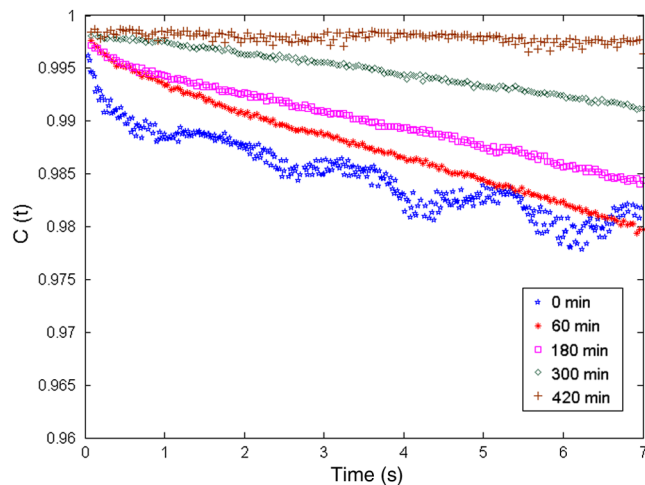
**Fig. 5** Variation of speckle contrast ratio (CR) as a function of duration of tooth exposure to acid (in minutes). Error bars correspond to the standard deviation.  $CR_{L//}$  and  $CR_{L\perp}$  are related to the linear co- and cross-polarized analysis configuration, respectively. Symbols correspond to experimental data. Lines are guides for the eyes.



**Fig. 6** Variation of the vertical and horizontal speckle grain size differences as a function of duration of tooth exposure to acid (in minutes).

and  $\Delta dy_L$  are plotted in Fig. 6. Curves represent results collected from one tooth due to the large variability in results caused by the unknown history of the teeth, essentially in terms of oral health hygiene and tooth structure that differs from one person to another. However, for all monitored teeth, similar trends were observed as teeth undergo demineralization due to acid exposure.  $\Delta dx_L$  and  $\Delta dy_L$  change with comparable orders of magnitude for all the monitored teeth. Both parameters are larger for teeth with extended acid exposure durations. This behavior was previously observed in situations where surface backscattering is increasing contrary to volume backscattering.<sup>27</sup>

A temporal analysis tracking the time varying correlation of speckle images was also explored on dried teeth. Figure 7 shows the correlation coefficient temporal evolution  $C(t)$  for teeth undergoing different acid exposure times. The different curves show the same behavior revealed by the parameters presented previously. Decorrelation is reduced with the increase of teeth acid exposure.  $C(t)$  curves provide information about the penetration depth of backscattered light reaching the CMOS detector; an increase in surface roughness, as previously



**Fig. 7** Variation of the temporal speckle images correlation as a function of time (in seconds) for different durations of tooth exposure to acid (in minutes).

mentioned, increases the number of shallow backscattered photons, resulting in less depolarization and a correlation coefficient closer to one.

## 4 Conclusion

We have demonstrated in an *ex-vivo* study the sensitivity of polarized speckle imaging in the detection of early dental demineralization stages. Information carried by polarized speckle images indicated a transition from volume to surface backscattering before the appearance of visible erosion signs. The described imaging method is a noncontact and simply implemented tool that will not induce any tooth damage. Its low cost makes it affordable for clinical use. This work should be continued by increasing the number of teeth studied and by using standard techniques to examine structural changes induced on the tooth surface by acid attack. Numerous applications in the clinical field can also be considered, such as the evaluation of dental restoration through remineralization or the evaluation of food and beverage impacts on teeth.

## Acknowledgments

The authors thank the Research Council of Saint-Joseph University and CEDRE Program (ref 30950 XC) for funding the project.

