

Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace (ISAE)

Présentée et soutenue par :

Myriam KERVELLA

le mardi 5 février 2013

Titre :

Modélisation du temps de vol des photons dans un milieu diffusant et absorbant à l'échelle femtoseconde

École doctorale et discipline ou spécialité :

ED GEET : Photonique et systèmes optoélectroniques

Unité de recherche :

Équipe d'accueil ISAE-ONERA OLIMPES

Directeur(s) de Thèse :

M. François HACHE (directeur de thèse)

M. Thibault DARTIGALONGUE (co-directeur de thèse)

Jury :

M. Thibault Dartigalongue - Co-directeur de thèse

M. Antonello De Martino - Rapporteur

M. François Hache - Directeur de thèse

M. Gérard Jeandel - Rapporteur

M. Loic Mees

M. Xavier Orlik

REMERCIEMENTS

En regardant trois ans et demi en arrière, je ne retrouve plus l'étudiante scolaire que j'étais. Ce travail de thèse m'a apporté une plus grande rigueur scientifique, un esprit un peu plus critique et une certaine maturité. Mon travail a des qualités et des défauts. Il y a toujours possibilité de mieux faire mais je suis assez fière de moi.

Je voudrais tout d'abord remercier toutes les personnes qui ont apporté leur contribution à ce travail.

J'exprime ma gratitude à François Hache qui a dirigé cette thèse à distance depuis le Laboratoire Optiques et Biosciences de l'école Polytechnique en me laissant une parfaite autonomie au cours de cette thèse qui n'aurait pas pu se faire sans lui. J'exprime ma reconnaissance à Thibault Dartigalongue, qui a encadré mon travail au sein du Département Optique Théorique et Appliquée (DOTA) de l'ONERA à Toulouse, pour les nombreuses discussions scientifiques que nous avons eues tout au long de mon travail.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Messieurs Gérard Jeandel et Antonello de Martino qui m'ont fait l'honneur d'accepter de juger mon travail de thèse en tant que rapporteurs et d'avoir pris le temps de lire ce manuscrit. Je remercie aussi les autres membres du jury, Loïc Méès et Xavier Orlik, d'avoir accepté le rôle d'examineur et pour leur enthousiasme.

J'adresse également des remerciements à Bernard Rosier de m'avoir accueilli au sein du DOTA ainsi qu'à Laurent Hespel, responsable de l'unité Interaction Ondes-matière et systèmes laser pour la Détection directe et l'Imagerie (IODI), pour m'avoir permis de faire ce doctorat dans les meilleures conditions.

Une mention spéciale pour Nicolas Rivière qui m'a soutenu et m'a rassuré dans mes moments de doute ainsi que pour Geneviève Corrège considérée comme la mère des doctorants du DOTA. Elle a toujours simplifié les démarches administratives afin que je puisse me concentrer sur mon travail de thèse.

De manière plus personnelle, je tiens alors à remercier toutes les personnes qui ont contribué à rendre ces trois années passées au DOTA Toulouse les plus agréables possibles.

Mes remerciements vont d'abord à tout le personnel permanent du DOTA Toulouse qui m'a chaleureusement accueilli et avec qui j'ai passé de bons moments au cours des inévitables pots organisés que je vais sûrement regretter. Je tiens à remercier Christian avec qui j'ai partagé mon bureau pendant ces trois ans de thèse et qui a dû me supporter.

Je n'oublie pas mon acolyte, François-Xavier, au sein de l'équipe rattachée au laboratoire femtoseconde. Merci F-X pour ton soutien permanent, ton aide constante ainsi que les astuces et conseils en ce qui concerne la thèse et son déroulement.

Bien entendu, j'ai une pensée particulière pour les doctorants, stagiaires et apprentis que j'ai eu la chance et le plaisir d'apprendre à connaître, au laboratoire et en dehors. Je ne saurais exprimer ici toute l'importance qu'ont pu avoir pour moi pendant cette thèse Stéphanie, Audrey, Karine, Guillaume F., Guillaume A. et les autres. Petite pensée spéciale pour Emmanuelle, Béatrice, Romain et Erwan qui m'ont peut-être plus que les autres supportés au quotidien ! Sans aucune distinction, je vous remercie tous pour les agréables soirées passées ensemble qui vont forcément me manquer : merci à vous tous.

Merci enfin à tous ceux qui m'ont soutenue en dehors du travail de thèse et qui ont toujours cru en moi. Merci à ma famille et plus particulièrement à mes parents non seulement

pour avoir supporté mes états d'âme mais aussi pour leur discernement et leurs encouragements. Merci à ma seconde famille audoise pour son amitié sincère. Merci aussi à Olga Lado-Bordowsky qui m'a ouvert les portes de la recherche. Merci évidemment à Patrice toujours là après toutes ces années. Restent ceux que je n'ai pas assez vus à cause de la distance mais que j'ai tant de plaisir à retrouver.

TABLE DES MATIERES

REMERCIEMENTS	3
TABLE DES MATIERES	5
INDEX DES FIGURES	7
INDEX DES TABLEAUX.....	9
NOTATIONS ET DEFINITIONS.....	11
INTRODUCTION.....	15
CHAPITRE 1 : ETUDE DE LA FONCTION DE PHASE TEMPORELLE	21
1. DEFINITION DE LA FONCTION DE PHASE SANS ABSORPTION	21
1.1. <i>Présentation du formalisme</i>	21
1.2. <i>Définition et calcul des paramètres d'intérêt.....</i>	26
1.3. <i>Effet de la longueur d'onde et du contraste d'indice</i>	28
1.4. <i>Effet de la dispersion.....</i>	30
2. INFLUENCE DE L' ABSORPTION SUR LA FONCTION DE PHASE.....	33
2.1. <i>Effets sur la fonction de phase stationnaire</i>	33
2.2. <i>Effets sur les paramètres d'intérêt</i>	35
2.3. <i>Répercussion sur la diffusion temporelle.....</i>	38
3. MODELISATION D'UNE BANDE D'ABSORPTION DANS LA PARTICULE	39
3.1. <i>Généralités sur les bandes d'absorption.....</i>	39
3.2. <i>Modification temporelle du profil de diffusion.....</i>	41
3.3. <i>Ajustement du profil angulaire avec un k_{pa} effectif.....</i>	44
4. SYNTHESE DU CHAPITRE 1	46
CHAPITRE 2 : INFLUENCE DE L' ABSORPTION SUR LE COEFFICIENT D'EXTINCTION ET L'ALBEDO.....	47
1. EVOLUTION DES PARAMETRES RADIATIFS EN PRESENCE D' ABSORPTION DANS LES PARTICULES	47
1.1. <i>Définition des paramètres radiatifs.....</i>	47
1.2. <i>Impact de l'absorption des particules</i>	49
2. MODELISATION DE L' ABSORPTION DANS LE LIANT	53
2.1. <i>Formulation des sections efficaces apparentes</i>	53
2.2. <i>Effet de l'absorption.....</i>	55
2.3. <i>Comparaison des différents modèles.....</i>	57
3. VARIATION DE K_{EXT} ET Ω	59
3.1. <i>Influence de la concentration</i>	59
3.2. <i>Influence du rayon.....</i>	60
3.3. <i>Influence de l'absorption</i>	61
4. SYNTHESE DU CHAPITRE 2	64
CHAPITRE 3 : MODELISATION DE LA DIFFUSION TEMPORELLE DANS UN MILIEU DIFFUSANT ET ABSORBANT.....	65
1. PRESENTATION DU CODE DE MONTE-CARLO	65
1.1. <i>Principe du code de Monte-Carlo</i>	65
1.2. <i>Comparaison entre les Monte-Carlo complet et semi-analytique.....</i>	67
1.3. <i>Autres modifications du code</i>	71
2. EFFET DE L' ABSORPTION DES PARTICULES EN DIFFUSION AVANT.....	73
2.1. <i>Profil temporel de l'intensité diffusée</i>	73
2.2. <i>Variation du contraste d'indice complexe.....</i>	76
2.3. <i>Application au cas d'un jet d'alumine dans de l'air</i>	78
3. EFFET DE L' ABSORPTION DU LIANT	80
3.1. <i>Cas de la diffusion avant.....</i>	80

3.2. <i>Cas de la rétrodiffusion</i>	83
4. SYNTHESE DU CHAPITRE 3	89
CHAPITRE 4 : MESURE D'UNE SIGNATURE DE RETRODIFFUSION TEMPORELLE.....	91
1. PRESENTATION DU BANC DE MESURE DE DIFFUSION TEMPORELLE	91
2. MESURE DE RETRODIFFUSION	93
3. APPLICATION A UNE MESURE DE GRANULOMETRIE	98
4. SYNTHESE DU CHAPITRE 4	102
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	103
REFERENCES.....	109
ANNEXE A : CALCUL DES FONCTIONS DE PHASE.....	115
ANNEXE B : DEFINITION DU « CHIRP »	119
ANNEXE C : LISTE DES PUBLICATIONS.....	121

INDEX DES FIGURES

FIG. 1 : Schéma d'une diffusion temporelle avant	16
FIG. 2 : Schéma d'une rétrodiffusion temporelle	16
FIG. 3 : Fonction de phase temporelle non normalisée pour deux rayons.....	22
FIG. 4 : Fonction de phase temporelle normalisée pour deux rayons.....	23
FIG. 5 : Fonctions de phase pour deux rayons et rôle des modes de Debye.....	25
FIG. 6 : Poids des modes de Debye en fonction du rayon	26
FIG. 7 : Facteurs d'asymétrie en fonction du rayon.....	27
FIG. 8 : Temps moyens en fonction de l'angle de diffusion.....	28
FIG. 9 : Fonctions de phase pour plusieurs longueurs d'onde.....	29
FIG. 10 : Fonctions de phase pour plusieurs indices de particules	30
FIG. 11 : Fonction de phase temporelle normalisée avec dispersion.....	31
FIG. 12 : Ecart relatif de $\tau^l(\theta)$ avec et sans dispersion	32
FIG. 13 : Fonction de phase temporelle normalisée avec chirp.....	33
FIG. 14 : Fonctions de phase avec absorption dans la particule	34
FIG. 15 : Fonctions de phase avec absorption dans le liant	35
FIG. 16 : Rapport I_1/I_0 pour deux rayons en fonction de l'absorption.....	36
FIG. 17 : Facteurs d'asymétrie pour deux rayons en fonction de l'absorption.....	37
FIG. 18 : Répartition angulaire de l'énergie diffusée avec et sans absorption dans le liant	37
FIG. 19 : Temps moyen total en fonction de l'angle pour plusieurs absorptions	38
FIG. 20 : Zooms de FIG. 19	38
FIG. 21 : Bandes d'absorption et fonctions de phase associées.....	40
FIG. 22 : I_{glob} en fonction du temps pour plusieurs largeurs de bandes d'absorption.....	41
FIG. 23 : I_{glob} en fonction du temps pour plusieurs modes de Debye	43
FIG. 24 : Rôle du module et de l'argument dans I_{glob}	43
FIG. 25 : Fonctions de phase ajustées par des k_{pa} effectifs.....	45
FIG. 26 : Représentation de la sphère de contrôle	48
FIG. 27 : Sections efficaces en fonction de k_{pa} pour deux rayons	50
FIG. 28 : Evolution de q_{ext} en fonction du rayon pour plusieurs k_{pa}	51
FIG. 29 : Evolution de q_{ext} en fonction du rayon	51
FIG. 30 : Ecart relatif ε en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particule.....	52
FIG. 31 : Evolution de l'albédo en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particules.....	52
FIG. 32 : Sections efficaces et albédo en fonction de k_{pa}	53
FIG. 33 : Rapport entre σ_{abs} et σ_{ext} en fonction de k_{li} pour différents rayons de particule.	55
FIG. 34 : Evolution de σ_{sca} et σ_{abs} en fonction de k_{li}	56
FIG. 35 : Section efficace d'extinction et efficacité d'extinction en fonction de k_{li}	56
FIG. 36 : Coefficient d'extinction calculé avec les différentes méthodes pour deux rayons... 58	58
FIG. 37 : Albédo calculé avec les différentes méthodes pour deux rayons	59
FIG. 38 : Coefficient d'extinction et albédo en fonction de k_{li} et pour plusieurs N_p	60
FIG. 39 : Coefficient d'extinction et albédo en fonction de k_{li} et pour plusieurs rayons.....	60
FIG. 40 : Cartographie 2D de K_{ext} et de l'écart ε_l en fonction de k_{pa} et k_{li}	62
FIG. 41 : Cartographie 2D de l'albédo en fonction de k_{pa} et k_{li} pour deux rayons	63
FIG. 42 : Schéma du code de Monte-Carlo.....	67
FIG. 43 : Schéma de détection en diffusion avant	68
FIG. 44 : Comparaisons entre un code de Monte-Carlo complet et semi analytique	70

FIG. 45 : Présentation de la géométrie du système en rétrodiffusion	72
FIG. 46 : Intensité diffusée temporelle pour plusieurs k_{pa} et $R=5 \mu\text{m}$	73
FIG. 47 : Intensité diffusée temporelle pour plusieurs k_{pa} et $R=50 \mu\text{m}$	74
FIG. 48 : Intensité diffusée temporelle pour deux rayons : cas intermédiaires.....	75
FIG. 49 : Intensité diffusée temporelle pour deux rayons : variation de l'indice complexe....	76
FIG. 50 : Intensité diffusée temporelle : influence de l'indice réel des particules.....	77
FIG. 51 : Intensité diffusée temporelle : impact relatif de l'indice et de l'absorption.....	78
FIG. 52 : Intensité diffusée temporelle par une suspension d'alumine	80
FIG. 53 : Intensité diffusée temporelle pour deux k_{li} et une cuve de 1 cm	81
FIG. 54 : Intensité diffusée temporelle pour trois k_{li} et une cuve de 1 mm	82
FIG. 55 : Intensité diffusée temporelle pour trois k_{li} , une cuve de 1 mm et xv modéré	83
FIG. 56 : Intensité rétrodiffusée temporelle pour deux k_{li} : rôle de la polarisation.....	84
FIG. 57 : Intensité rétrodiffusée temporelle pour trois rayons : rôle de la fonction de phase..	85
FIG. 58 : Intensité rétrodiffusée temporelle : rôle de l'albédo et du rayon.....	86
FIG. 59 : Intensité rétrodiffusée temporelle en régime très absorbant.....	87
FIG. 60 : Intensité rétrodiffusée temporelle en régime faiblement absorbant : rôle du K_{ext}	87
FIG. 61 : Schéma de principe des installations du laboratoire femtoseconde.....	92
FIG. 62 : Principe de l'échantillonnage Kerr	92
FIG. 63 : Principe du mélange à 4 ondes	93
FIG. 64 : Profils expérimentaux temporels de $(I+Q)/2$ pour quatre longueurs d'onde.....	94
FIG. 65 : Profils temporels $(I+Q)/2$ simulés et expérimentaux pour quatre longueurs d'onde	96
FIG. 66 : Profils temporels $(I-Q)/2$ simulés et expérimentaux pour quatre longueurs d'onde	97
FIG. 67 : Profils temporels $(I+Q)/2$ et $(I-Q)/2$ simulés pour une longueur d'onde.....	99
FIG. 68 : Profils temporels $(I-Q)/2$ simulés pour trois longueurs d'onde	100
FIG. 69 : Coefficients de transmission et de réflexion.....	116

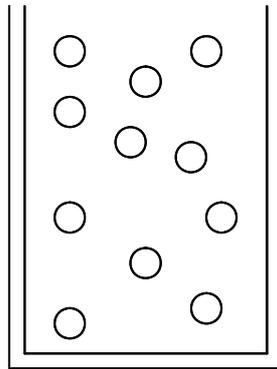
INDEX DES TABLEAUX

TAB. 1 : Exemples de milieu et de largeur de raie associée	40
TAB. 2 : Valeurs minimales de ε ainsi que les k_{pa} équivalents avec $k_{pa}=10^{-3}$	44
TAB. 3 : Valeurs minimales de ε ainsi que les k_{pa} équivalents avec $k_{pa}=10^{-1}$	44
TAB. 4 : Récapitulatif des paramètres de simulation pour des particules absorbantes	76
TAB. 5 : Evolution du temps de vol des photons pour $R=5$ puis $50 \mu\text{m}$	77
TAB. 6 : Valeur du temps de vol des photons pour plusieurs indices de particule.....	78
TAB. 7 : Valeurs d'indice pour plusieurs modèles et températures.....	79
TAB. 8 : Modification des paramètres d'intérêt de la fonction de phase.....	85
TAB. 9 : Récapitulatif des paramètres de simulation en rétrodiffusion.....	88
TAB. 10 : Temps de vol moyen pour $(I+Q)/2$ et $(I-Q)/2$	95
TAB. 11 : Récapitulatif des paramètres de simulation (partie expérimentale)	97
TAB. 12 : Récapitulatif des paramètres de simulation (étude de faisabilité).....	98
TAB. 13 : Poids relatif de l'énergie rétrodiffusée pour plusieurs rayons de particule.....	99
TAB. 14 : Récapitulatif des paramètres adaptés pour chaque rayon de particules	100

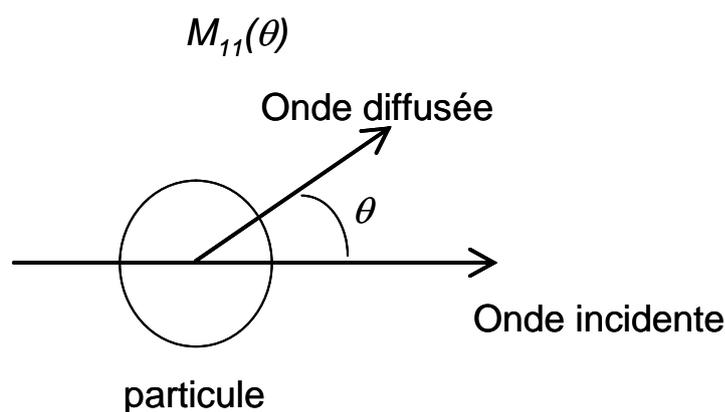
NOTATIONS ET DEFINITIONS

1/ Définitions

Un milieu d'étude est généralement représenté par une zone limitée de l'espace où des particules d'indice complexe ($n_{pa}+ik_{pa}$) et un liant ($n_{li}+ik_{li}$) coexistent. Expérimentalement, il peut s'agir d'une cuve contenant un liquide avec des particules en suspension. Si l'indice de réfraction entre la particule et le liant environnant n'est pas le même ($n_{pa}\neq n_{li}$), une onde incidente pourra être localement réfractée ou réfléchiée. Nous parlons alors de la diffusion de la lumière par une particule.



$M_{11}(t, \theta)$ est la fonction de phase temporelle et angulaire. Il s'agit du premier terme de la matrice de Mueller M normalisé sur tous les angles de diffusion et présenté dans l'annexe A. Nous pouvons en déduire la fonction de phase angulaire $M_{11}(\theta)$ en intégrant temporellement $M_{11}(t, \theta)$ ainsi que le temps passé à l'intérieur de la particule $\tau(\theta)$. $M_{11}(\theta)$ représente la répartition angulaire de l'énergie diffusée entre les directions de diffusion et incidente.