## References

- J. Hicks, F. Garcia-Godoy, and C. Flaitz, "Biological factors in dental caries enamel structure and the caries process in the dynamic process of demineralization and remineralization (part 2)," *J. Clin. Pediatr. Dent.* **28**(2), 119–124 (2005).
- A. Baumgartner et al., "Optical coherence tomography of dental structures," *Proc. SPIE* **3248**, 130–136 (1998).
- G. M. Correr et al., "In vitro wear of primary and permanent enamel. Simultaneous erosion and abrasion," *Am. J. Dent.* **20**(6), 394–399 (2007).
- A. T. Hara, R. L. Karlinsey, and D. T. Zero, "Dentine remineralisation by simulated saliva formulations with different Ca and P in contents," *Caries Res.* **42**, 51–56 (2008).
- A. Papas et al., "Caries clinical trial of a remineralizing toothpaste in radiation patients," *Gerodontology* **25**(2), 76–88 (2008).
- A. K. Burwell, L. J. Likowski, and D. C. Greenspan, "Calcium sodium phosphosilicate (Novamin®) remineralization potential," *Adv. Dental Res.* **21**(1), 35–39 (2009).
- M. L. Singh and A. S. Papas, "Long term clinical observation of dental caries in salivary hypofunction patients using supersaturated calcium phosphate remineralizing rinse," *J. Clin. Dent.* **20**(3), 87–92 (2009).
- A. Young et al., "Effect of toothpaste on erosion-like lesions: an in vivo study," *Eur. J. Oral. Sci.* **114**(3), 180–183 (2006).
- J. Field, P. Waterhouse, and M. German, "Quantifying and qualifying surface changes on dental hard tissues in vitro," *J. Dent.* **38**(3), 182–190 (2010).
- A. F. Hall et al., "Application of transverse microradiography for measurement of mineral loss by acid erosion," *Adv. Dent. Res.* **11**(4), 420–425 (1997).
- N. Schlueter et al., "Methods for the measurement and characterization of erosion in enamel and dentine," *Caries Res.* **45**(1), 13–23 (2011).
- C. C. Ko et al., "Optical scattering characterization of mineral loss," *J. Dent. Res.* **79**(8), 1584–1589 (2000).
- C. L. Darling, G. D. Huynh, and D. Fried, "Light scattering properties of natural and artificially demineralized dental enamel at 1310 nm," *J. Biomed. Opt.* **11**(3), 034023 (2006).
- E. Borisova, T. Uzunov, and L. Avramov, "Laser-induced autofluorescence study of caries model in vitro," *Lasers Med. Sci.* **21**(1), 34–41 (2006).
- C. M. Zakian et al., "Occlusal caries detection by using thermal imaging," *J. Dent.* **38**(10), 788–795 (2010).
- A. Lussi, R. Hibst, and R. Paulus, "DIAGNodent: an optical method for caries detection," *J. Dent. Res.* **83**(1), C80–C83 (2004).
- R. S. Jones et al., "Nearinfrared transillumination at 1310-nm for the imaging of early dental decay," *Opt. Express* **11**(18), 2259–2265 (2003).
- M. J. Everett et al., "Optical detection dental disease using polarized light," U.S. Patent No. 6522407 B2 (2003).
- C. H. Wilder-Smith et al., "Quantification of dental erosions in patients with GERD using optical coherence tomography before and after double-blind, randomized treatment with esomeprazole or placebo," *Am. J. Gastroenterol.* **104**(11), 2788–2795 (2009).
- N. H. Koshiji et al., "Laser speckle imaging: a novel method for detecting dental erosion," *PLoS One* **10**(2), e0118429 (2015).
- S. L. Jacques, J. C. Ramella-Roman, and K. Lee, "Imaging skin pathology with polarized light," *J. Biomed. Opt.* **7**(3), 329–340 (2002).
- J. Sorrentini, M. Zerrad, and C. Amra, "Statistical signatures of random media and their correlation to polarization properties," *Opt. Lett.* **34**(16), 2429–2431 (2009).
- A. Ghabbach et al., "Depolarization and enpolarization DOP histograms measured for surface and bulk speckle patterns," *Opt. Express* **22**(18), 21427–21440 (2014).
- C. Abou Nader et al., "Influence of size, proportion, and absorption coefficient of spherical scatterers on the degree of light polarization and the grain size of speckle pattern," *Appl. Opt.* **54**(35), 10369–10375 (2015).
- R. Nassif et al., "Retrieving controlled motion parameters using two laser speckle pattern analysis techniques: spatiotemporal correlation and the temporal history speckle pattern," *Appl. Opt.* **52**(31), 7564–7569 (2013).
- U. Persson, "Real time measurement of surface roughness on ground surfaces using laser speckle contrast technique," *Opt. Laser Eng.* **17**, 61–67 (1992).
- R. Nassif et al., "Scattering through fruits during ripening: laser speckle technique correlated to biochemical and fluorescence measurements," *Opt. Express* **20**(21), 23887–23897 (2012).

**Christelle Abou Nader** earned her master's degree in sensors and instrumentation from University of Western Brittany (UBO), France, and Saint-Joseph University (USJ), Lebanon in 2013. She is currently pursuing her PhD research in Laser Speckle Imaging at UBO and USJ. Her studies cover the field of optical imaging of diffusing media, more specifically polarized light and speckle imaging, for the noninvasive diagnosis of early disease stages and biomedical applications.

**Fabrice Pellen** received his PhD in optics from the University of Brest, France, in 2000. From 2002 to 2004, he was a researcher at the Laboratory E312 (EA3876), at ENSTA Brest, working on signal processing and radar images. He is currently an associate professor at the University of Brest, France, working in the LSOL Laboratory. His research focusses on optics in scattering media, polarimetry, speckle, biophotonics, and lidar systems for underwater target detection.

**Hadi Loufi** earned his bachelor degree in physics from Saint-Joseph University, Beirut, Lebanon in 2015. He is currently preparing his master's degree in sensors and instrumentation in the same university.

**Rassoul Mansour** earned his bachelor degree in physics from Saint-Joseph University, Beirut, Lebanon in 2015. He is currently preparing his master's degree in sensors and instrumentation in the same university.

**Bernard Le Jeune** is currently a professor at Spectrometry and Laser Optics Laboratory at Université de Bretagne Occidentale in Brest, France. He received his PhD in marine optics in 1990 at the Université de Bretagne Occidentale. His current research concerns optical metrology in scattering media, and more particularly polarimetric and coherent aspects in biophotonics and marine environment.

**Guy Le Brun** received his PhD in electronics from Laboratoire de Spectrométrie et Optique Laser (LSOL) at Université de Bretagne Occidentale (UBO), Brest, France in 1992. From this date, he works in the permanent staff of the LSOL as Maître de

Conférences. His current areas of research interest include light-tissue interactions, laser speckle, and polarimetry.

**Marie Abboud** received her PhD in atomic physics from Laboratoire Kastler Brossel at Ecole Normale Supérieure and Université Pierre et Marie Curie, Paris, France in 2005. From 2005 to 2013, she worked as

an assistant professor and since 2013 as an associate professor at the Faculty of Science at Saint-Joseph University, Beirut, Lebanon, specializing on biophotonics and specifically on optical imaging of diffusing media. In 2009, she received the UNESCO-L'Oréal "For Women In Science" prize.

# Optics Letters

## Evaluation of low viscosity variations in fluids using temporal and spatial analysis of the speckle pattern

CHRISTELLE ABOU NADER,<sup>1,2,\*</sup> FABRICE PELLEN,<sup>2</sup> PHILIPPE ROQUEFORT,<sup>3</sup> THIERRY AUBRY,<sup>3</sup>  
BERNARD LE JEUNE,<sup>2</sup> GUY LE BRUN,<sup>2,4</sup> AND MARIE ABBOUD<sup>1,5</sup>

<sup>1</sup>Physics Department, UR TVA, Faculty of Science, Saint Joseph University, B.P. 11-514-Riad El Solh, Beirut 1107 2050, Lebanon

<sup>2</sup>Université de Brest, UEB, EA 938 Laboratoire de Spectrométrie et Optique Laser, Institut Brestois de Santé Agro Matière, 6 Avenue le Gorgeu, C.S. 93837, 29238 Brest Cedex 3, France

<sup>3</sup>Université de Brest, UEB, EA 4250 LIMATB Equipe Rhéologie, 6 Avenue le Gorgeu, C.S. 93837, 29285 Brest Cedex 3, France

<sup>4</sup>e-mail: guy.lebrun@univ-brest.fr

<sup>5</sup>e-mail: marie.abboud@usj.edu.lb

\*Corresponding author: abounaderchristelle@gmail.com

Received 20 January 2016; revised 13 March 2016; accepted 20 April 2016; posted 22 April 2016 (Doc. ID 257841); published 23 May 2016

**The noninvasive detection of a material's viscoelasticity is of great importance in the medical field. In fact, certain diseases cause changes in tissue structure and biological fluid viscosity; tracking those changes allows for detection of these diseases. Rheological measurements are also imperative in the industrial field, where it is necessary to characterize a material's viscoelasticity for manufacturing purposes. In this Letter, we present a noncontact, noninvasive, and low cost method for determining low viscosity values and variations in fluids. Laser speckle and viscometric measurements are performed on test samples having low scattering coefficients and low viscosities. The speckle spatial analysis proved to be as accurate as the speckle temporal correlation method reported in previous studies. Very low viscosities of the order of 1 mPa.s were retrieved for the first time using speckle images with either a frame rate of 1950 fps or a single acquired image.** © 2016 Optical Society of America

**OCIS codes:** (110.6150) Speckle imaging; (290.0290) Scattering; (170.4580) Optical diagnostics for medicine; (170.7050) Turbid media; (030.6140) Speckle; (290.1350) Backscattering.