L'absorption est un phénomène physique où l'énergie du photon est prise par une particule ($k_{pa}\neq 0$) ou par le liant ($k_{li}\neq 0$). L'extinction est la somme des phénomènes de diffusion et d'absorption. Le coefficient d'extinction K_{ext} définit la distance statistique parcourue par le photon avant son interaction avec le milieu (diffusion ou absorption). L'albédo Ω est le rapport entre la diffusion et l'extinction. Le coefficient d'extinction,

l'albédo, la fonction de phase et le temps passé à l'intérieur des particules sont les paramètres d'entrée de notre code de simulation. Ce code nous permet d'obtenir des profils temporels diffusé vers l'avant ou rétrodiffusé. Un profil temporel est la répartition temporelle de l'intensité arrivant sur le détecteur. En diffusion avant, le retard 0 correspond au retard des photons n'ont éteint. En rétrodiffusion, le retard 0 correspond à la réflexion du faisceau incident à l'interface eau/paroi de la cuve.

2/ Notations

a_n, b_n	coefficients de diffusion externe
b	indice correspondant à une bande d'absorption
c	célérité
cst	indice correspondant à une absorption constante
D_1 et D_2	diamètre des diaphragmes
D_{int}	distance avant interaction
$dp(\theta)$	densité de probabilité
$E(\omega)$	module de l'impulsion incidente
$ E_0 ^2$	énergie incidente
\vec{E}_1 et \vec{E}_2	champs électriques associés à la voie 1 et 2 respectivement
e_d	vecteur diffusé
\vec{E}_i	vecteur du champ électrique incident
e_i	vecteur incident
\vec{E}_s	vecteur du champ électrique diffusé
e_z	vecteur de propagation du faisceau laser
e_o	épaisseur optique
$FWHM$	Anglicisme Full Width at Half Maximum, largeur à mi-hauteur
$FDTD$	Anglicisme Finite Difference Time Domain
g	facteur d'asymétrie
g_0	facteur d'asymétrie du mode 0
g_1	facteur d'asymétrie du mode 1
g_t	facteur d'asymétrie total
\vec{H}_i	vecteur du champ magnétique incident
\vec{H}_s	vecteur du champ magnétique diffusé
I	intensité
I_i	intensité incidente
$I_{glob}(t)$	intensité totale diffusée intégrée dans toutes les directions de l'espace
I_p	poids du mode p de Debye
$(I+Q)/2$	intensité mesurée en configuration polarisation parallèle
$(I-Q)/2$	intensité mesurée en configuration polarisation croisée
j_n, y_n	fonctions de Bessel sphériques
k	vecteur d'onde
K	Kelvin, unité de température
K_{ext}	coefficient d'extinction
k_{li}	partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe du liant
k_{pa}	partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe de la particule
l	position du diaphragme D_2 par rapport à l'entrée de la cuve
L_{cuve}	longueur de la cuve
m	contraste d'indice

M	matrice de Mueller
$M_{11}(t, \theta)$	fonction de phase temporelle et angulaire, premier terme de la matrice de Mueller
$M_{11}(\theta)$	fonction de phase angulaire
$M_{11}^{\max}(\theta)$	valeur maximale de la fonction de phase temporelle pour chaque angle
$M_{11}^P(\theta)$	fonction de phase du mode p de Debye
n	indice de l'itération
n_{li}	partie réelle de l'indice de réfraction complexe du liant
N_p	nombre de particule par unité de volume
n_{pa}	partie réelle de l'indice de réfraction complexe de la particule
p	indice du mode de Debye
PSD	Anglicisme Particle Size Distribution, distribution en taille des particules
$P1$ et $P2$	polariseurs croisés
q_{abs}	efficacité d'absorption
q_{ext}	efficacité d'extinction
q_{ext}^0	efficacité d'extinction du mode 0
q_{ext}^1	efficacité d'extinction du mode 1
q_{sca}	efficacité de diffusion
R	rayon
$R_{n,a}^{li}$	coefficient de réflexion à l'interface entre le liant et la particule pour a_n
$R_{n,b}^{li}$	coefficient de réflexion à l'interface entre le liant et la particule pour b_n
$R_{n,a}^{pa}$	coefficient de réflexion à l'interface entre la particule et le liant pour a_n
$R_{n,b}^{pa}$	coefficient de réflexion à l'interface entre la particule et le liant pour b_n
$random$	nombre aléatoire compris entre 0 et 1
(r_i, z_i)	coordonnées de chaque évènement de diffusion
S	matrice des amplitudes de diffusion
S_1, S_2, S_3, S_4	composantes de la matrice des amplitudes de diffusion
$s_{1,2}$	module de $S_{1,2}$
t	temps
T	température
$T_{n,a}^{li}$	coefficient de transmission à l'interface entre le liant et la particule pour a_n
$T_{n,b}^{li}$	coefficient de transmission à l'interface entre le liant et la particule pour b_n
$T_{n,a}^{pa}$	coefficient de transmission à l'interface entre la particule et le liant pour a_n
$T_{n,b}^{pa}$	coefficient de transmission à l'interface entre la particule et le liant pour b_n
$temp$	tirage aléatoire
W_{abs}	flux sortant du vecteur de Poynting total externe
W_{ext}	flux éteint global
W_i	flux absorbé dans un volume de liant égal à celui de la particule, en son absence
W_{sca}	flux sortant du vecteur de Poynting diffusé
x	paramètre de taille
(X, Y)	coordonnées du profil transversal

xv	fraction volumique
Z	axe de propagation
Δt	séparation temporelle entre les modes 0 et 1 de Debye
$\Delta\omega$	largeur spectrale de l'impulsion femteconde
ε	écart
θ	angle de diffusion
λ	longueur d'onde
μ	perméabilité du liant
ξ_n, ψ_n	fonctions de Ricatti-Bessel
Σ	sphère de contrôle
σ	section efficace
σ_{abs}	section efficace d'absorption
σ_{ext}	section efficace d'extinction
σ_i	section efficace du flux W_i
σ_{sca}	section efficace de diffusion totale
σ_{sca}^0	section efficace de diffusion du mode 0
σ_{sca}^1	section efficace de diffusion du mode 1
τ_0	largeur à mi-hauteur de l'impulsion initiale
τ	retard moyen
τ_n^1, τ_n^2	fonctions angulaires
$\tau(\theta)$	temps passé à l'intérieur de la particule
$\tau^p(\theta)$	temps passé à l'intérieur de la particule pour le mode p de Debye
$\phi(\omega)$	argument de l'impulsion incidente
ϕ	angle
$\phi_{S_{1,2}}(\omega)$	argument de $S_{1,2}$
ϕ_2	<i>chirp</i>
χ	susceptibilité non linéaire du troisième ordre
Ω	albédo
ω	fréquence spectrale
ω_z	waist

INTRODUCTION

1/ Contexte général

Les systèmes lasers femtosecondes amplifiés sont aujourd'hui largement utilisés de par le monde. Plusieurs compagnies commerciales proposent des systèmes clés en main. L'utilisation de tels lasers va de la recherche fondamentale académique (mesure de cinétique très rapide dans des systèmes biologiques [1], chimiques [2], physiques [3] ou imagerie de tissus biologiques [4]), en passant par le domaine médical (chirurgie laser, ...) jusqu'à des applications plus industrielles telles que l'usinage laser [5] et l'imagerie d'injecteur [6]. L'ONERA a décidé d'investir dans cette technologie en développant un laboratoire femtoseconde basé sur une chaîne kHz amplifiée avec des systèmes de conversion de fréquence et des détecteurs adaptés. La motivation de cet investissement était de se doter d'un banc de mesure permettant d'explorer de nouveaux concepts de mesure ou de diagnostic optique de milieux diffusants complexes (absorbant, diffusant ou fluorescent). Cette installation peut aujourd'hui réaliser des mesures et des diagnostics optiques sur une gamme de longueur d'onde allant de 0.2 à 20 μm . L'objectif est d'illuminer un échantillon à caractériser à l'aide d'une impulsion laser femtoseconde et de mesurer une signature temporelle et/ou spectrale de la lumière interagissant avec ce milieu. De cette information, nous tentons de remonter à des paramètres microphysiques du milieu (composition, concentration et tailles des éléments diffusants...). Les applications potentielles ciblées sont par exemple la caractérisation de la granulométrie des milieux diffusants (jets de propulseur, peintures, revêtements ou tissus biologiques) ou l'identification de molécules chimiques. L'apport spécifique des lasers femtosecondes est l'accordabilité ainsi que la très forte puissance crête permettant de pénétrer en profondeur dans les milieux. La résolution temporelle d'une porte optique Kerr [7] permet de plus d'échantillonner temporellement la lumière renvoyée par l'échantillon avec des résolutions très courtes (100 fs typique), correspondant à des échelles de distance très courtes de l'ordre de la dizaine de microns.

Dans ce contexte, une première thèse exploratoire [8] (expérimentale et numérique) a permis de démontrer l'apport des sources femtosecondes pour le diagnostic des milieux diffusants très épais. Ce travail s'est attaché à caractériser la diffusion temporelle dans des milieux modèles constitués de petites particules de silice ou de latex en suspension dans de l'eau (FIG. 1). Cette étude a démontré qu'il était possible d'utiliser cette technologie afin de séparer temporellement la lumière transmise (balistique) de la lumière diffusée avant [9][10]. Les photons balistiques n'interagissant pas avec le milieu, ils se propagent en ligne droite et arrivent en premier. La caractérisation de l'intensité balistique permet de réaliser des mesures d'extinction spectrales dans des milieux diffusant très épais. L'inversion des spectres obtenus [11] a permis de déterminer des granulométries. La caractérisation temporelle de la composante diffusée est également possible sur notre banc [12]. Cette mesure a permis de valider les outils numériques de simulation de diffusion temporelle développés à l'époque et basés sur une approche de type Monte-Carlo. L'analyse spécifique de cette diffusion temporelle vers l'avant a été étudiée par d'autres équipes à l'échelle femtoseconde [13] ou des temps plus longs avec une résolution polarimétrique [14]. Ces études avaient aussi pour but de valider expérimentalement une démarche de simulation numérique de diffusion temporelle. D'autres études utilisent la séparation temporelle entre les photons balistiques et diffusés pour affiner des techniques d'imageries comme par exemple l'imagerie balistique [15][16]. Aussi

bien d'un point de vue expérimental que théorique, cette thèse exploratoire s'était limitée à la diffusion avant et aux milieux non absorbants. Un des besoins formulés à l'issue de cette thèse était la modélisation de milieux plus complexes, à savoir absorbant, dense, fluorescent et pour plusieurs directions de détection et notamment la rétrodiffusion. Nous reportons (FIG. 2) le synoptique d'une mesure en rétrodiffusion.

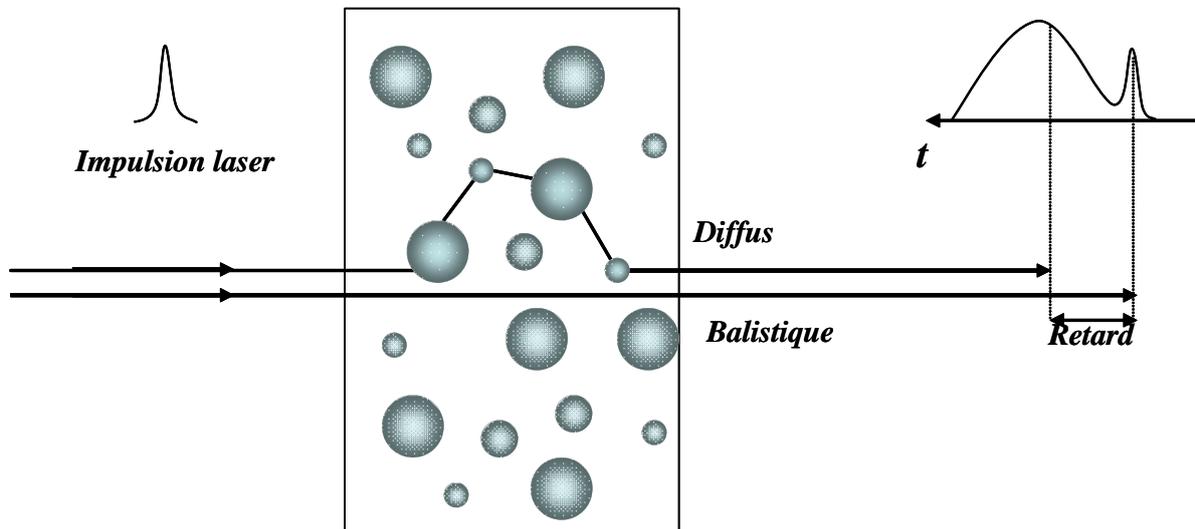


FIG. 1 : Schéma d'une diffusion temporelle avant par une suspension de particules. La trajectoire des photons balistiques est la plus courte, correspondant à des retards plus faibles.

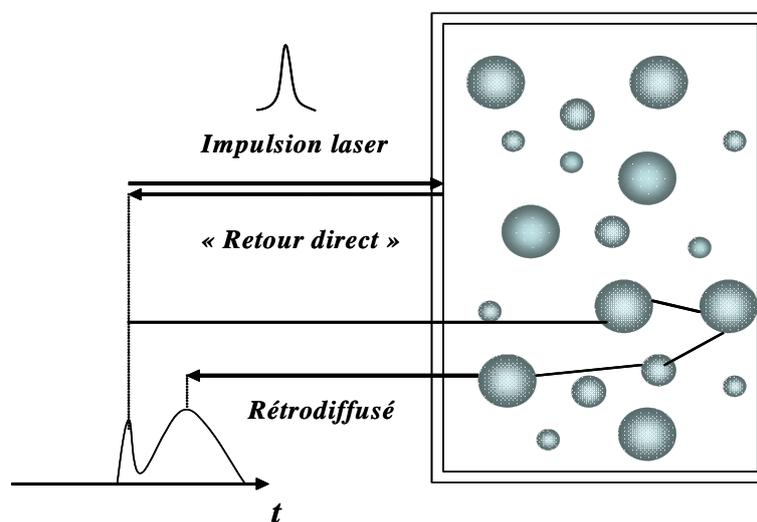


FIG. 2 : Schéma d'une rétrodiffusion temporelle. Les photons diffusés par le volume du milieu diffusant apparaissent pour des retards plus importants que celui de l'interface du milieu.

La compréhension des mécanismes de diffusion (et de fluorescence) dans un milieu absorbant ainsi que des impacts possibles sur des signatures temporelles présente des applications très nombreuses. Nous avons trouvé dans la littérature un grand nombre d'études sur ce sujet mais principalement à des échelles de temps allant d'une centaine de picosecondes à la nanoseconde. Nous pouvons citer la modélisation de signaux rétrodiffusés de nuages absorbant ou fluorescent à l'aide d'un LIDAR [17–19] afin de détecter la présence de bio-contaminants. Citons également l'imagerie et la spectroscopie dans des milieux biologiques [20]. La mesure de temps de vol dans divers systèmes, absorbants et diffusants, est souvent utilisée pour la détermination de paramètres microphysiques (constante d'absorption ou distribution en taille) [21]. La plupart de ces études sont réalisées à des échelles de temps très supérieures à la femtoseconde et avec des sources moins intenses que les chaînes laser amplifiées. La très forte puissance crête des sources femtosecondes peut permettre de sonder des milieux plus fortement absorbants ou diffusants. Les couplages diffusion/absorption restent très méconnus à l'échelle femtoseconde et/ou pour de fortes absorptions. Leur étude demeure donc d'intérêt. En effet, les échelles de temps sub-picoseconde sont judicieuses car elles permettent de caractériser des phénomènes qui induisent des différences de parcours sub-millimétrique des photons. C'est la distance de parcours typique obtenue pour de faibles pénétrations dans des milieux optiquement très denses et très absorbants (peintures, injecteurs, tissus biologiques, ...).

2/ Problématique et objectifs scientifiques

L'objectif scientifique principal de ce travail de thèse est de prédire l'interaction d'un photon avec un milieu absorbant et diffusant à l'échelle femtoseconde. Une étude fine de cette interaction (obtention d'une signature temporelle de diffusion) pourrait alors renseigner quant à la taille des particules, aux coefficients d'absorption du liant et des particules ou à d'autres paramètres microphysiques du milieu. La problématique est donc de modéliser la diffusion temporelle d'un milieu fortement absorbant à l'échelle femtoseconde que ce soit en diffusion avant ou en rétrodiffusion. Expérimentalement, ces deux directions sont en effet privilégiées pour sonder les milieux diffusants. Cette modélisation est délicate car l'absorption peut avoir des impacts sur l'ensemble de la chaîne numérique, des paramètres radiatifs jusqu'à l'obtention d'une signature temporelle de diffusion. Intuitivement, l'effet principal des processus d'absorption serait d'accélérer le temps de vol des photons. En effet, nous pouvons supposer que plus un photon reste longtemps dans le milieu, plus il a de chance d'être absorbé. Les processus d'absorption auraient donc la propriété de « tuer » les trajectoires les plus longues, qui correspondent aux retards les plus conséquents. Cette tendance a déjà été observée à l'échelle nanoseconde [22]. La difficulté ici est de prédire des signatures pour des échelles de temps plus courtes, correspondant à des changements plus petits de trajectoire. Ceci nécessite donc de décrire de manière très locale les processus de diffusion en régime femtoseconde en présence d'absorption.

Les phénomènes mis en jeu lors du parcours du photon dans le milieu sont : la diffusion (gouvernée par la différence d'indice de réfraction entre la particule et son milieu environnant), l'absorption des particules et/ou du milieu environnant (liée aux parties imaginaires des indices) et l'extinction (somme de l'absorption et de la diffusion). Les paramètres radiatifs reliant et décrivant ces phénomènes sont au nombre de trois. **Le coefficient d'extinction** définit la distance statistique parcourue par le photon avant une interaction avec le milieu (diffusion ou absorption). **L'albédo** est le rapport entre les énergies diffusée et éteinte. **La fonction de phase temporelle et angulaire** représente la répartition de l'énergie diffusée par une particule unique, pour différents retards et angles de diffusion. L'ensemble de ces trois paramètres suffit à implémenter la chaîne de simulation de la diffusion temporelle. Les études traitant le calcul numérique de fonction de phase sont

nombreuses. D'un côté, le formalisme de fonction de phase temporelle à l'échelle femtoseconde a été obtenu lors d'une précédente thèse [8], confirmant les résultats obtenus par d'autres équipes [13]. En revanche, ces différentes études n'ont pas étudié l'impact de l'absorption. D'un autre côté, nous retrouvons dans la littérature plusieurs études décrivant l'impact de l'absorption sur des fonctions de phase que ce soit dans la particule et/ou dans le milieu environnant [23]. Mais ici, seules les répercussions angulaires, et non temporelles, ont été abordées. Il manque donc à ce jour une étude complète des impacts de l'absorption, tant d'un point de vue angulaire que temporel. Nous trouvons par ailleurs un grand nombre d'articles théoriques décrivant des méthodes de calcul du coefficient d'extinction et de l'albédo. Dans le cadre de l'absorption des particules, les calculs sont assez directs car ils sont basés sur la théorie de Mie [24]. Le calcul de ces mêmes paramètres dans le cas d'un milieu environnant absorbant soulève de nombreuses interrogations : non conservation des flux, impossibilité de définir de sections efficaces, non applicabilité de l'équation de transfert radiatif, etc. De nombreux modèles ont été proposés dans la littérature [25–33], mais aucune validation expérimentale n'existe à ce jour.