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.41.002521>

Rheological measurements are used to characterize the mechanical properties of media ranging from Newtonian fluids having a viscous nature to Hookean solids exhibiting perfectly elastic behavior. Viscoelastic properties of materials can be measured by a wide variety of methods, including optical, acoustic, and mechanical ones [1–4]. Optical scattering-based methods are often used due to their simplicity. The experimental facilities they offer tolerate measurements in high pressure environments and stationary conditions. Dynamic light-scattering (DLS) was previously used [5] to determine liquid viscosity at high pressure. However, this technique imposes some

restrictions on sample nature, so as to avoid multiple scattering. The ability of laser speckle rheology (LSR) to measure materials' viscoelastic moduli was also proven in previous work [6]; the study was based on laser speckle fluctuation measurements by computing speckle image correlation acquired by a high speed camera. In fact, the Brownian motion of optical scatterers causes temporal fluctuations of speckle intensity. The velocity of these fluctuations is controlled by the intrinsic viscoelastic properties of the sample. LSR was applied to monitor blood coagulation as changes in the viscoelastic properties of blood occur during this process [7]. Shear-wave laser speckle contrast analysis (SW-LASCA) was also used to determine mechanical properties of reference materials. An amplitude-modulated ultrasound wave of a few hundred Hertz generated shear waves within the samples. Speckle images were captured by a camera at a 2 ms exposure time. Time resolved speckle contrast difference that tracked tissue-mimicking phantom viscosity was used to calculate the shear-wave velocity [8].

In our study, we explore the response of low scattering (reduced scattering coefficient  $\mu'_s$  of the order of  $1.8 \text{ mm}^{-1}$ ) and low viscous liquids (viscosity of a few mPa.s) that present interest for medical and industrial applications. The suggested method can also be used for samples with higher scattering coefficients and viscosity. In fact, causal links between the viscosity and the microstructure of biological fluids can be exploited as an inspection or diagnostic tool [9–14] for medical applications. In the industrial field, the measurement of viscous properties can be used in the quality control sector as an indirect tool for defining product consistency and quality [15,16]. In addition, these measurements can be applied to monitor chemical reactions, polymer syntheses [17,18], and to study chemical, thermal, and mechanical treatments of a curing reaction [19]. We aim to quantify small changes in the viscosity of media by using and comparing two approaches: a temporal approach performed with a high frame rate (1,950 fps) and a short exposure

time (500  $\mu\text{s}$ ), and a spatial approach applied on images acquired with various exposure times (1 to 10 ms). The estimation of viscosity levels is compared with values obtained from conventional rheological measurements. We report for the first time to the best of our knowledge: (i) the ability of the temporal approach to retrieve low viscosity level variations and (ii) the accuracy of the spatial approach in deducing a fluid's viscosity.

Polystyrene microspheres (Polysciences Inc. USA) with a diameter of 0.22  $\mu\text{m}$  and a refractive index of 1.59 suspended in water with a concentration of 0.00453 mg/ml were used as a diffusing medium. These parameters were chosen so that anisotropy factor  $g$  is equal to 0.3857, and the diffusion coefficient  $\mu_s$  is equal to 3  $\text{mm}^{-1}$ , in order to simulate low scattering fluids [20].

The absorption coefficient  $\mu_a$  of the samples is negligible compared to  $\mu_s$ . In order to induce small viscosity changes in our solutions, different concentrations of ultra-pure sucrose ( $\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$ , molar mass  $M = 342.3$  g/mol) were added. The viscosity of the samples was increased by increasing the sucrose concentration up to 0.45 g/ml. Figure 1 illustrates the dependency of a solution's viscosity on sucrose concentration at 20°C. These results were calculated assuming that the viscosity of water at 20°C is 1.005 mPa.s [11]. We also used a viscometer (Contraves Low-shear 30) in order to measure the exact viscosity values for the prepared solutions, taking into account manipulation errors.

When considering optical properties, the diffusion by sucrose molecules is minor; as the sucrose molecule diameter is approximately 0.9 nm [12],  $\mu_s$  varies only from  $7.45 \times 10^{-6}$  to  $2.3 \times 10^{-5}$   $\text{mm}^{-1}$  for solutions with sucrose concentration varying from 0.1 to 0.45 g/ml. The scattering and reduced scattering coefficients  $\mu_s$  and  $\mu'_s$  [with  $\mu'_s = \mu_s(1-g)$ ] of the suspensions were calculated using the Mie theory [13,14].

Speckle images were acquired from samples with different sucrose concentrations placed in a quartz cell and illuminated by a Helium-Neon laser emitting at 632.8 nm. A high speed recording complementary metal oxide semiconductor (CMOS) camera (MotionBLITZ EoSens mini, pixel size of 14  $\mu\text{m} \times 14 \mu\text{m}$  with a global electronic shutter) collected the backscattered light from the sample. A polarizer and an analyzer (with

parallel axes) were used in order to ensure a linear configuration of the incident and collected light. Temporal and spatial approaches are jointly conducted in the treatment and analysis of our experimental results. In the temporal approach, we were able to vary the number of frames per second, reaching a very high rate (up to 1950 fps for an image exposure time of 500  $\mu\text{s}$ ). The high frame rate is required in order to retrieve low viscosities by tracking speckle temporal fluctuations. The size of the recorded images was chosen to be  $192 \times 200$  pixels, yielding results as accurate as ones obtained with larger images. The speckle grains typically covered a couple of pixels, showing a slight decrease (in the order of one pixel or less) when the viscosity value increased from 1 to 5 mPa.s. The series of the recorded images were temporally analyzed; the speckle intensity correlation was calculated via a cross correlation analysis of the first speckle image intensity  $I(t_0, x_0, y_0)$  with the  $k$ th image intensity  $I(t, x, y)$  the temporal series using

$$c(t, x, y) = \frac{\langle I(t_0, x_0, y_0)I(t, x, y) \rangle - \langle I(t_0, x_0, y_0) \rangle \langle I(t, x, y) \rangle}{[\langle I^2(t_0, x_0, y_0) \rangle - \langle I(t_0, x_0, y_0) \rangle^2] [\langle I^2(t, x, y) \rangle - \langle I(t, x, y) \rangle^2]}^{1/2} \quad (1)$$

where  $t = k * \Delta t$  is the time,  $\Delta t$  is the time step, and  $(x, y) = (m\Delta r, n\Delta r)$ .  $m$  and  $n$  are the pixel positions in the image, and  $\Delta r$  is the pixel size [21].

For the spatial analysis, image exposure time was varied in the range [1; 10 ms] while imaging every sample. This analysis was undertaken by varying image exposure time for each sample and computing the image spatial contrast  $C$ .  $C$  is defined as the ratio between the intensity standard deviation  $\sigma_I$  and the mean intensity of the speckle pattern image as follows [22]:

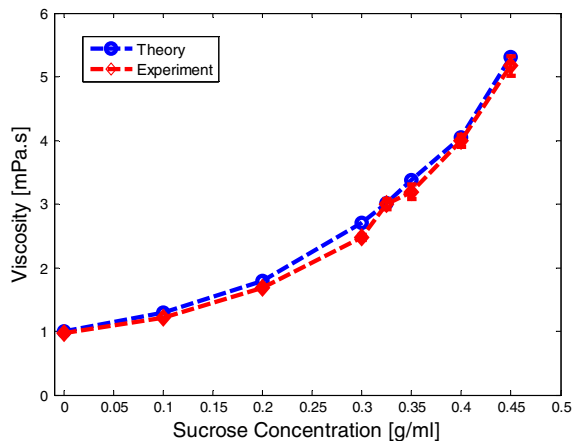
$$C = \frac{\sigma_I}{\langle I \rangle} = \frac{\sqrt{\langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2}}{\langle I \rangle} \quad (2)$$

In the following, we discuss the main advantages and limitations of both approaches, and compare their effectiveness for the measurement of very low fluid viscosity levels.

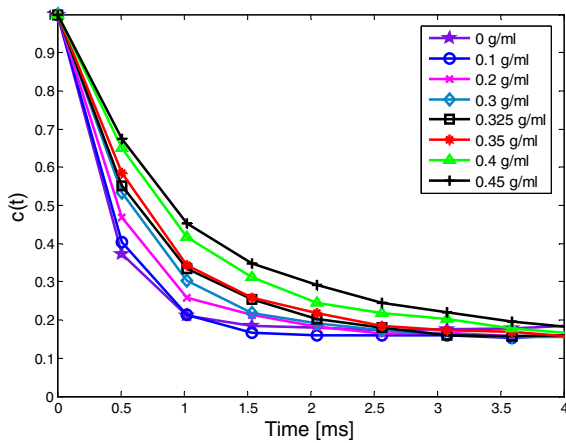
Regarding the temporal approach, temporal correlations averaged over all the speckle image pixels are reported in Fig. 2 as a function of time. Since the correlation coefficient of the sample reflects time variations in the speckle activity [23], if one considers the Brownian motion of the scatterers in the solution, the temporal correlation coefficient falls to a minimum value, and the speed of this decorrelation reflects mean fluctuations in the sample. An exponential fit of the correlation coefficient curve (*a. exp*( $-bt$ ), where  $b = 1/\tau$ ) allows an estimation of the decorrelation time constant  $\tau$ .