3/ Démarche et plan du manuscrit

La première étape de cette thèse est de développer une chaîne de simulation complète afin d'appréhender tous les impacts de l'absorption, aussi bien au niveau microscopique (modification des paramètres radiatifs), qu'au niveau macroscopique (modification globale de la signature temporelle). Les approches de type Monte-Carlo sont majoritairement utilisées pour simuler la diffusion multiple stationnaire [34–37] et parfois temporelle [10][14]. Les temps de calcul peuvent être très longs et une approche RMC (Reverse Monte Carlo) est parfois utilisée [38]. Cependant, l'utilisation de cette approche n'est pas aisée pour des sources collimatées [39]. Il existe également des méthodes de résolution de l'équation transfert radiatif temporelle plus directe et nécessitant des temps de calcul plus courts que l'approche de Monte-Carlo [40–43]. Cependant, l'approche de type Monte-Carlo permet de reproduire avec souplesse les géométries de détection expérimentales. Pour l'étude de la fonction de phase temporelle, il s'agit d'adapter les modèles existants au cas de milieux absorbants et de quantifier l'impact de l'absorption tant au niveau temporel qu'angulaire. Pour le coefficient d'extinction et l'albédo, l'étude est plus complexe car elle se basera sur une étude bibliographique et sur un choix parmi un ensemble de modèles existants. L'ensemble de ces paramètres radiatifs est ensuite rentré dans un code de simulation de Monte-Carlo afin de simuler une signature temporelle. La seconde étape est d'utiliser le laboratoire femtoseconde (développé à l'ONERA en parallèle de cette thèse) afin de valider notre chaîne de modélisation dans le cadre d'un milieu absorbant. Nous souhaitons pouvoir choisir et valider un modèle de calcul du coefficient d'extinction et de l'albédo parmi ceux existant dans la littérature. Nous souhaitons de plus évaluer dans quelques cas concrets la possibilité de déterminer des paramètres microphysiques (rayon, concentration, indice de particule ou de milieu environnant complexe) à partir d'une signature temporelle.

Le plan du manuscrit se décompose en quatre parties distinctes. Le premier chapitre est consacré à l'étude des fonctions de phase temporelles en présence d'absorption. Nous introduisons les modes de Debye afin de comprendre une séparation temporelle observée entre plusieurs lobes de diffusion. Nous montrons que le mode 1, correspondant à une propagation des champs électromagnétiques à l'intérieur de la particule est globalement retardé par rapport au mode 0 qui se propage lui plus en surface. Nous détaillons l'influence de plusieurs paramètres (indice, longueur d'onde, rayon, dispersion). Nous étudions particulièrement comment l'absorption dans la particule ou le liant modifie le poids relatif des deux modes de Debye prédominants (modes 0 et 1). Le cas d'une bande d'absorption est aussi abordé.

Le deuxième chapitre décrit le calcul du coefficient d'extinction et de l'albédo. Le cas de l'absorption de la particule est direct car la théorie de Mie reste valide. Nous présentons et comparons les différents modèles dans le cas de l'absorption du liant. Après avoir choisi un modèle, nous étudions l'impact du rayon, de la concentration et des absorptions sur ces deux paramètres radiatifs.

Le troisième chapitre a pour objectif de modéliser des signatures temporelles pour un milieu absorbant et diffusant à partir des paramètres précédents. Après une présentation de la chaîne de modélisation, nous détaillons les résultats obtenus pour la diffusion avant en présence de particules absorbantes. Le cas plus applicatif d'une suspension de particules d'alumine absorbantes dans une chaîne de combustion (chambre de combustion) est traité. Nous nous intéressons finalement à l'impact de l'absorption du milieu environnant sur les signatures temporelles obtenues en diffusion avant et en rétrodiffusion.

Le quatrième chapitre présente tout d'abord le banc de mesure femtoseconde. Dans le cadre d'un projet de recherche interne à l'ONERA, des profils d'intensité rétrodiffusée ont été mesurés sur un milieu modèle pour plusieurs longueurs d'onde dans l'infrarouge. Il s'agit d'une suspension de particules de silice dans de l'eau. Ces mesures nous ont permis de disposer de données pour valider notre démarche numérique, cœur de ce travail de thèse. Nous évaluons pour finir l'applicabilité de cette méthode à une détermination de granulométrie.

CHAPITRE 1 : ETUDE DE LA FONCTION DE PHASE TEMPORELLE

La fonction de phase temporelle détermine la répartition angulaire de l'énergie lumineuse diffusée par la particule ainsi que le temps passé par un photon à l'intérieur de celle-ci. Une précédente thèse [8] effectuée au DOTA a permis de calculer la fonction de phase temporelle d'une particule en suspension dans un liant. Le liant et la particule étaient supposés non absorbants. Les résultats numériques avaient été comparés à plusieurs autres études existantes [13][44][45].

L'objectif de ce chapitre est d'étendre ce formalisme au cas d'un milieu absorbant afin d'étudier en détail l'impact de l'absorption du liant et/ou de la particule sur la répartition angulaire et temporelle de l'énergie diffusée. Afin de quantifier l'impact de l'absorption, nous calculons des paramètres d'intérêt tel que le facteur d'asymétrie, le poids des modes de Debye et le temps moyen passé à l'intérieur de la particule. La première partie de ce chapitre est consacrée à la description du formalisme et à l'apport de ce travail de thèse pour une particule non absorbante. Les influences respectives de la longueur d'onde, du contraste d'indice et de la dispersion sont étudiées. La deuxième partie de ce chapitre traite des effets de l'absorption de la particule et du liant. Dans la dernière partie, le cas particulier d'une particule avec une bande d'absorption de largeur variable est étudié. Cette fonction de phase ainsi caractérisée, associée à l'albédo et au coefficient d'extinction (Chapitre 2), constituent l'ensemble des paramètres d'entrée nécessaires à la modélisation du profil temporel de l'intensité diffusée par un milieu absorbant et diffusant (Chapitre 3).

1. DEFINITION DE LA FONCTION DE PHASE SANS ABSORPTION

1.1. Présentation du formalisme

Considérons un milieu d'étude composé d'une particule isolée dans un liant. La particule est homogène, sphérique de rayon R et d'indice de réfraction $n_{pa} + ik_{pa}$. Le liant lui aussi est homogène et d'indice $n_{li} + ik_{li}$. Dans cette partie, nous supposons que le liant comme la particule ont un indice de réfraction réel ($k_{pa} = k_{li} = 0$). De plus, considérons une onde plane et monochromatique arrivant sur la particule. La fonction de phase angulaire $M_{11}(\theta)$ correspond à la répartition angulaire de l'intensité diffusée par une particule. Il s'agit du premier terme de la matrice de Muller M . A l'aide de la théorie de Mie [24] décrite dans l'annexe A, $M_{11}(\theta)$ est directement relié à la matrice des amplitudes de diffusion S par la relation :

$$M_{11} \propto (|S_1|^2 + |S_2|^2) \quad (1.1)$$

La théorie de Mie se limite au cas où l'onde incidente est infinie dans le temps et l'espace. Or, dans notre cas, nous souhaitons étudier l'interaction d'un milieu avec des impulsions gaussiennes ultra brèves. Nous n'étudions pas ici l'influence de la répartition spatiale transverse de l'énergie lumineuse incidente, les faisceaux étant supposés non focalisés et de *waist* très supérieur au diamètre de la particule considérée. La détermination d'une fonction de phase temporelle et angulaire $M_{11}(t, \theta)$ devient nécessaire quand le rayon de la particule n'est pas négligeable devant la dimension longitudinale de l'impulsion laser, *i.e.*

la durée de l'impulsion multipliée par c . Le calcul de la fonction de phase temporelle a fait l'objet de précédents travaux [8][46] dont nous rappelons ici le formalisme général. Nous décrivons l'impulsion dans le domaine spectral comme une superposition d'ondes monochromatiques et nous calculons une fonction de phase $M_{11}(\omega, \theta)$ pour chaque fréquence du spectre à l'aide de la théorie de Mie. $M_{11}(t, \theta)$ est obtenu en calculant la **transformée de Fourier** de $M_{11}(\omega, \theta)$. Nous représentons la fonction de phase temporelle non normalisée (FIG. 3) en fonction du retard t et de l'angle de diffusion θ entre les directions incidente et diffusée (0° correspond à la direction avant de diffusion). Par convention, le retard correspond à la différence de temps entre le faisceau diffusé et celui de référence passant par le centre d'une particule virtuelle remplacée par le liant. Pour l'ensemble de ce chapitre, le calcul est effectué pour une particule de silice ($n_{pa}=1.45$) placée dans de l'eau ($n_l=1.33$). La longueur d'onde centrale est de 800 nm et l'impulsion de 100 fs est limitée par transformée de Fourier.

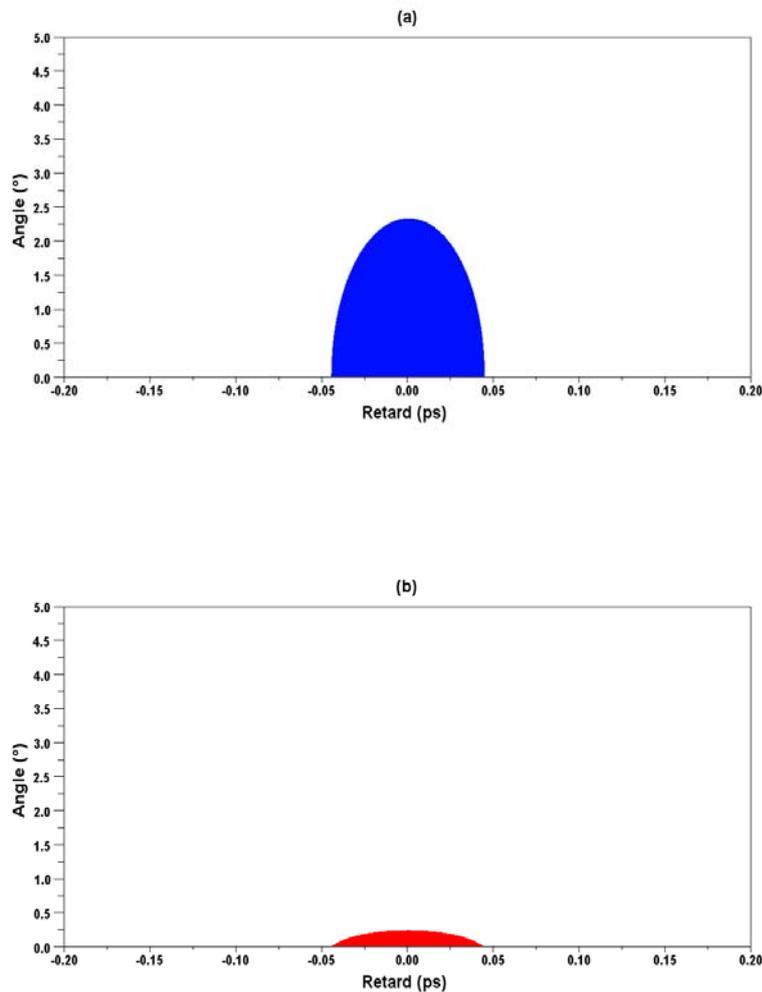


FIG. 3 : Fonction de phase temporelle non normalisée pour une particule de silice en suspension dans de l'eau pour (a) $R=5\ \mu\text{m}$ en bleu et (b) $R=50\ \mu\text{m}$ en rouge.

Pour cette figure et toutes les cartographies 2D, nous avons fait le choix de représenter en couleur uniforme tous les points ayant une intensité supérieure à 0.33 de la valeur

maximale de la fonction de phase. Nous observons alors que la quasi-totalité de l'intensité diffusée est concentrée pour des angles et des retards très faibles. Cette observation, du moins d'un point de vue angulaire est d'autant plus vraie pour le cas d'une grosse particule. Cela confirme le cas stationnaire où les grosses particules sont connues pour avoir un lobe de diffusion plus piqué vers l'avant. Afin de visualiser la répartition de l'énergie pour des retards et des angles plus importants, nous avons normalisé la fonction de phase de la manière suivante :

$$M_{11}(t, \theta) = M_{11}(t, \theta) / M_{11}^{\max}(\theta)$$

où M_{11}^{\max} est la valeur maximale de la fonction de phase temporelle pour chaque angle.

Nous représentons la fonction de phase temporelle normalisée (FIG. 4) dans les mêmes conditions que précédemment.

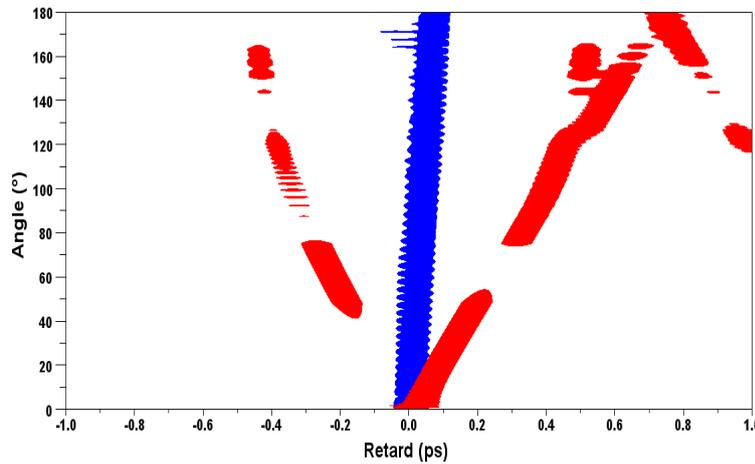


FIG. 4 : Fonction de phase temporelle normalisée pour une particule de silice en suspension dans de l'eau pour $R=5 \mu\text{m}$ en bleu et pour $R=50 \mu\text{m}$ en rouge.

Pour $R=5 \mu\text{m}$, la diffusion se fait avec quasiment le même retard quel que soit l'angle de diffusion. Il s'agit du rayon limite pour lequel nous commençons à observer des effets temporels sur la fonction de phase. Pour $R=50 \mu\text{m}$, la taille longitudinale de l'impulsion incidente (quelque dizaine de microns) est inférieure au rayon de la particule. Nous observons alors une séparation temporelle entre plusieurs modes de diffusion. Afin de comprendre cette séparation temporelle, nous utilisons le formalisme des modes de Debye [47]. Ce formalisme permet de décomposer la fonction de phase. Nous décomposons les coefficients de diffusion externe a_n et b_n [48][49] de la manière suivante :

$$\begin{pmatrix} a_n \\ b_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sum_{p=0}^{\infty} a_n^{(p)} \\ \sum_{p=0}^{\infty} b_n^{(p)} \end{pmatrix}$$

où nous faisons apparaître les modes p de Debye successifs. Une expression détaillée de cette décomposition est précisée en annexe A. Cette expression des coefficients a_n et b_n est injectée dans le calcul de la fonction de phase temporelle et nous déterminons ainsi les

fonctions de phase partielles M_{11}^p pour chacun des modes p de Debye. Nous représentons les fonctions de phase temporelles (FIG. 5 (a) et (c)) et stationnaires (FIG. 5 (b) et (d)) obtenues pour plusieurs modes de Debye et des particules de 5 et 50 μm . Nous n'observons pas de séparation temporelle des modes de diffusion pour $R=5 \mu m$. Pour $R=50 \mu m$, nous retrouvons les principaux modes de diffusion observés précédemment (FIG. 4) et nous en donnons une schématisation simplifiée basée sur l'optique géométrique (FIG. 5 (e)). Le mode 0 de Debye est principalement dirigé vers l'avant avec un retard nul. C'est un mode surfacique se propageant le long de l'interface liant/particule. Une toute petite part de l'énergie est visible pour des angles plus grands et des retards négatifs. Cela correspond à la lumière réfléchi à la première interface liant/particule. Le mode 1 correspond principalement à la transmission de l'énergie à travers la particule. Il est approximativement retardé de $\Delta t (= (n_{pa} - n_{li}) * 2R/c)$ par rapport au mode 0. Pour $R=50 \mu m$ et les indices considérés, nous calculons un Δt de 40 fs. Cette valeur est très proche des coordonnées (41.6 fs, 0°) du pic du mode 1 directement lues sur FIG. 5 (c). Les modes 2 et 3 subissent une ou deux réflexions internes (« arc en ciel primaire et secondaire » respectivement [50]). Les modes $p > 3$ subissent $p-1$ réflexions internes. Ces modes correspondent aux pics satellites observés sur la fonction de phase temporelle totale (en jaune sur FIG. 5 (c)). Contrairement aux cartographies 2D temporelles, les fonctions de phase stationnaires présentent des comportements similaires pour les deux rayons choisis (FIG. 5 (b) et (d)). Nous remarquons que les cinq premiers modes reproduisent la fonction de phase totale (FIG. 5 (f)).