Hence, curves with fast decays are related to samples with high activities, while relatively slow decays are related to samples with lower activities. As shown in Fig. 2, the curves corresponding to different sucrose concentrations exhibit different decorrelation speeds. The fastest decay is seen for the sample containing no sugar; that is for the medium having the viscosity of water. The slowest decay is measured in the case of the solution containing the largest amount of sugar, in other words, the highest viscosity.

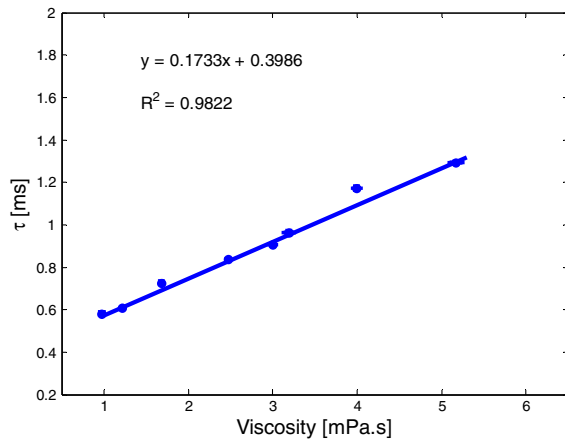
Figure 3 shows the variation of  $\tau$  as a function of viscosity, which depends on sucrose concentrations as illustrated in Fig. 1. With an increasing viscosity, decorrelation time tends



**Fig. 1.** Viscosity of sucrose solutions as a function of sucrose concentration at 20°C. Theoretical values (circles) are based on the results of Swindells *et al.* [11]. Experimental values (squares) are associated with the error bars corresponding to multiple measurements.



**Fig. 2.** Speckle intensity correlation curves  $c(t)$  for samples composed of  $0.22 \mu\text{m}$  diameter spheres suspended in solutions containing sucrose concentrations indicated in the legend. Error bars are of the order of the symbol's size.



**Fig. 3.** Speckle decorrelation time  $\tau$  as a function of the sample's viscosity. Values of  $\tau$  are derived from the exponential fit of the intensity correlation coefficients. Horizontal error bars correspond to the standard deviation. Vertical error bars are of the order of the symbol's size.

to be longer as particles tend to move slower.  $\tau$  can obviously be correlated to the viscosity level of the solutions.

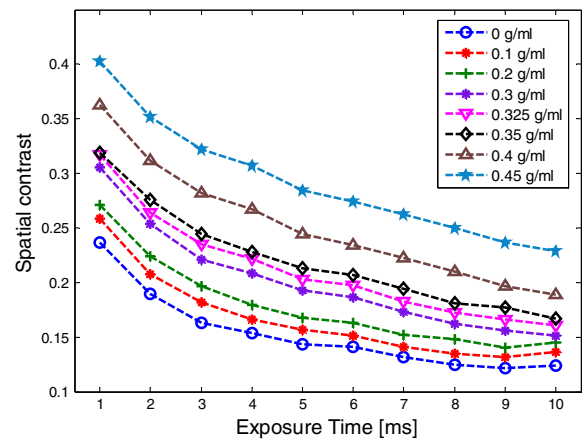
However, as reported in previous studies [24], speckle decorrelation time  $\tau$  is not only dependent on the mechanical properties of samples, but also on their optical properties. Variations in the scattering or absorption coefficients can also affect the evolution of decorrelation times measured from speckle images. An increase in the absorption coefficient of samples reduces the diameter of the diffusion spot; thus, the contribution of photons having a longer optical path is decreased [20,25]. Consequently, speckle decorrelation time is increased. Moreover, a rise in optical scattering has the inverse effect on speckle decorrelation time since it induces more scattering events per optical path. Therefore, more scattering events result in a shortened decorrelation time.

In our case, all samples do not have any  $\mu_a$  changes, but the increase of sucrose concentration in the solutions induces a rise in sample's refractive index  $n$ , and hence, a decrease in the number of scattering events. For solutions having the same particle concentration, a decrease of about  $1.3 \text{ mm}^{-1}$  in  $\mu_s$  can be observed between the one containing no sugar and the other having a sucrose concentration of  $0.45 \text{ g/ml}$  [26]. In order to discriminate between the effects of optical and mechanical properties on the speckle decorrelation time, we varied the scatterer's concentration in all our samples so that the  $\mu_s'$  value remains unchanged for all sucrose concentrations. This allows us to consider that in our experiments the correlation coefficient is essentially related to a change in viscosity. Therefore, when dealing with a biological or chemical medium, one should take into consideration the optical properties for absolute viscous constant measurements through laser speckle correlation. Otherwise, for tracking relative viscosity changes in a given sample, this manipulation is not required.