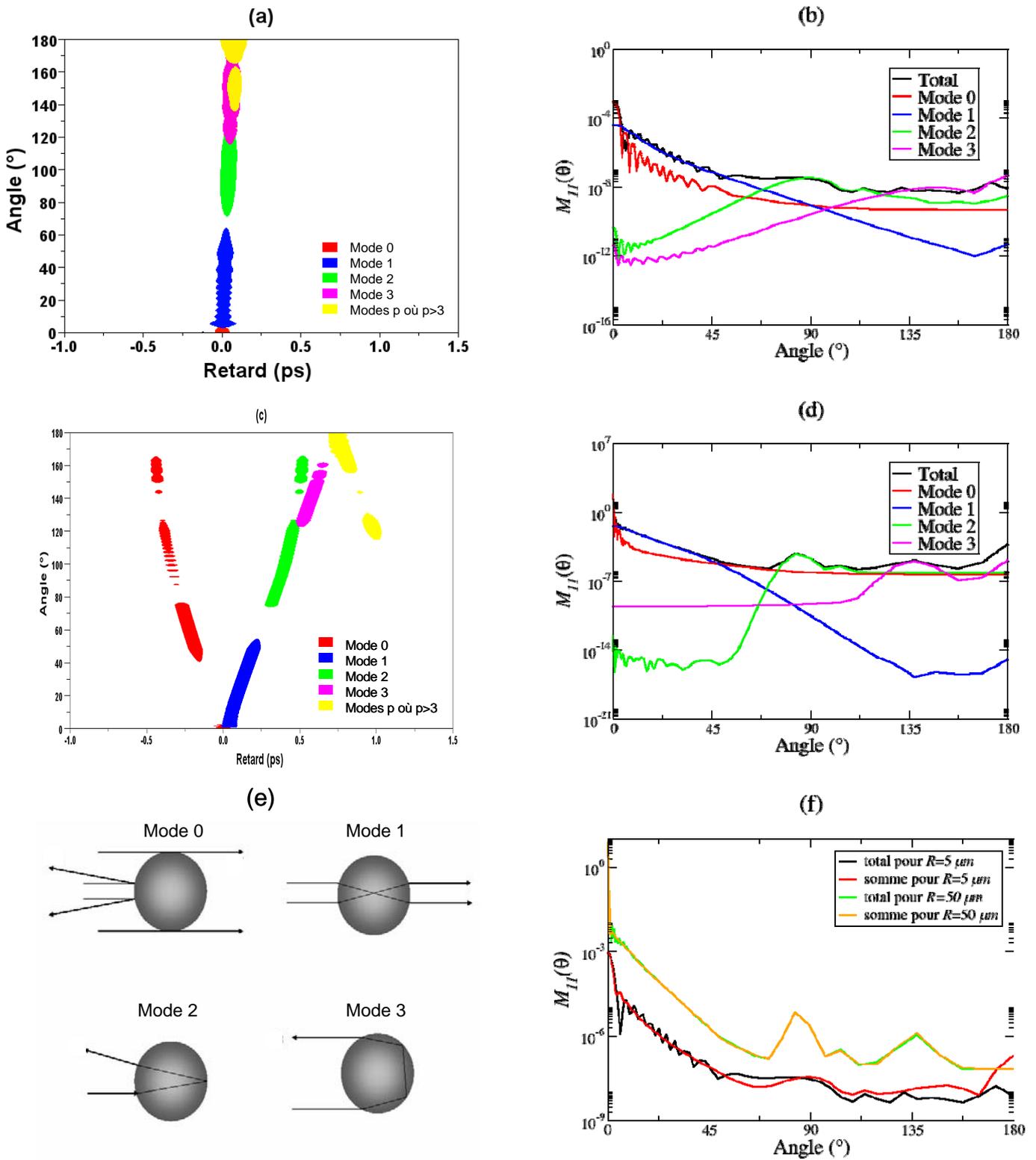


FIG. 5 : Fonction de phase (a) temporelle normalisée et (b) intégrée sur le temps pour $R=5 \mu\text{m}$. Fonction de phase (c) temporelle normalisée et (d) intégrée sur le temps pour $R=50 \mu\text{m}$. (e) Représentation géométrique des quatre modes de Debye. (f) Comparaison de la fonction de phase totale et de la somme des 5 premiers modes.

1.2. Définition et calcul des paramètres d'intérêt

La visualisation de la fonction de phase utilisée jusqu'à présent (cartographie 2D de $M_{II}(t, \theta)$) n'est pas très aisée car nous devons la normaliser si nous souhaitons observer les modes de diffusion. Mais, ce faisant, nous perdons la réalité de l'énergie relative diffusée par chaque mode. Afin de résumer l'information complexe contenue dans cette cartographie à deux dimensions, nous avons choisi d'introduire trois paramètres d'intérêt permettant de quantifier les effets de l'absorption et de la dispersion :

- l'asymétrie angulaire de l'énergie diffusée de manière non temporelle g ,
- le temps moyen passé par le photon à l'intérieur de la particule pour chaque angle $\tau(\theta)$,
- le poids relatif de l'énergie diffusée pour chaque mode de Debye.

Poids relatif des modes de Debye

Nous définissons les poids des modes p de Debye en utilisant l'énergie I_p .

$$I_p = \frac{2\pi}{|k|^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left(|a_n^p|^2 + |b_n^p|^2 \right) \quad (1.2)$$

où k est le nombre d'onde. Cette expression est équivalente à la section efficace de diffusion d'une particule calculée par la théorie de Mie [24] où nous utilisons les coefficients de diffusion externe partiels. Il s'agit donc de l'énergie diffusée mode par mode par la particule dans le cas non absorbant. Nous traçons l'évolution du poids des modes de Debye normalisé par la somme de tous les modes en fonction du rayon (FIG. 6). L'énergie est répartie principalement entre les modes 0 et 1 ($I_0+I_1>0.92$ pour $R>0.1 \mu m$ et $I_0+I_1>0.98$ pour $R>10 \mu m$). Par la suite, nous nous intéressons uniquement aux poids des modes 0 et 1 et plus particulièrement au rapport I_1/I_0 .

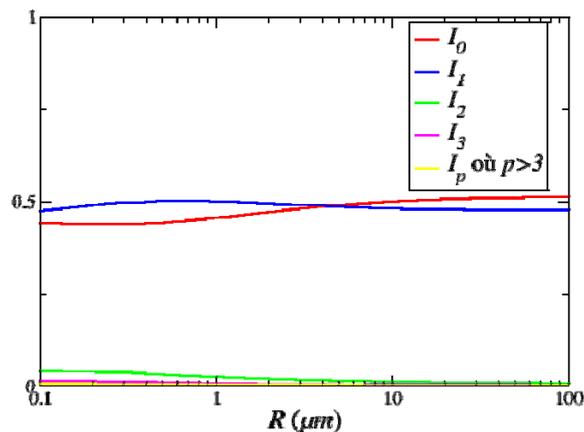


FIG. 6 : Evolution des poids des différents modes de Debye (normalisé par la somme de tous les modes) sans absorption en fonction du rayon.

Facteur d'asymétrie

Le facteur d'asymétrie, g [24], caractérise l'asymétrie de la diffusion. Il permet de savoir si une direction de diffusion est privilégiée. Il est égal à la valeur moyenne du cosinus de l'angle de diffusion pondérée par la fonction de phase angulaire $M_{11}(\cos(\theta))$.

$$g = \frac{1}{2} \int_0^\pi M_{11}(\cos \theta) \sin \theta \cos \theta d\theta$$

$$g = \frac{2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n(n+2)}{n+1} \operatorname{Re}(a_n a_{n+1}^* + b_n b_{n+1}^*) + \frac{2n+1}{n(n+1)} \operatorname{Re}(a_n b_n^*)}{\sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2)} \quad (1.3)$$

Si g est proche de 1, la fonction de phase est très piquée vers l'avant ($\theta=0^\circ$). C'est le cas des grosses particules. Si g est proche de 0, la fonction de phase est peu directive (cas des petites particules). En utilisant la décomposition des coefficients a_n et b_n , nous sommes capable de calculer les facteurs d'asymétrie partiels des modes p de Debye. Nous représentons (FIG. 7) le facteur d'asymétrie total et celui des modes 0 et 1 en fonction du rayon. Le facteur d'asymétrie du mode 0 augmente avec le rayon de la particule et tend vers 1 pour de forts rayons. Le facteur d'asymétrie du mode 1 augmente aussi avec le rayon et il tend vers une valeur asymptotique de 0.97, pour le contraste d'indice choisi. Le facteur d'asymétrie total oscille dans une zone proche des deux courbes précédentes. Notons, d'après l'équation (1.3), que le facteur g total n'est pas égal à la somme des g partiels car il faut pondérer cette somme avec les intensités relatives de chaque mode. Les oscillations observées sont dues aux interférences entre les différents modes. Pour les trois courbes, une même tendance se dégage. Nous passons du cas de petite particule avec un lobe de diffusion aussi intense vers l'avant que vers l'arrière (diffusion de Rayleigh) au cas de grosse particule où le lobe de diffusion est très piqué vers l'avant (optique géométrique).

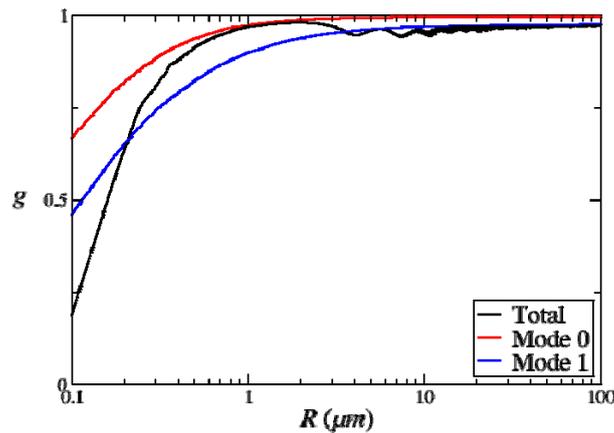


FIG. 7 : Evolution des facteurs d'asymétrie total, du mode 0 et du mode 1 sans absorption en fonction du rayon.

Temps moyen passé à l'intérieur de la particule

Le facteur d'asymétrie et la fonction de phase stationnaire résument l'essentiel de l'information angulaire de la cartographie 2D. Il est nécessaire de pouvoir résumer de manière analogue l'information temporelle. Lorsque nous observons les cartographies 2D, chaque fois que nous considérons un angle particulier, nous avons vérifié que le profil temporel obtenu est sensiblement équivalent au profil temporel de l'impulsion initiale (gaussienne de largeur à mi-hauteur de 100 fs). Par conséquent, pour chaque angle, le retard moyen $\tau(\theta)$ passé dans la particule suffit en général à résumer l'information temporelle. Nous réalisons donc la moyenne suivante :

$$\tau(\theta) = \int M_{11}(t, \theta) dt / \int M_{11}(t, \theta) dt \quad (1.4)$$

Des temps moyens partiels $\tau^P(\theta)$ sont aussi calculés à partir de M_{11}^P . Nous représentons (FIG. 8 (a)) l'évolution du temps moyen total et partiel pour plusieurs modes de Debye dans le cas d'un rayon de particule de 50 μm . La variation de τ total dépend de la variation des différents τ partiels. La fonction de phase temporelle (FIG. 8 (b)) nous fournit une grille de lecture de l'évolution du temps total où nous distinguons sept régimes différents. Selon les régimes, le retard total correspond au retard du mode dominant ou à la moyenne pondérée de plusieurs modes (où les coefficients de pondération seraient reliés au poids relatifs des différents modes de la fonction de phase stationnaire (FIG. 5 (d))). Pour des angles de diffusion très petits ($\theta=2^\circ$, régime 1), nous observons un passage rapide du mode 0 au mode 1.

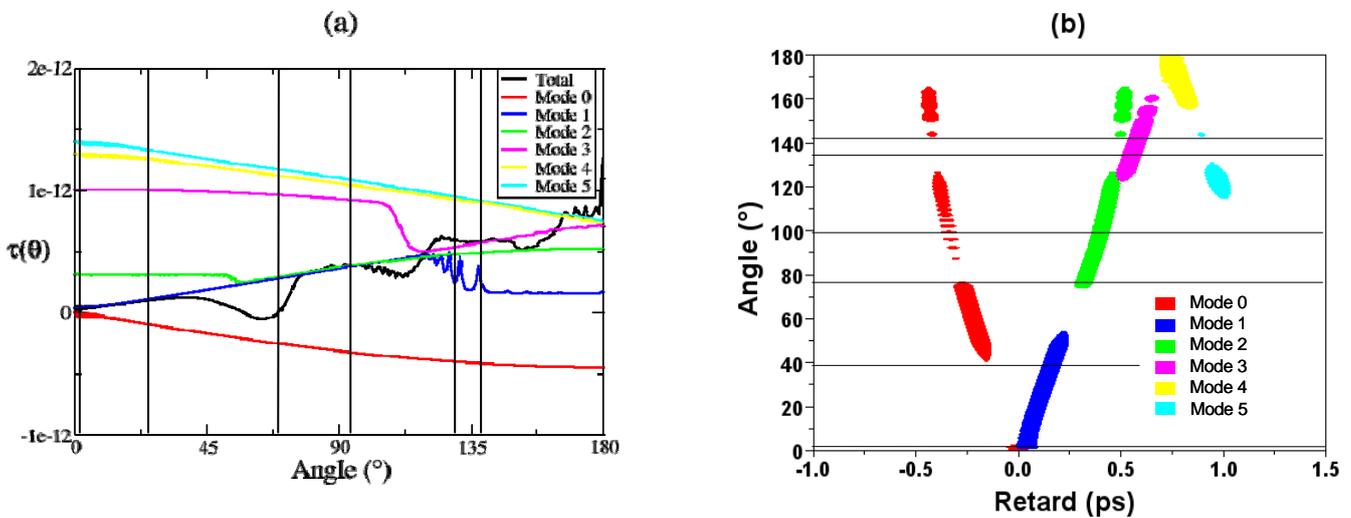


FIG. 8 : (a) Evolution des temps moyens total et partiel pour $R=50 \mu m$ en fonction de l'angle de diffusion. (b) Fonction de phase temporelle normalisée.

1.3. Effet de la longueur d'onde et du contraste d'indice

Nous avons précédemment fait varier le rayon par rapport à la durée de l'impulsion femtoseconde incidente afin d'observer différents régimes de séparation temporelle des modes de Debye. Nous nous plaçons dans cette section dans le cas d'une nette séparation des lobes ($R=50 \mu m$ et $FWHM=100 fs$). Pour ces deux valeurs de paramètres, nous avons d'abord choisi de faire varier la longueur d'onde afin de modifier le paramètre de taille sans changer le

rayon. Nous représentons la fonction de phase temporelle et stationnaire pour plusieurs longueurs d'onde (FIG. 9). Nous remarquons que la longueur d'onde n'a quasiment pas d'impact sur la répartition temporelle de l'énergie. Cette répartition est en effet directement liée à Δt ($=2R(n_{pa}-n_{li})/c$), indépendant de la longueur d'onde. En revanche, nous observons un impact important sur la fonction de phase stationnaire (FIG. 9 (b)). Augmenter la longueur d'onde pour un rayon fixé revient en effet à baisser le paramètre de taille. Les fonctions de phase sont donc de moins en moins piquées vers l'avant.

Nous avons ensuite choisi de faire varier n_{pa} pour un n_{li} donné (FIG. 10) car la séparation temporelle est principalement gouvernée par Δt . Nous nous plaçons à une longueur d'onde de 800 nm . Plus la différence d'indice augmente, plus les modes 1 et d'ordre supérieur sont retardés. Pour $n_{pa} > 1.6$, nous observons une séparation entre le mode 0 et le mode 1 aux faibles angles. Cette séparation apparaît quand Δt est du même ordre de grandeur que $FWHM$. Nous constatons de plus que le retard augmente avec l'ordre du mode. Ceci est dû à l'augmentation de la distance de propagation interne à la particule. Le mode 0 n'est globalement pas affecté temporellement. L'augmentation du contraste d'indice décale les modes de Debye (à l'exception du mode 0) vers des angles de diffusion plus importants. Nous observons un étalement angulaire du mode 1. Cet étalement peut se comprendre car sans contraste d'indice, il n'y a pas de déviation angulaire des rayons optiques du mode 1 (FIG. 5 (e)). Nous observons pour les fonctions de phase stationnaires (FIG. 10 (b)) une baisse de l'intensité pour des angles supérieurs à 0.02 rad . A l'inverse, l'intensité du mode 0 (θ entre 0 et 0.02 rad) ne semble pas être affectée.

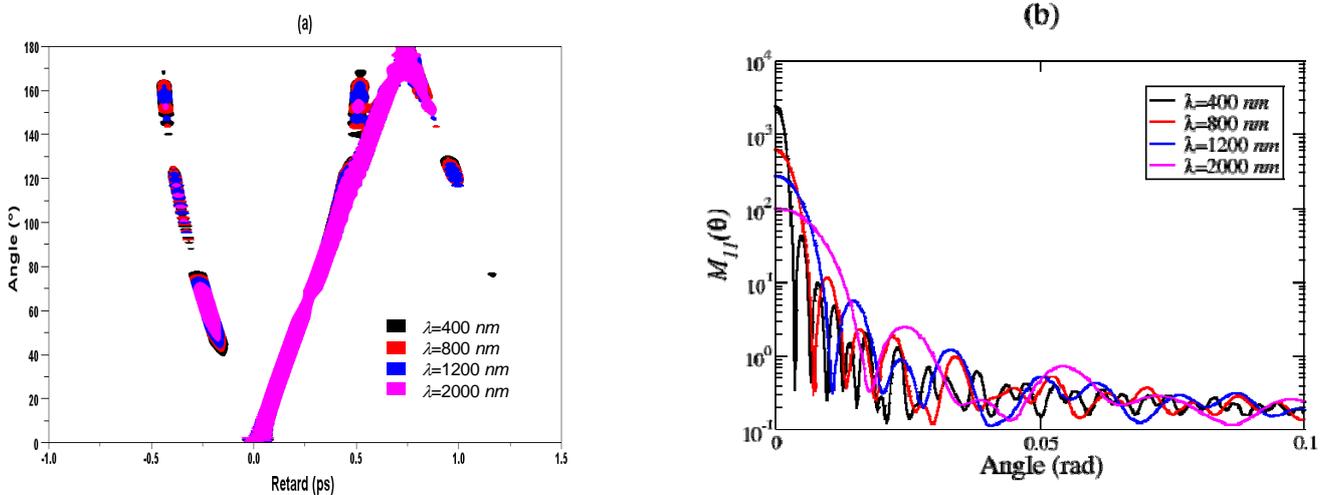


FIG. 9 : (a) $M_{11}(t, \theta)$ normalisée et (b) $M_{11}(\theta)$ pour plusieurs longueurs d'onde. $R=50 \mu\text{m}$, $n_{li}=1.33$, $n_{pa}=1.45$ et $k_{li}=k_{pa}=0$.

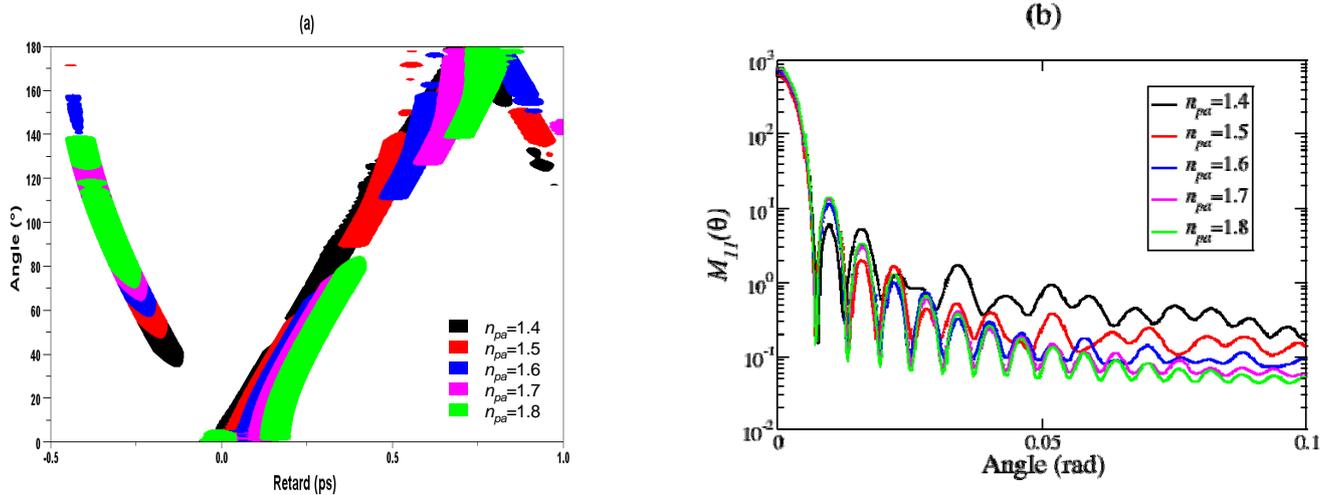


FIG. 10 : (a) $M_{11}(t, \theta)$ normalisée et (b) $M_{11}(\theta)$ pour plusieurs indices de particules. $R=50 \mu\text{m}$, $n_{li}=1.33$, $k_{li}=k_{pa}=0$ et $\lambda=800 \text{ nm}$.

1.4. Effet de la dispersion

Dans cette partie, nous souhaitons étudier l'impact de la variation spectrale des indices sur la forme de la fonction de phase temporelle. Cet impact est de deux natures : la modification de la réponse de Mie de la particule d'une part et la dérive de fréquence ou *chirp* de l'impulsion incidente d'autre part.

La réponse de Mie, telle que nous l'avons calculée précédemment pour chaque composante spectrale, prenait uniquement en compte la variation du paramètre R/λ sur la largeur spectrale de l'impulsion. Il s'agit ici de prendre en compte les effets induits par les variations des indices de réfraction. En effet, les deux paramètres d'entrée du calcul de Mie sont R/λ et mR/λ . Si nous nous intéressons au deuxième paramètre, une variation typique de $\Delta m/m$ sur la bande 790-810 nm est de 0.01% ($\Delta n_{SF11}=0.07\%$, $\Delta n_{silice}=0.03\%$ et $\Delta n_{eau}=0.04\%$) alors que $\Delta(1/\lambda)$ est de 2.5%. Nous nous attendons à observer un faible impact de la dispersion sur la fonction de phase temporelle. Le liant utilisé est de l'eau et la particule est soit en silice (cas standard), soit en SF11 (cas d'école plus dispersif). Nous nous plaçons dans ce cas d'école. Les relations de dispersion ont été trouvées dans la littérature [51–53]. Nous traçons les fonctions de phase temporelles d'une particule de SF11 ($n_{SF11}=1.76$ à 800 nm) dans de l'eau en considérant la dispersion uniquement dans la particule (FIG. 11 (a)) puis uniquement dans l'eau (FIG. 11 (b)). Le cas sans dispersion en rouge est le même pour les deux figures. Nous constatons pour le SF11, contrairement au cas de la silice ($n_{silice}=1.45$ à 800 nm) dans de l'eau (FIG. 5 (c)), un décrochage entre le mode 0 et le mode 1 pour l'angle 0° . Cet effet a été détaillé dans la section précédente. En effet dans le cas de la silice, Δt est égal à 40 fs et pour le SF11, il est de 140 fs. Ces valeurs sont à comparer à la largeur à mi-hauteur de 100 fs de l'impulsion incidente.

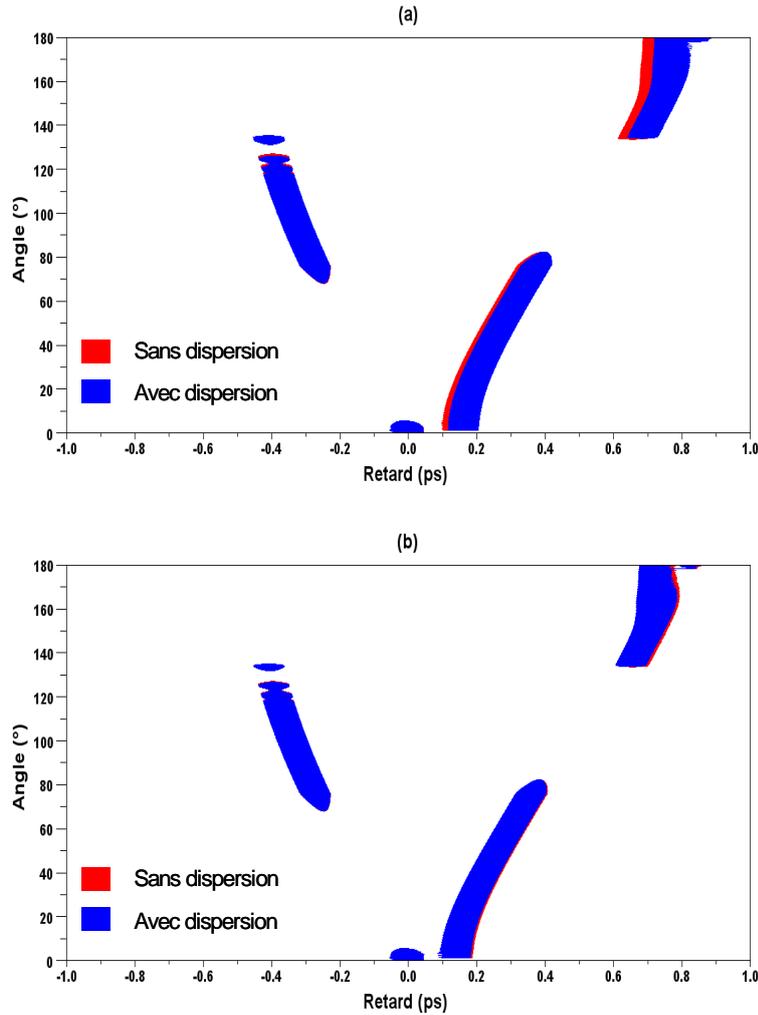


FIG. 11 : Fonction de phase temporelle normalisée pour une particule de SF11 de 50 μm de rayon plongée dans de l'eau dans le cas où (a) la particule devient dispersive et (b) l'eau devient dispersive.

Le mode 0 ne semble pas être affecté par la dispersion du liant ou de la particule. Ce mode est en effet un mode surfacique et donc il est peu affecté par les propriétés physiques du milieu. Nous constatons que la dispersion du SF11 entraîne une augmentation des temps pour les modes 1 et 2 alors que pour la dispersion de l'eau c'est l'inverse. Afin de quantifier l'impact de la dispersion, nous traçons l'écart relatif entre le $\tau(\theta)$ calculé avec de la dispersion et celui calculé sans dispersion. Nous considérons successivement la dispersion dans la particule, puis dans le liant et pour finir dans les deux. Les cas du SF11 et de la silice sont représentés (FIG. 12 (a) et (b)). Pour les deux matériaux, nous constatons que la dispersion dans la particule réduit le temps moyen (effet plus important pour SF11, plus dispersif). La dispersion de l'eau augmente le retard moyen. Les impacts de la dispersion dans le liant et la particule semblent donc de signes opposés. Ceci s'explique pour deux raisons :

- dans le contraste d'indice, n_{pa} est au numérateur et n_{li} au dénominateur,
- les variations d'indice de l'eau et celle des matériaux considérées sont ici du même signe (décroissants avec la longueur d'onde).

Pour les deux matériaux considérés, les variations d'indice de la particule sont plus importantes que celles de l'eau. Par conséquent, nous constatons que l'écart reste négatif lorsque nous considérons les deux variations d'indice simultanément. Pour le couple

silice/eau, l'écart est plus faible que pour le couple *SF11*/eau. Cela s'explique par le fait que les effets de dispersion de la silice sont plus proches de ceux de l'eau. De plus, nous pouvons généraliser notre étude au cas où la dispersion dans le liant et la particule sont de signe opposé. Pour de tels cas, les effets deviennent cumulatifs et l'impact serait plus important sur la signature temporelle.

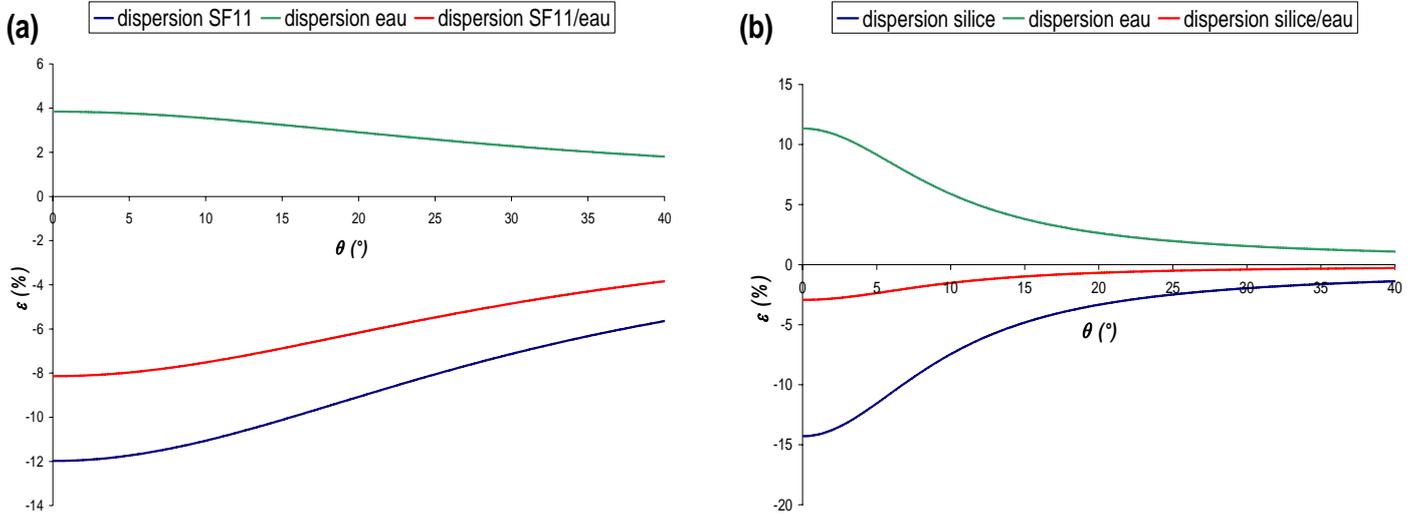


FIG. 12 : Ecart relatif de $\tau'(\theta)$ avec et sans dispersion pour les couples (a) eau/SF11 et (b) eau/silice.

Pour finir, si nous considérons une impulsion limitée par transformée de Fourier à l'entrée du milieu, elle subit la dispersion du liant pendant la première phase de propagation avant d'interagir avec la particule et cumule ainsi du *chirp*, ϕ_2 . Nous nous proposons donc d'évaluer l'impact de ce *chirp* cumulé sur une longueur z de propagation dans de l'eau.

$$\phi_2 = \frac{z}{c} \left[2 \left. \frac{dn_{li}}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0} + \omega_0 \left. \frac{d^2 n_{li}}{d\omega^2} \right|_{\omega=\omega_0} \right] \quad (1.5)$$

Nous déduisons la durée de l'impulsion après propagation.

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + \phi_2^2 / \tau_0^4}$$

Où τ_0 (=100 fs) est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion initiale limitée par transformée de Fourier. Pour avoir $\tau(z)$ égal à 120 fs, le parcours a été fixé à 12 cm (annexe B) et ϕ_2 est égal à 6633 fs². Nous représentons (FIG. 13) la fonction de phase temporelle avec et sans *chirp* pour une particule de 50 μm . Nous constatons un étalement temporel de la fonction de phase de 120 fs pour l'ensemble des modes de diffusion.

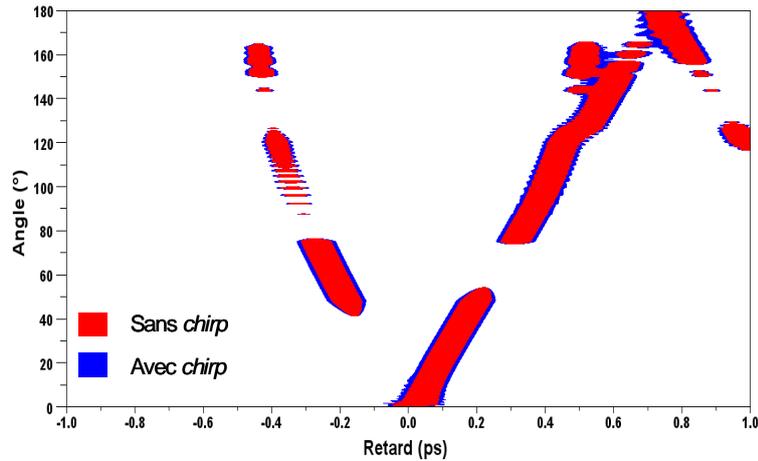


FIG. 13 : Fonction de phase temporelle normalisée pour une particule de silice de $50 \mu\text{m}$ de rayon plongée dans de l'eau sans (rouge) et avec (bleu) chirp. Sans chirp, l'impulsion est de 100 fs , limitée par transformée de Fourier. Avec chirp, l'impulsion est de 120 fs (100 fs si elle était limitée par transformée de Fourier).

En résumé, l'impact de la dispersion est de deux ordres : une modification de la réponse de Mie d'une part et un *chirp* de l'impulsion incidente sur la particule d'autre part. L'impact sur la réponse de Mie affecte faiblement le retard moyen des modes supérieurs ou égaux à 1. L'effet est d'autant plus faible car l'impact respectivement du liant et de la particule tendent à s'opposer si les variations sont de même signe comme pour les cas considérés ici. Dans le cas de la silice/eau, ils se compensent. L'effet du *chirp* induit un étalement temporel de la fonction de phase sans modifier la répartition de l'énergie dans la cartographie 2D. A strictement parler, ce *chirp* et cet étalement temporel sont présents sur l'impulsion avant interaction avec la particule. Il n'y a donc pas d'effet du *chirp* initial sur la répartition temporelle et angulaire de l'énergie.

Les deux effets (*chirp* et réponse de la théorie de Mie) ne sont visibles que d'un point de vue temporel et nous avons vérifié, qu'après intégration, compte tenu des variations d'indice ici mises en œuvre, nous retrouvons la fonction de phase stationnaire dans le cas où le milieu est non dispersif.

2. INFLUENCE DE L'ABSORPTION SUR LA FONCTION DE PHASE

Dans l'annexe A, nous présentons l'ensemble de la théorie de Mie sans absorption. Seuls les coefficients a_n et b_n sont modifiés en présence d'absorption car le paramètre de taille $x (=2\pi Rn_{ii}/\lambda)$ et le contraste d'indice m deviennent complexes. Cependant, la formulation des coefficients a_n et b_n reste valable en présence d'absorption que ce soit dans la particule ou dans le liant [23]. Il s'agit, dans cette partie, d'étudier le comportement des fonctions de phase stationnaires et des paramètres d'intérêt pour une absorption constante dans le liant et/ou dans la particule. Pour finir, nous discuterons qualitativement des impacts de ces modifications sur la diffusion temporelle d'un point de vue macroscopique.

2.1. Effets sur la fonction de phase stationnaire

Nous nous intéressons à l'évolution des fonctions de phase stationnaires totale et des différents modes en présence d'absorption dans la particule (FIG. 14) puis dans le liant (FIG.

15) pour un rayon donné de $50 \mu\text{m}$. Nous remarquons que l'absorption dans la particule n'affecte pas le mode 0, mode surfacique ne pénétrant pas au cœur de la particule. En revanche, les autres modes sont eux beaucoup plus affectés par l'absorption car ils se propagent à l'intérieur de la particule (FIG. 5 (e)). Par conséquent, lorsque l'absorption augmente, le mode 0 devient prédominant et les modes d'ordre supérieur deviennent totalement négligeables. Pour de forte absorption, la fonction de phase totale est confondue avec celle du mode 0 [54]. Le mode 0 étant très piqué vers l'avant, **la fonction de phase devient très piquée vers l'avant quand l'absorption augmente.**

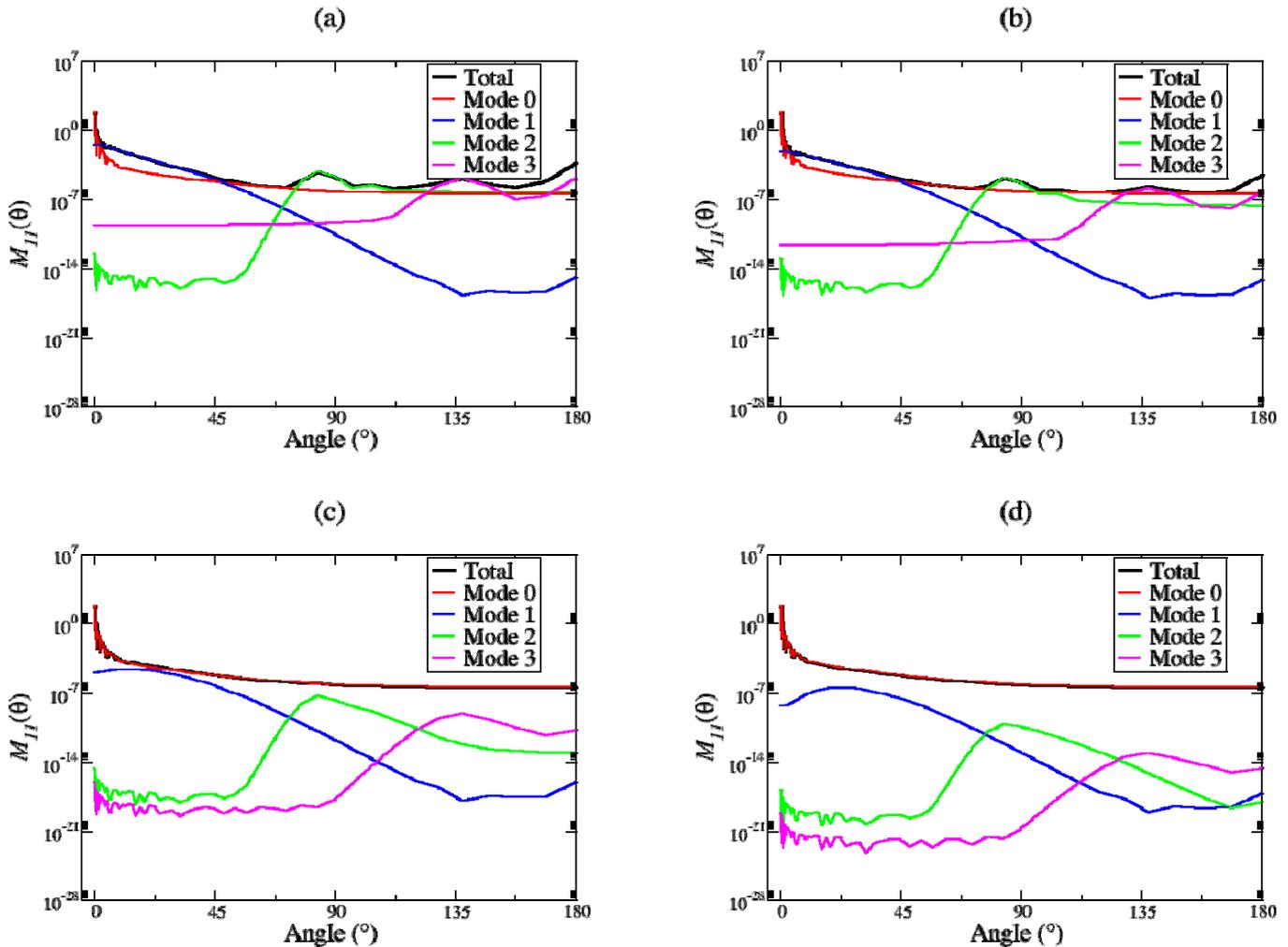


FIG. 14 : Fonctions de phase intégrées sur le temps pour $R=50 \mu\text{m}$ et pour (a) $k_{pa}=0$, (b) $k_{pa}=10^{-3}$, (c) $k_{pa}=5 \cdot 10^{-3}$ et (d) $k_{pa}=10^{-2}$.