Regarding the spatial approach, by varying the image exposure time, the speckle pattern is more or less blurred. Therefore, an increase in the exposure time reduces the speckle spatial contrast. Moreover, intensity fluctuations also affect the spatial contrast; an increased activity leads to a decrease in the intensity standard deviation of the image. These behaviors were studied with different samples having various viscosities.

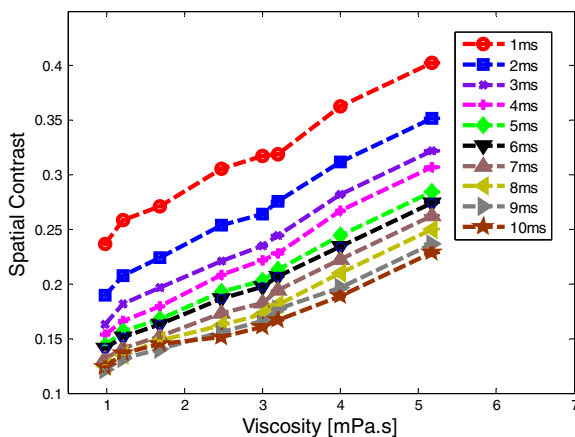
Speckle image contrast is reported in Fig. 4 as a function of the exposure time for the samples with various sucrose concentrations having different viscosity levels. For each sample, the spatial contrast is reduced with an increased image exposure time. In fact, when the exposure time is increased, more speckle intensity fluctuations will be averaged out. This leads to a decrease in the spatial contrast of the captured frame, as the mean intensity was kept unchanged while the standard deviation is reduced. When the image exposure time is chosen to be much larger than the speckle fluctuation's cycle time, the contrast will tend toward a minimum value due to the averaging of all intensity variations [22].

If one considers a given exposure time, a difference in the contrast between the solutions with various sucrose concentrations, that is with different viscosities, is revealed by our results.



**Fig. 4.** Variation of the spatial contrast with the image exposure time for samples composed of  $0.22 \mu\text{m}$  diameter spheres suspended in solutions containing the sucrose concentrations indicated in the legend. Error bars are of the order of the symbol's size.





**Fig. 5.** Variation of the spatial contrast with the sample's viscosities at different exposure times. Vertical and horizontal error bars are of the order of the symbol's size.

A larger sucrose concentration increases the solution viscosity and slows down the Brownian motion of the suspended spheres, which reduces speckle activity. Therefore, the contrast of the speckle images rises significantly as seen in Figs. 4 and 5.

Both methods presented, i.e., spatial contrast with different exposure times and temporal correlation coefficients, proved their ability to differentiate between solutions having different and very low viscosity values, of the order of a few mPa.s (in the range of 1–5 mPa.s).

The high speed camera and the spatial averaging over multiple exposure times allowed the tracking of fluctuations having a short time constant. This will pave the way for a noninvasive and non-contact detection of low viscosity levels and variations. Furthermore, the image's exposure times and acquisition rate can also be adapted for the tracking of higher viscosities.

When comparing both presented methods, the spatial contrast technique gives access to information with a standard camera without the need to use an expensive and high speed one for tracking low viscosities. This can be an advantage in the case of the development of a commercial sensor. From a practical and an industrial point of view, multiple applications can be considered. This technique can be an alternative to conventional viscometers when experimental limitations, such as the operating temperature or pressure, are imposed. The ability of tracking small variations in low viscosity solutions can also be useful for the detection of diseases causing changes in the constitution of biological fluids. For instance, measurements on blood samples for the diagnosis of *polycythemia Vera* can be carried out as the viscosity of whole blood is 3 times higher than that of water, and can become up to 3 times higher in the case of polycythemia [27]. Hyperviscosity syndrome in blood serum can also be detected as it increases the normal viscosity of serum from 1.4–1.8 to 4–5 mPa.s [28,29]. Also, since the methods currently used for the quantification of viscosity in semen are inaccurate, semen hyperviscosity indicating a prostate dysfunction and a possible fertility problem [30,31] can be spotted as semen viscosity changes are in the order of 7 to 9 mPa.s. Lastly, the detection of proteinuria causing an increase in urine viscosity, which is often a sign of kidney disease [32], is also possible.

**Funding.** Ecole Doctorale SICMA of Université de Bretagne; Research Council of Saint-Joseph University; Institut Français in Lebanon; CEDRE Program (ref. 30950 XC).

**Acknowledgment.** The authors thank the Ecole Doctorale SICMA of Université de Bretagne Occidentale, the Research Council of Saint-Joseph University, the Institut Français in Lebanon, and the CEDRE Program (ref. 30950 XC) for funding the project.