A l'inverse, dans le cas de fortes absorptions dans le liant (FIG. 15), plusieurs modes de Debye coexistent. En diffusion avant, l'énergie totale se répartit équitablement entre les modes 0 et 1 en l'absence d'absorption. Elle se répartit préférentiellement dans le mode 1 lorsque le liant est absorbant. Le lobe de diffusion très piqué vers l'avant dû au mode 0 (lobe peu visible sur (FIG. 15 (a) et (b))) disparaît pour de fortes absorptions (FIG. 15 (c) et (d)). A l'exception de cette disparition, l'effet global est que la fonction de phase semble être de plus en plus piquée vers l'avant quand k_{li} augmente. En rétrodiffusion, tous les modes à l'exception du mode 1 coexistent quand le liant n'absorbe pas. Lorsque le liant est absorbant, il ne subsiste que les modes 0 et 2.

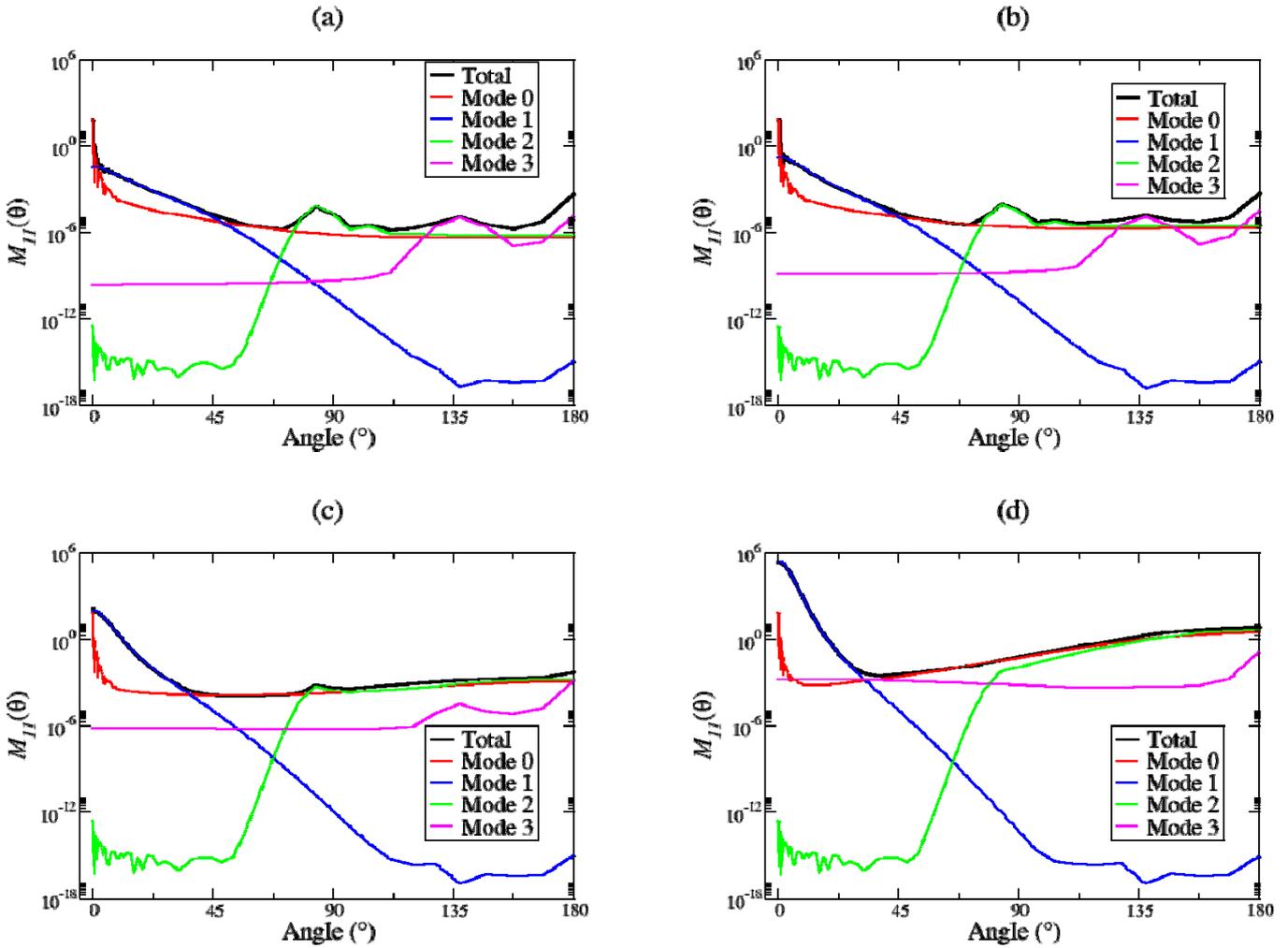


FIG. 15 : Fonctions de phase intégrées sur le temps pour $R=50 \mu\text{m}$ et pour (a) $k_{li}=0$, (b) $k_{li}=10^{-3}$, (c) $k_{li}=5 \cdot 10^{-3}$ et (d) $k_{li}=10^{-2}$.

2.2. Effets sur les paramètres d'intérêt

Dans la partie précédente, nous avons présenté trois paramètres d'intérêt (I_p , g et τ) en l'absence d'absorption. Sachant que la formulation des coefficients a_n et b_n n'est pas modifiée en présence d'absorption [14], celle des trois paramètres demeure. Nous avons montré que le poids du mode p de Debye est équivalent à la section efficace partielle de diffusion de ce mode en l'absence d'absorption. Cette équivalence n'est plus rigoureusement valable dans le cas absorbant. Cependant, nous utilisons l'expression (1.2) pour évaluer qualitativement l'impact de l'absorption sur les valeurs relatives des différents poids. Nous représentons le rapport I_1/I_0 afin de connaître la prédominance des modes 0 et 1 en présence d'absorption dans la particule (FIG. 16 (a)) puis dans le liant (FIG. 16 (b)) pour deux rayons différents ($R=5$ et $50 \mu\text{m}$). Sans absorption, le rapport est proche de 1, donc l'énergie diffusée par le mode 0 est à peu près égale à celle diffusée par le mode 1. Quand k_{pa} augmente, le poids du mode 1 diminue fortement car ce mode se propage à l'intérieur de la particule et subit les effets de l'absorption. Le mode 0, se propageant à l'interface entre le liant et la particule, ne

subit pas les effets de l'absorption. Cet effet est d'autant plus important lorsque le rayon de la particule augmente car la perte d'énergie à l'intérieur de celle-ci croît.

Nous observons une augmentation du rapport I_1/I_0 avec k_{li} . Cette augmentation est d'autant plus nette quand le rayon est grand. D'après la schématisation simplifiée de la FIG. 5 (e), l'énergie diffusée par le mode 1 est localisée dans une zone relativement proche du centre de la particule et donc protégée des effets de l'absorption du liant. L'augmentation relative du poids du mode 1 (par rapport au mode 0) est d'autant plus importante que la particule est grosse.

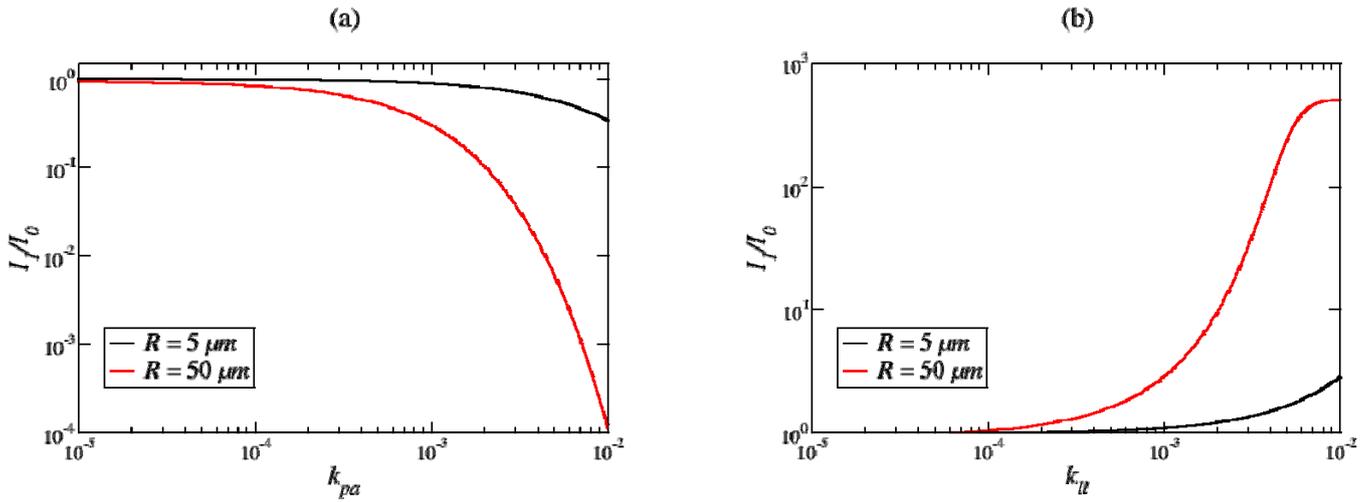


FIG. 16 : Rapport I_1/I_0 pour $R=5 \mu\text{m}$ en noir et $R=50 \mu\text{m}$ en rouge en fonction de (a) k_{pa} puis de (b) k_{li} .

Nous représentons les facteurs d'asymétrie total et des modes 0 et 1 en présence d'absorption dans la particule (FIG. 17 (a)) puis dans le liant (FIG. 17 (b)) pour $R=50 \mu\text{m}$. L'absorption à l'intérieur de la particule n'ayant pas d'influence sur le mode 0, le facteur d'asymétrie de ce mode reste constant et très proche de 1 ($g_0 \approx 0.995$) lorsque nous augmentons k_{pa} . A l'inverse, le mode 1 est affecté par l'absorption dans la particule. Lorsque k_{pa} augmente, son facteur d'asymétrie diminue et le lobe de diffusion devient progressivement moins dirigé vers l'avant. Sans absorption, le facteur d'asymétrie total est confondu avec celui du mode 1 puis lorsque nous augmentons progressivement k_{pa} , ce facteur tend vers celui du mode 0. Cela confirme les résultats observés précédemment sur la fonction de phase totale (plus piquée vers l'avant quand k_{pa} augmente).

Nous observons une augmentation du facteur d'asymétrie total et du mode 1 avec k_{li} (FIG. 17 (b)). Nous avons constaté précédemment que la fonction de phase totale dans sa globalité semblait plus piquée, malgré la disparition d'un mode de diffusion très étroit (*i.e.* mode 0). Deux phénomènes opposés sont ici en compétition quand k_{li} augmente : la disparition du mode 0 très étroit au profit du mode 1 plus large et le piquage progressif de la fonction de phase totale. D'après l'évolution de g total, c'est le dernier phénomène qui semble l'emporter. Pour illustrer cette conclusion, nous représentons (FIG. 18) l'intensité diffusée intégrée pour des angles inférieurs à θ en fonction de θ avec et sans absorption pour la fonction de phase totale. Dans le cas absorbant, cette intensité est plus resserrée à 0° .

Le facteur d'asymétrie du mode 0 diminue fortement avec k_{li} . Il devient même négatif (non représenté sur FIG. 17 (b)), ce qui indique que la rétrodiffusion devient la direction privilégiée de ce mode. La réflexion par la face arrière de la particule (première interface rencontrée par l'onde incidente) est favorisée par l'absorption dans le liant. En effet, la représentation schématisée du mode 0 (FIG. 5 (e)) permet de visualiser que le parcours à

l'interface particule/liant est sensiblement plus long pour la diffusion avant que pour la rétrodiffusion. Cette dernière est donc moins affectée par l'absorption du liant.

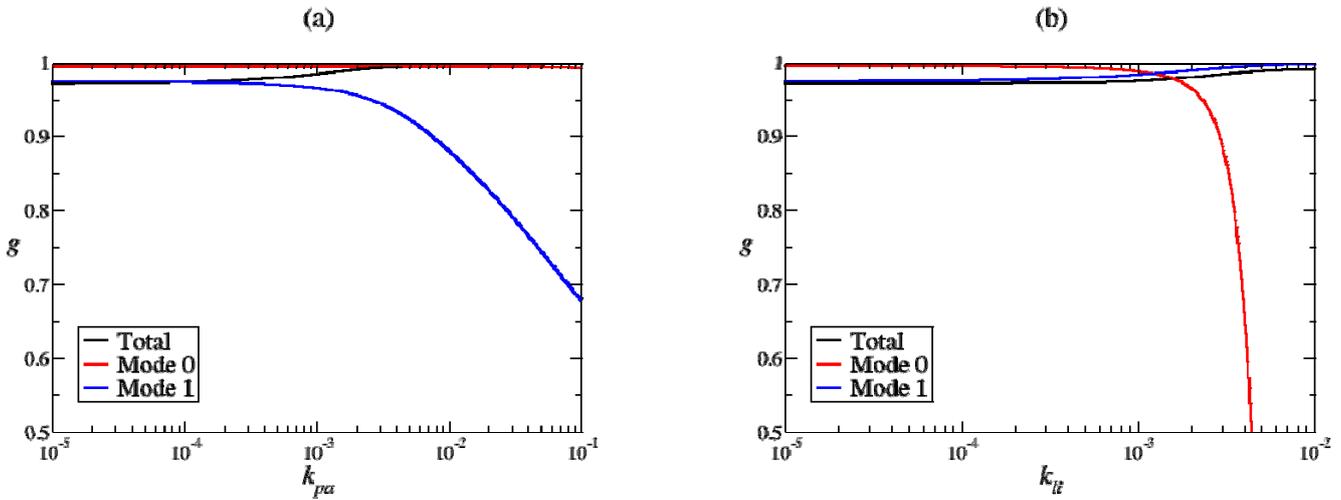


FIG. 17 : Facteurs d'asymétrie total en noir, du mode 0 en rouge et du mode 1 en bleu pour $R=50 \mu\text{m}$ en fonction de (a) k_{pa} puis de (b) k_{li} .

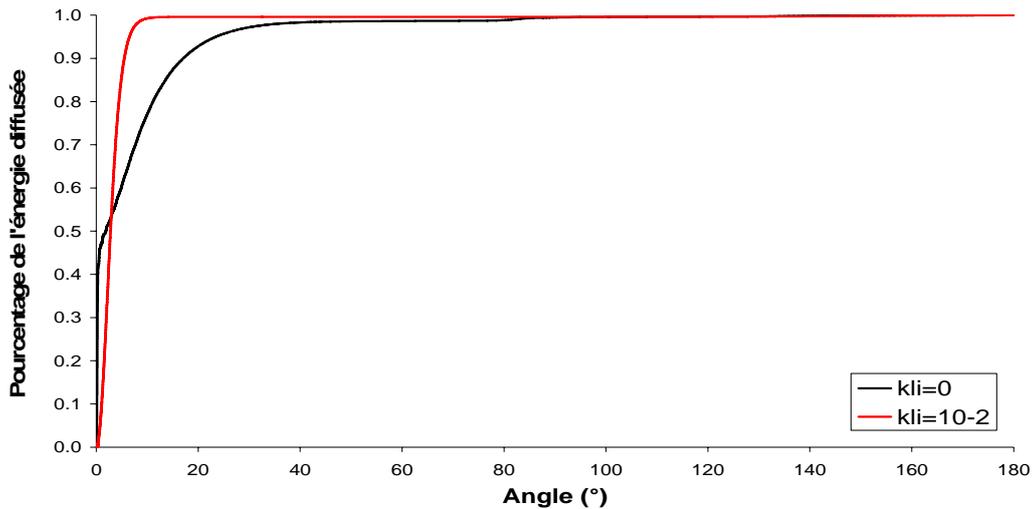


FIG. 18 : Energie diffusée cumulée en fonction de l'angle de diffusion pour deux valeurs de k_{li} . Sans absorption, le lobe de diffusion dû au mode 0 représente 50 % de l'énergie. Avec absorption, la fonction de phase totale est plus piquée si nous considérons l'ensemble des angles de diffusion.

Pour finir, nous représentons le temps moyen total en présence d'absorption dans la particule pour $R=50 \mu\text{m}$ (FIG. 19). Quel que soit l'angle considéré, le temps passé à l'intérieur de la particule diminue avec k_{pa} . La fonction de phase totale est en effet confondue avec celle du mode 0, mode plus rapide que les autres. L'absorption du liant entraîne, quant à elle, une augmentation ou diminution du temps de vol selon l'angle considéré. De plus, les ondulations diminuent jusqu'à disparaître pour de forts k_{pa} . Ces ondulations peuvent être dues aux interférences entre plusieurs modes. Elles disparaissent lorsqu'un seul mode domine (par exemple le mode 0 pour de fort k_{pa}). Afin d'étudier plus précisément le cas de la diffusion avant, nous avons fait un zoom pour les petits angles (FIG. 20 (a) et (b)). L'absorption dans la particule diminue τ , à l'inverse, l'absorption dans le liant l'augmente. Il s'agit encore une fois de l'amplification respective du mode 0 ou du mode 1. En rétrodiffusion, l'absorption dans le

liant ou dans les particules entraîne une diminution du temps passé à l'intérieur de la particule. En effet, lorsque k_{li} augmente, seuls les modes 0 et 2, moins retardés, subsistent et lorsque k_{pa} augmente, seul le mode 0 (mode moins retardé) est présent.

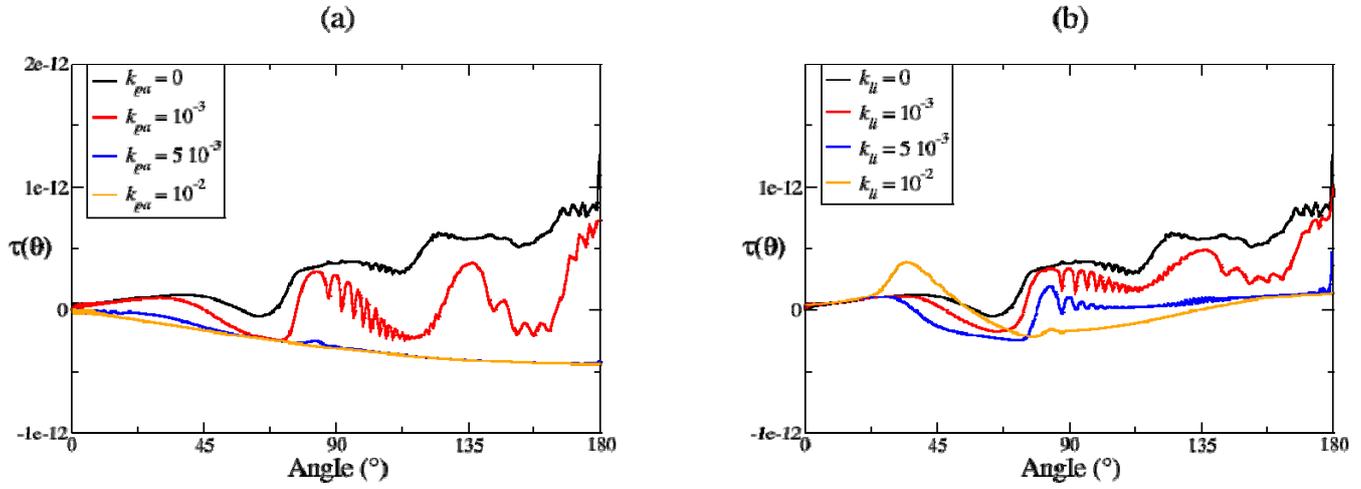


FIG. 19 : Temps moyen total pour $R=50 \mu\text{m}$ en fonction de θ en présence d'absorption (a) dans la particule puis (b) dans le liant.

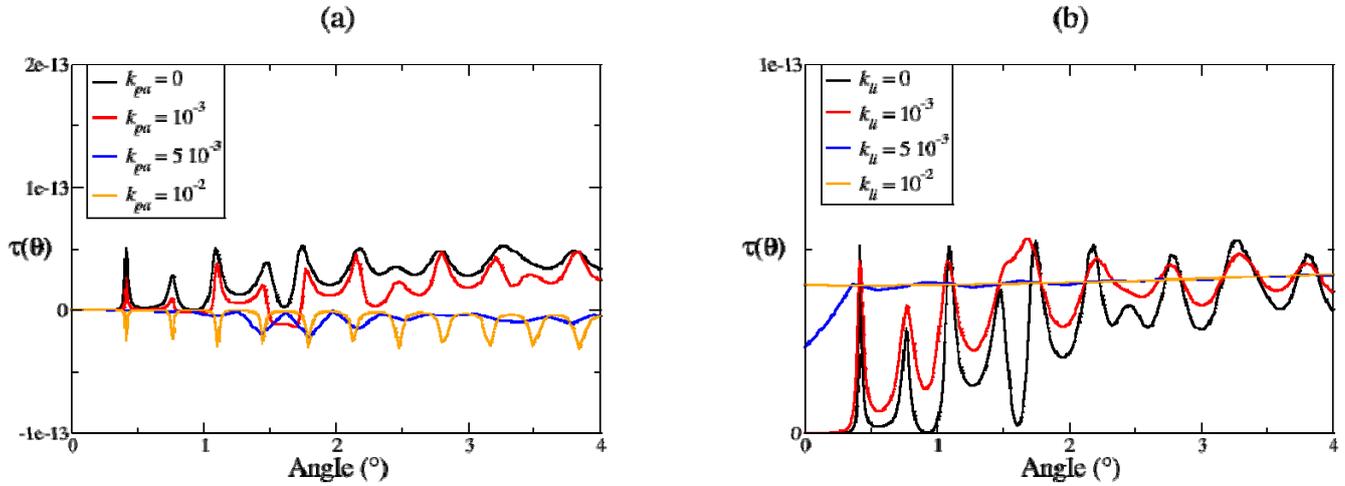


FIG. 20 : (a) et (b) Zooms respectifs de FIG. 19 (a) et (b).

2.3. Répercussion sur la diffusion temporelle

En présence d'absorption dans les particules ou dans le liant, les trois paramètres d'intérêt ainsi que la fonction de phase stationnaire sont modifiés. Ces modifications ont un impact sur les profils temporels d'intensité en diffusion avant ou en rétrodiffusion et donc sur le temps de vol total des photons. Ce temps de vol est une combinaison du temps passé par le photon à l'intérieur de la particule et du temps entre les événements de diffusion. Le temps passé à l'intérieur de la particule est gouverné par $\tau(\theta)$. Le temps entre les événements de diffusion est dépendant du nombre d'évènements de diffusion ainsi que du facteur

d'asymétrie. Des trajectoires plus rectilignes correspondent à des temps de vol plus courts en diffusion avant.

Absorption dans la particule et cas de la diffusion avant

Une augmentation de k_{pa} entraîne la destruction des modes de diffusion interne à la particule (*i.e.* modes ≥ 1 de Debye). Seul le mode 0 n'est pas affecté par k_{pa} . Ce mode de diffusion n'est pas retardé contrairement aux autres modes. En parallèle, lorsque k_{pa} augmente, la fonction de phase stationnaire totale est plus piquée vers l'avant. Les photons ont donc des trajectoires plus rectilignes. Ces deux effets vont donc vers une diminution du temps de vol total des photons.

Absorption dans le liant

Pour un rayon de $50 \mu m$, nous avons observé que la fonction de phase est globalement plus piquée vers l'avant quand k_{li} augmente, à l'exception des très faibles angles où nous observons la disparition du lobe 0 très piqué au profit du lobe du mode 1 plus large. A moins de considérer un angle solide de détection vers l'avant très petit, nous pouvons nous attendre à ce que les photons détectés subissent des trajectoires plus rectilignes et donc un temps de vol plus court. A l'inverse, le temps passé à l'intérieur de la particule augmente. Ces deux effets tendraient à se compenser.

En rétrodiffusion, nous observons une diminution du temps passé à l'intérieur de la particule. Ceci peut impacter le temps de vol des photons qui reviennent vers le détecteur après un unique événement de rétrodiffusion. Pour les trajectoires plus complexes (diffusion multiple), la conclusion est moins évidente et nécessite des modélisations du profil temporel rétrodiffusé (Chapitre 3).

3. MODELISATION D'UNE BANDE D'ABSORPTION DANS LA PARTICULE

3.1. Généralités sur les bandes d'absorption

L'objectif de ce paragraphe est d'étudier l'influence de la largeur d'une bande d'absorption sur le profil angulaire et temporel de l'énergie diffusée par la particule. Les processus d'absorption de la lumière peuvent être très divers selon la longueur d'onde et le matériau considéré. Ainsi, une excitation dans le domaine UV-visible correspond à une excitation du système électronique et dans le proche infrarouge à des transitions vibrationnelles. Dans l'infrarouge moyen et lointain, cette excitation induit des transitions rotationnelles et des modes de vibrations plus globaux. Selon le type de transition considéré et selon le matériau, des largeurs de bandes d'absorption très diverses sont observables. La largeur de la transition est globalement gouvernée par les couplages entre le système absorbant et son environnement ainsi que par la diversité possible entre différents sites d'absorption. Ainsi, un couplage faible avec l'environnement comme dans les gaz conduit à des largeurs faibles, contrairement au cas d'un liquide où les couplages sont beaucoup plus forts et les raies d'absorption plus larges. De plus, l'effet Doppler dans les gaz, les défauts et les hétérogénéités dans les matrices cristallines contribuent à un élargissement notable des bandes d'absorption. Si nous considérons un absorbant gazeux, liquide ou solide (diélectrique ou semi-conducteur), les largeurs de bande d'absorption varient donc de la fraction de nanomètre (gaz) à plusieurs micromètres (liquide). Les profils de spectre d'absorption sont souvent modélisés par des distributions lorentziennes, gaussiennes ou des profils de Voigt (convolution entre une gaussienne et une lorentzienne). Le TAB. 1 fournit des exemples de largeur de bande.

Type de milieu	Nom du milieu	λ (μm)	Largeur (nm)	Référence
Liquide	Eau	2.951	330	[55]
Liquide	Rhodamine	0.512	30	[56]
Solide	Titane Saphir	0.495	120	[57]
Gaz	CO_2 , H_2O , etc.	infrarouge	10^{-3} à 1	[58]

TAB. 1 : Exemples de milieu et de largeur de raie associée.

Devant cette très grande diversité de transition et de largeur possible, nous avons choisi de modéliser les milieux suivants. Nous supposons un liant non absorbant. Nous supposons une particule possédant une bande d'absorption gaussienne centrée autour de la longueur d'onde de l'impulsion laser (FIG. 21 (a)). L'objectif est d'étudier les effets de différentes largeurs de bande d'absorption sur la fonction de phase temporelle pour des particules de $50 \mu\text{m}$ (rayon fixé pour l'ensemble de cette partie). Nous représentons $M_{11}(\theta)$ (FIG. 21 (b)) pour $k_{pa}=0$, 10^{-1} et pour des bandes d'absorption de largeurs comprises entre $0.01\Delta\omega$ et $\Delta\omega$, où $\Delta\omega$ désigne la largeur spectrale de l'impulsion femtoseconde (largeur de 18 nm , limitée par transformée de Fourier et de durée 100 fs). L'absorption au centre de la bande est aussi de 10^{-1} . Nous observons trois régimes en fonction de l'absorption.

1/ **bande fine** : la fonction de phase sans absorption est équivalente à celle obtenue avec une largeur de bande très fine ($0.01\Delta\omega$). Ceci s'explique par le fait que la portion d'énergie lumineuse absorbée par la particule est négligeable et la fonction de phase n'est donc pas affectée.

2/ **bande large** (supérieur à $\Delta\omega$) : tout se passe comme si nous avions un k_{pa} constant de 10^{-1} . Ceci est dû au fait que les variations de k_{pa} sur la largeur de l'impulsion femtoseconde sont négligeables pour ces larges bandes.

3/ **bande intermédiaire** : lorsque nous augmentons progressivement la largeur de bande, en partant d'une bande infiniment fine, la fonction de phase passe progressivement du cas sans absorption au cas absorbant.

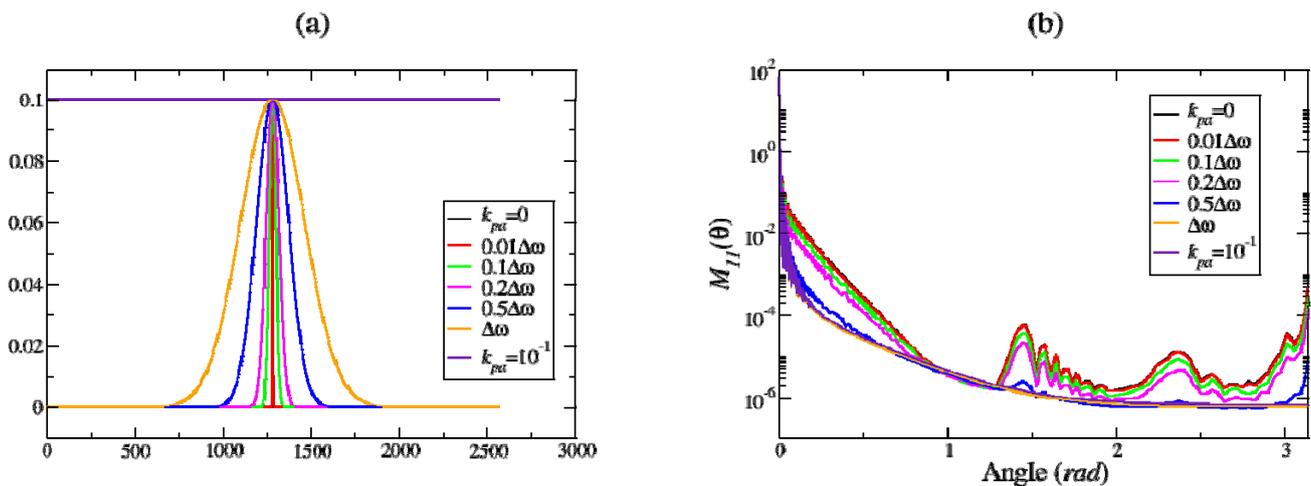


FIG. 21 : (a) Représentation des différentes bandes d'absorption et (b) évolution de $M_{11}(\theta)$ pour ces bandes d'absorption.

L'objectif est d'étudier le cas des largeurs de bandes intermédiaires afin de quantifier l'impact sur les profils temporels et d'analyser s'il est possible de reproduire la fonction de phase stationnaire avec un k_{pa} effectif.

3.2. Modification temporelle du profil de diffusion

Nous déterminons l'intensité totale diffusée, $I_{glob}(t)$, intégrée dans toutes les directions de l'espace, en fonction du retard t à l'aide de l'équation suivante :

$$I_{glob}(t) = \int_0^{\pi} M_{11}(t, \theta) \sin(\theta) d\theta \quad (1.6)$$

I_{glob} correspondrait à l'intensité mesurée par une sphère intégrante dont la particule serait située au centre. Nous rappelons que $M_{11}(t, \theta)$ est obtenu par la transformée de Fourier de $M_{11}(\omega, \theta)$. Nous traçons cette intensité (FIG. 22) pour une absorption nulle et constante (10^{-2} puis 10^{-1}) ainsi que pour plusieurs largeurs de bande d'absorption comprises entre 0.1 et $2\Delta\omega$. La valeur de k_{pa} au centre de la bande est choisie égale à 10^{-2} et 10^{-1} respectivement pour les FIG. 22 (a) et (b).

Nous retrouvons la même tendance que pour les profils angulaires. Lorsque la largeur augmente, nous passons progressivement du cas non absorbant au cas absorbant. Nous observons de plus un épaulement pour les temps longs positifs ou négatifs visible pour des largeurs de bande entre 0.1 et $0.5\Delta\omega$.

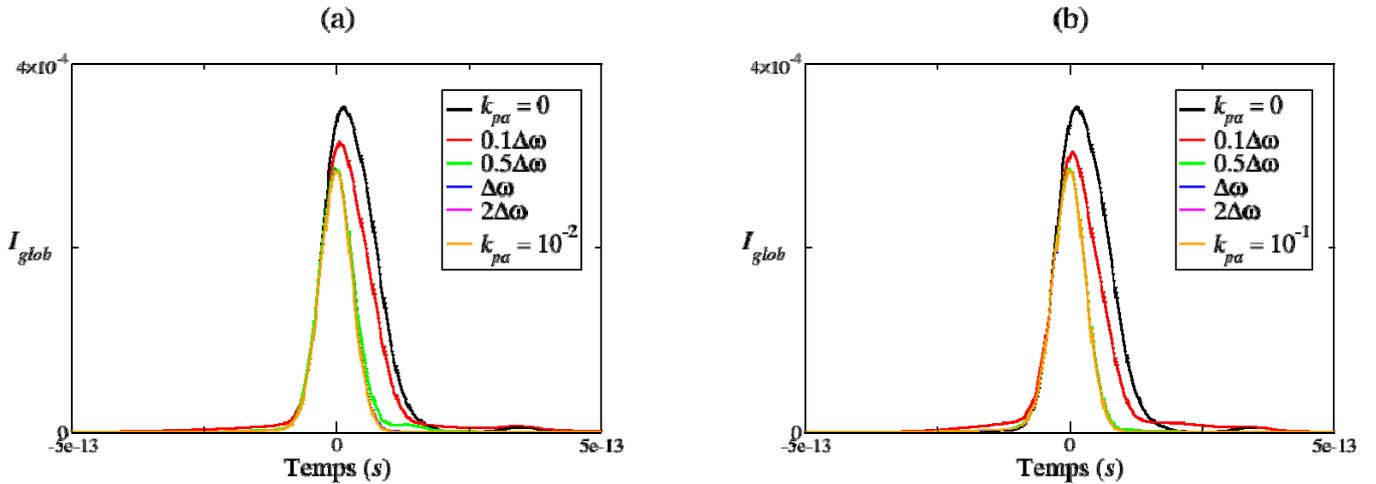


FIG. 22 : I_{glob} en fonction du temps pour une particule de $50 \mu\text{m}$ non absorbante, d'absorption constante et possédant une bande d'absorption de largeur variable où k_{pa} au centre de la bande est égal à (a) 10^{-2} puis à (b) 10^{-1} .

Nous voulons connaître l'implication des différents modes de Debye pour ce phénomène. Pour cela, nous étudions la variation de I_{glob} total et des trois premiers modes de Debye pour une largeur de $0.1\Delta\omega$ avec un k_{pa} de 10^{-1} au centre de la bande (FIG. 23). Nous traçons aussi I_{glob} sans absorption ou avec une absorption constante. Lors de la section précédente, nous avons observé que le mode 0 n'était pas du tout modifié par une absorption constante dans la particule. Nous vérifions ici que c'est toujours le cas lorsque nous considérons une bande d'absorption (FIG. 23 (b)). La fonction de phase étant principalement gouvernée par le mode 0 et le mode 1, il est alors légitime d'observer que l'épaulement temporel est dû au mode 1 (FIG. 23 (c)). Le retard positif du mode 1 s'étend jusqu'au retard du mode 2. L'intensité du mode 2 est très faible et elle est noyée dans celle du mode 1 après l'élargissement temporel dû à la bande d'absorption.

Pour la largeur de bande de $0.1\Delta\omega$, nous souhaitons savoir si l'épaulement de I_{glob} du mode 1 est dû à la phase ou au module de $M_{11}(\omega, \theta)$ (lors du calcul de $M_{11}(t, \theta)$). Pour cela, nous appliquons d'abord une bande d'absorption uniquement dans le module puis uniquement dans l'argument (détail du calcul présenté à l'annexe A). Nous comparons ces deux cas intermédiaires à I_{glob} sans absorption et avec la bande (FIG. 24). Bien que l'effet d'une bande sur l'argument existe (courbe jaune), nous constatons que l'effet sur le module domine et suffit à lui seul à créer la modification de I_{glob} (courbes rouge et bleue confondues). L'effet principal à prendre en compte est équivalent par analogie à une figure de diffraction obtenue par une bande fine coupant le centre d'un faisceau laser. La particule vient ici supprimer partiellement l'énergie lumineuse située au centre du spectre et provoque alors un épaulement temporel. Nous souhaitons maintenant vérifier que cet épaulement temporel en particulier, et l'effet de bande en général, n'a pas d'impact sur le profil angulaire stationnaire de l'énergie diffusée. Pour cela, nous allons intégrer temporellement une fonction de phase avec une bande d'absorption et l'approximer par une fonction de phase stationnaire obtenue avec un k_{pa} effectif constant que nous ajusterons.