## REFERENCES

1. R. S. Lakes, *Rev. Sci. Instrum.* **75**, 797 (2004).
2. S. Chen, M. Fatemi, and J. F. Greenleaf, *J. Acoust. Soc. Am.* **115**, 2781 (2004).
3. S. J. Kirkpatrick, M. T. Hinds, and D. D. Duncan, *Tissue Eng.* **9**, 645 (2003).
4. R. Bandyopadhyay, A. S. Gittings, S. S. Suh, P. K. Dixon, and D. J. Durian, *Rev. Sci. Instrum.* **76**, 093110 (2005).
5. K. Fukui, Y. Asakuma, and K. Maeda, *J. Phys.* **215**, 012073 (2010).
6. Z. Hajjarian and S. K. Nadkarni, *Sci. Rep.* **2**, 1 (2012).
7. M. M. Tripathi, Z. Hajjarian, E. M. Van Cott, and S. K. Nadkarni, *Biomed. Opt. Express* **5**, 817 (2014).
8. Y. Cheng, S. Li, R. J. Eckersley, D. S. Elson, and M. X. Tang, *J. Biomed. Opt.* **18**, 1215111 (2013).
9. M. Friebe, A. Roggan, G. Muller, and M. Meinke, *J. Biomed. Opt.* **11**, 34021 (2006).
10. M. Arif, T. Idzenga, C. L. De Korte, and R. Van Mastrigt, *NeuroUrol. Urodyn.* **34**, 781 (2015).
11. J. F. Swindells, C. F. Synder, R. C. Hardy, and P. E. Golden, *United States Department of Commerce, Sinclair Weeks, Secretary, National Bureau of Standards* (1957), p. 3.
12. O. M. Nesin, O. N. Pakhomova, S. Xiao, and A. G. Pakhomov, *BBA Biomemb.* **1808**, 792 (2011).
13. H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (Dover, 1981), Chap. 19.
14. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, 1983), Chap. 10.
15. A. Brown, *Understanding Food: Principles and Preparation*, 5th ed. (Cengage Learning, 2015), p. 26, Chap. 2.
16. K. L. McCarthy and M. J. McCarthy, *J. Food Sci.* **74**, E291 (2009).
17. H. Kyushiki and A. Ikai, *Proteins* **8**, 287 (1990).
18. M. A. Seddeek, A. A. Darwish, and M. S. Abdelmeguid, *Commun. Nonlinear Sci. Numer. Simul.* **12**, 195 (2007).
19. A. Yousefi, P. G. Lafleur, and R. Gauvin, *Polym. Composite* **18**, 157 (1997).
20. C. Abou Nader, R. Nassif, F. Pellen, B. Le Jeune, G. Le Brun, and M. Abboud, *Appl. Opt.* **54**, 10369 (2015).
21. R. Nassif, C. Abou Nader, F. Pellen, G. Le Brun, M. Abboud, and B. Le Jeune, *Appl. Opt.* **52**, 7564 (2013).
22. J. D. Briers and S. Webster, *J. Biomed. Opt.* **1**, 174 (1996).
23. R. Nassif, C. Abou Nader, C. Afif, F. Pellen, G. Le Brun, B. Le Jeune, and M. Abboud, *Appl. Opt.* **53**, 8276 (2014).
24. Z. Hajjarian and S. K. Nadkarni, *PLoS one* **8**, e65014 (2013).
25. A. N. Witt, *Astrophys. J. Suppl. Ser.* **35**, 1 (1977).
26. Sucrose conversion table, United States Department of Agriculture, Agricultural Marketing Service, Fruit and Vegetable Division, Processed Products Branch, File Code 135-A-50.
27. A. C. Guyton and J. E. Hall, *Textbook of Medical Physiology*, 11th ed. (Elsevier Saunders, 2006), pp. 169–170, Chap. 14.
28. M. J. Stone and S. A. Bogen, *Blood* **119**, 2205 (2012).
29. J. Mehta and S. Singhal, *Seminars Thromb. Hemost.* **29**, 467 (2003).
30. S. S. Du Plessis, S. Gokul, and A. Agarwal, *Front. Biosci. (Elite Ed.)* **1**, 224 (2013).
31. M. Flint, S. S. du Plessis, and R. Menkveld, *Andrologia* **46**, 837 (2014).
32. B. A. Inman, W. Etienne, R. Rubin, R. A. Owusu, T. R. Oliveira, D. B. Rodrigues, P. F. Maccarini, P. R. Stauffer, A. Mashal, and M. W. Dewhirst, *Int. J. Hyperther.* **29**, 206 (2013).