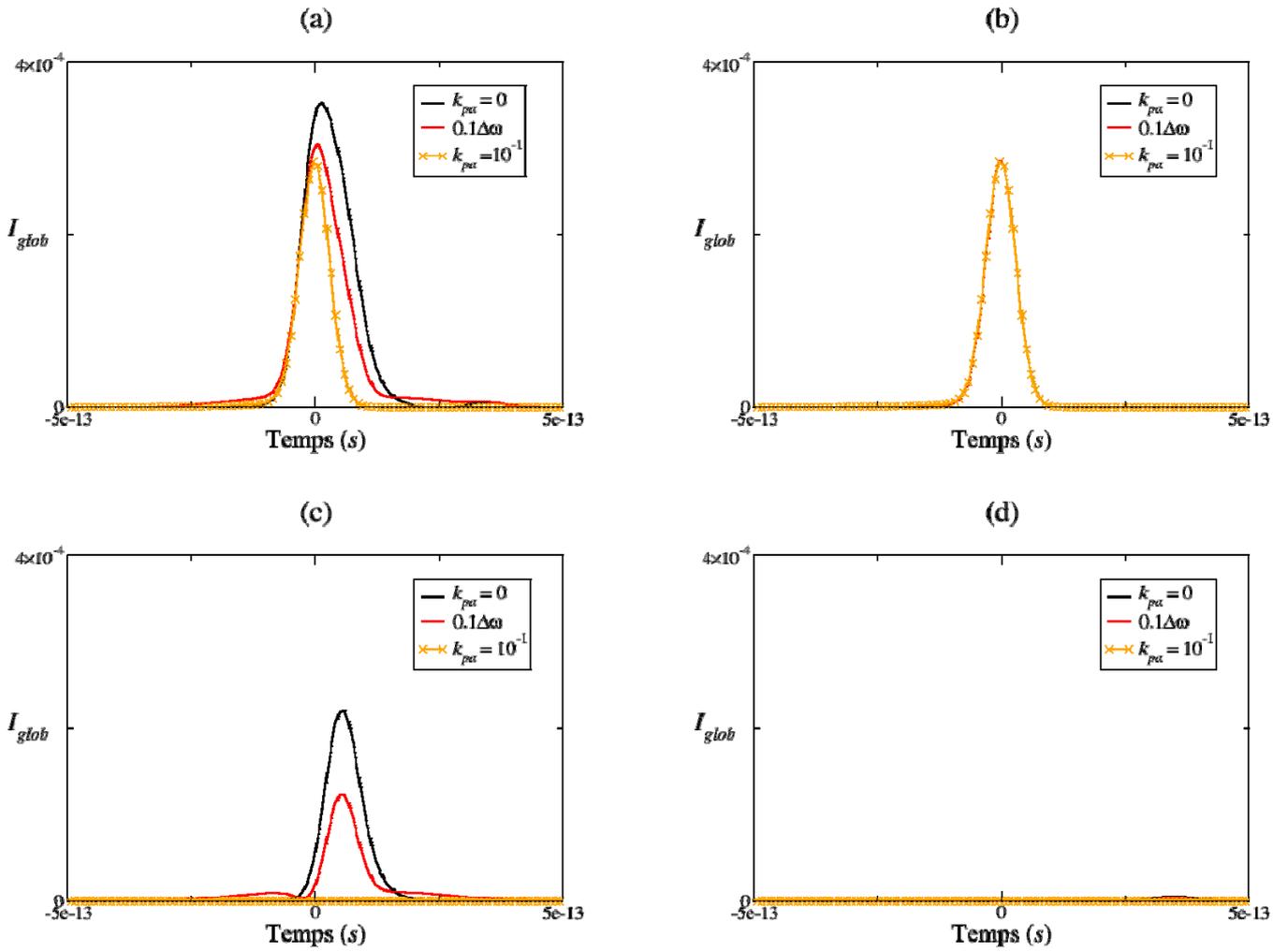


FIG. 23 : Répartition des modes de Debye pour une largeur de bande égale à $0.1\Delta\omega$ avec $k_{pa}=10^{-1}$ au centre de la bande, pour une absorption nulle et constante de 10^{-1} . I_{glob} (a) total, (b) du mode 0, (c) du mode 1 et (d) du mode 2.

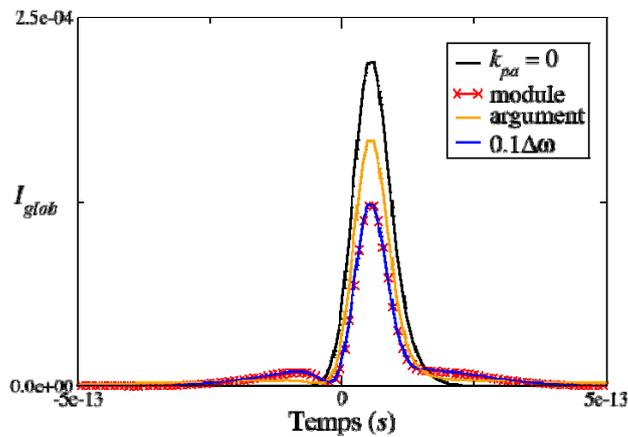


FIG. 24 : I_{glob} du mode 1 en fonction du temps pour une largeur de bande de $0.1\Delta\omega$. Les courbes bleue et rouge sont confondues.

3.3. Ajustement du profil angulaire avec un k_{pa} effectif

Dans les cas limites (large et fine bandes d'absorption), les fonctions de phase stationnaires peuvent être remplacées par celles obtenues avec et sans absorption. La question est de savoir si les fonctions de phase pour une largeur intermédiaire de bande peuvent être approximées à l'aide d'un k_{pa} effectif. Pour cela, nous déterminons l'écart ε .

$$\varepsilon(\%) = 100 \frac{\int_0^\pi |M_{11,b}(\theta) - M_{11,cst}(\theta)| d\theta}{\int_0^\pi M_{11,b}(\theta) d\theta} \quad (1.7)$$

où les indices b et cst correspondent respectivement à une bande d'absorption avec $k_{pa}=10^{-3}$ ou 10^{-1} au centre de la bande et à une absorption constante. Nous cherchons, pour chaque largeur, le k_{pa} effectif qui minimise cet écart. Nous résumons, dans TAB. 2 et TAB. 3, la largeur de la bande d'absorption, le k_{pa} effectif ainsi que l'écart minimal correspondant. Pour l'ensemble des largeurs intermédiaires considérées, nous trouvons un k_{pa} effectif capable d'ajuster convenablement $M_{11,b}$. L'écart est effectivement dans le pire des cas de quelques pour mille. Pour $k_{pa}=10^{-1}$ au centre de la bande, cette écart est plus important. Nous représentons $M_{11,b}(\theta)$ et $M_{11,cst}(\theta)$ pour les cas les plus problématiques et l'accord est tout à fait satisfaisant (FIG. 25). Nous avons donc vérifié qu'il n'y avait pas d'effet de bande spectrale en tant que tel sur les fonctions de phase stationnaires car nous pouvons tout à fait les retrouver avec un k_{pa} effectif. Autrement dit, l'épaulement temporel observé précédemment est bien gommé lorsque nous intégrons la fonction de phase dans le temps.

Largeur de bande	$0.1\Delta\omega$	$0.2\Delta\omega$	$0.5\Delta\omega$	$\Delta\omega$
k_{pa} effectif	10^{-4}	$2.1 \cdot 10^{-4}$	$5.2 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-4}$
ε_{min} (%)	$3.9 \cdot 10^{-2}$	$6.6 \cdot 10^{-2}$	$7.8 \cdot 10^{-2}$	$3.9 \cdot 10^{-2}$

TAB. 2 : Valeur minimale de ε ainsi que le k_{pa} équivalent correspondant pour chaque largeur de bande avec $k_{pa}=10^{-3}$ au centre de la bande.

Largeur de bande	$0.1\Delta\omega$	$0.2\Delta\omega$	$0.5\Delta\omega$	$\Delta\omega$
k_{pa} effectif	$4 \cdot 10^{-4}$	$9.5 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-2}$
ε_{min} (%)	$2.8 \cdot 10^{-1}$	$4.1 \cdot 10^{-1}$	$5.8 \cdot 10^{-2}$	$7.0 \cdot 10^{-3}$

TAB. 3 : Valeur minimale de ε ainsi que le k_{pa} équivalent correspondant pour chaque largeur de bande avec $k_{pa}=10^{-1}$ au centre de la bande.

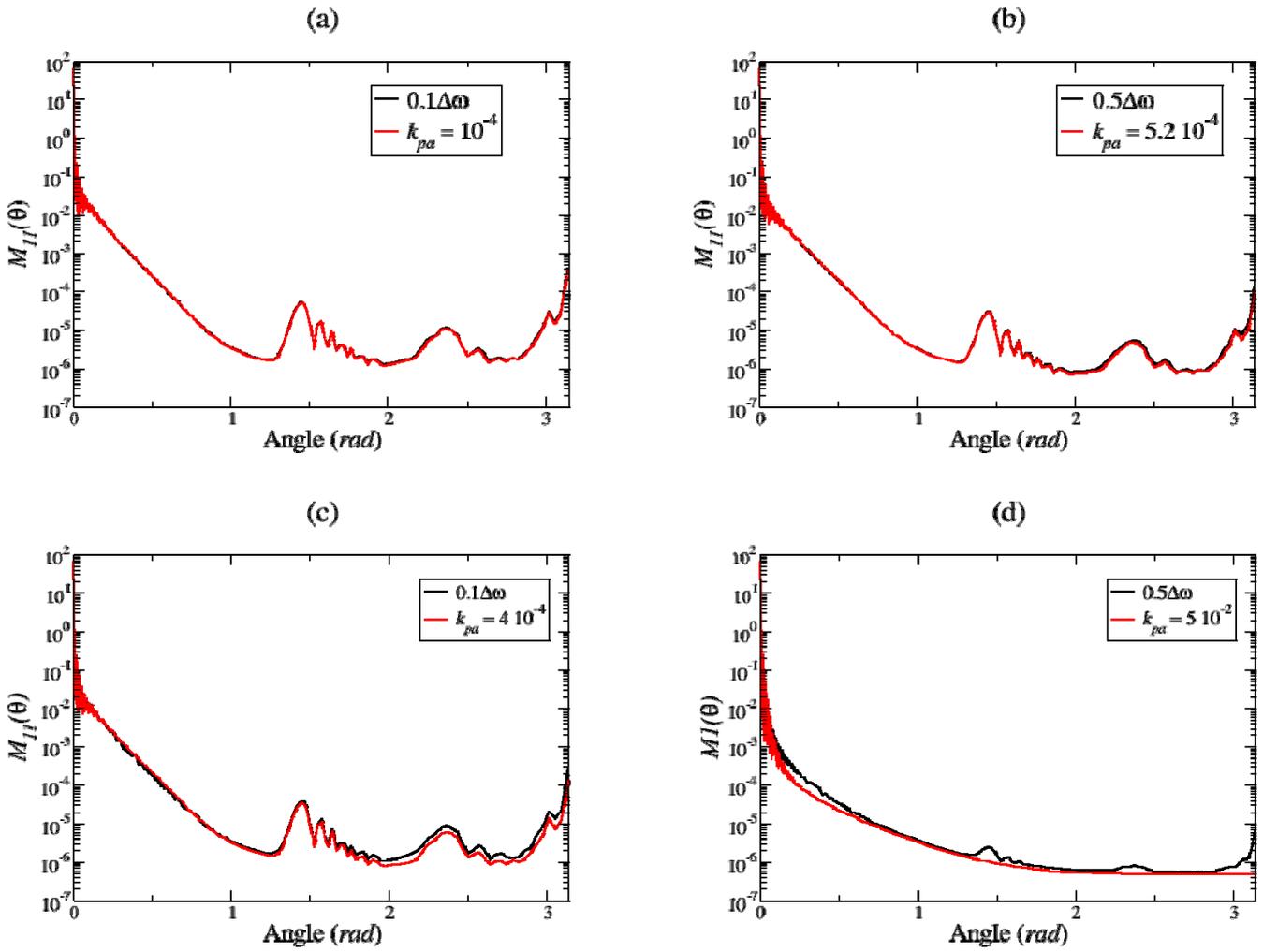


FIG. 25 : $M_{11}(\theta)$ en fonction de θ pour une particule de $50 \mu\text{m}$ avec une bande absorption de largeur égale à (a) $0.1\Delta\omega$, (b) $0.5\Delta\omega$ où $k_{pa}=10^{-3}$ au centre de la bande, (c) $0.1\Delta\omega$ et (d) $0.5\Delta\omega$ où $k_{pa}=10^{-1}$ au centre de la bande.

4. SYNTHÈSE DU CHAPITRE 1

L'objectif de ce chapitre est d'étudier l'influence de l'absorption sur la fonction de phase temporelle. Pour ce faire, nous avons d'abord rappelé le formalisme en l'absence d'absorption. Nous avons de plus introduit et calculé des paramètres d'intérêt tel que le facteur d'asymétrie, le poids des modes de Debye et le temps moyen passé à l'intérieur de la particule. Nous avons constaté qu'une variation de la longueur d'onde modifie très peu la répartition temporelle de l'énergie diffusée pour un rayon donné. A l'inverse, une augmentation du contraste d'indice étale angulairement et temporellement les modes de diffusion interne ($p \geq 1$). Nous nous sommes aussi intéressés aux effets de la dispersion et nous en avons conclu qu'il n'est pas nécessaire de la prendre en compte par la suite pour les milieux que nous étudierons expérimentalement.

Nous avons étendu la définition de la fonction de phase temporelle et des paramètres d'intérêt en présence d'absorption. Nous avons d'abord étudié les effets d'une absorption constante. Lorsque la particule est absorbante, les modes de Debye internes à la particule sont tués. Seul le mode 0 reste. La fonction de phase est alors plus piquée vers l'avant et centrée sur le retard zéro. Lorsque le liant est absorbant, les modes de Debye internes à la particule ne sont pas affectés en diffusion avant. Le mode 1 devient prédominant. En rétrodiffusion, les modes 0 et 2 demeurent. Ces modifications ont directement un impact sur le temps de vol des photons dans le milieu. Dans un grand nombre de cas de figure, l'impact de l'absorption sur les fonctions de phase temporelles engendre une diminution globale du temps de vol des photons. L'impact relatif de cet effet par rapport à celui de l'albédo et du coefficient d'extinction sera étudié par la suite dans ce manuscrit.

Pour finir, nous avons modélisé une bande d'absorption de largeur variable dans la particule. Nous avons observé un effet temporel uniquement pour les bandes d'absorption dont la largeur est du même ordre de grandeur que celle de l'impulsion femtoseconde. Il s'agit d'un épaulement temporel de l'intensité dû à la variation du module du mode 1. D'un point de vue angulaire, nous avons montré que la fonction de phase tracée pour une largeur de bande donnée peut être ajustée à l'aide d'un k_{pa} effectif.

CHAPITRE 2 : INFLUENCE DE L'ABSORPTION SUR LE COEFFICIENT D'EXTINCTION ET L'ALBEDO

L'objectif de ce chapitre est d'étudier l'impact de l'absorption sur le coefficient d'extinction K_{ext} et l'albédo Ω . Le coefficient d'extinction est directement lié à la loi de Beer-Lambert et gouverne la distance de propagation avant extinction (*i.e.* absorption ou diffusion). L'albédo correspond au rapport entre l'énergie diffusée et l'énergie éteinte par le milieu. Un milieu très diffusant a un albédo proche de 1. A l'inverse, un milieu très absorbant a un albédo proche de 0. Le coefficient d'extinction et l'albédo, associés à la fonction de phase temporelle, sont les données d'entrée du code de Monte-Carlo que nous utilisons pour simuler les profils temporels de diffusion. Lorsqu'il n'y a de l'absorption que dans la particule, la théorie de Mie reste valable et le calcul de K_{ext} et Ω est direct à partir des sections efficaces de diffusion et d'extinction. Lorsque le liant devient absorbant, nous ne pouvons plus définir de sections efficaces [25] et le calcul de ces deux grandeurs n'est plus possible car il est impossible de définir des flux diffusé et absorbé de manière absolue. La première partie de ce chapitre consiste à définir, pour un milieu où seule la particule absorbe, les différents flux (diffusé, absorbé et éteint) par la particule. Ce faisant, nous en déduisons directement K_{ext} et Ω . Dans une deuxième partie, nous étendons ce formalisme au cas d'un liant absorbant, en fixant une surface de contrôle confondue à la particule pour le calcul des différents flux. Cette hypothèse simplificatrice nous permet alors de définir des sections efficaces apparentes pour un milieu où le liant est absorbant, puis d'en déduire une expression respectivement pour K_{ext} et Ω . Nous comparons notre approche par rapport à d'autres modèles existants dans la littérature. La dernière partie de ce chapitre est consacrée à l'influence du nombre de particules par unité de volume, du rayon des particules ainsi que de l'absorption dans la particule et dans le liant sur les deux paramètres K_{ext} et Ω .

1. EVOLUTION DES PARAMETRES RADIATIFS EN PRESENCE D'ABSORPTION DANS LES PARTICULES

1.1. Définition des paramètres radiatifs

Considérons un milieu composé de particules (de taille unique) dans un liant. Nous considérons ici une onde incidente monochromatique. La largeur spectrale des impulsions femtoseconde n'a qu'un effet marginal sur la détermination des paramètres radiatifs de ce chapitre [8], équivalent à une moyenne spectrale des oscillations rapides des différents flux avec la longueur d'onde. Nous définissons une sphère de contrôle Σ de rayon r supérieur à celui de la particule (FIG. 26).

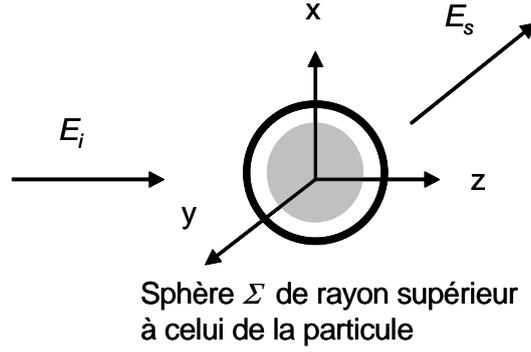


FIG. 26 : Représentation de la sphère de contrôle Σ (cercle noir) de rayon supérieur à celui de la particule (sphère grise). E_i est le champ électrique incident et E_s le champ électrique diffusé.

A l'aide de cette sphère, nous pouvons définir les différents flux sortant. W_i est le flux qui serait absorbé dans un volume de liant égal à celui de la particule en l'absence de celle-ci. Ce flux dépend uniquement de n_{li} et de k_{li} . W_{sca} est le flux sortant du vecteur de Poynting diffusé. W_{abs} est le flux sortant du vecteur de Poynting total externe. Il est aussi égal à l'énergie absorbée à l'intérieur de la sphère de contrôle. W_{ext} est le flux qui apparaît lorsque nous développons le flux W_{abs} et que nous identifions W_{sca} et W_i .

$$W_i = -\int_{\Sigma} \frac{1}{2} [\vec{E}_i \wedge \vec{H}_i] \vec{n} ds$$

$$W_{sca} = \int_{\Sigma} \frac{1}{2} [\vec{E}_s \wedge \vec{H}_s] \vec{n} ds$$

$$W_{abs} = -\int_{\Sigma} \frac{1}{2} [(\vec{E}_s + \vec{E}_i) \wedge (\vec{H}_s + \vec{H}_i)] \vec{n} ds \quad (2.1)$$

$$W_{abs} = -\int_{\Sigma} \frac{1}{2} [\vec{E}_i \wedge \vec{H}_i] \vec{n} ds - \int_{\Sigma} \frac{1}{2} [\vec{E}_s \wedge \vec{H}_s] \vec{n} ds - \int_{\Sigma} \frac{1}{2} [(\vec{E}_s \wedge \vec{H}_i) + (\vec{E}_i \wedge \vec{H}_s)] \vec{n} ds$$

$$W_{abs} = W_i + W_{ext} - W_{sca} \quad \text{où} \quad W_{ext} = -\int_{\Sigma} \frac{1}{2} [(\vec{E}_s \wedge \vec{H}_i) + (\vec{E}_i \wedge \vec{H}_s)] \vec{n} ds$$

où (\vec{E}_i, \vec{H}_i) sont les champs incidents et (\vec{E}_s, \vec{H}_s) les champs diffusés. **Pour un liant non absorbant** et une particule absorbante, le terme W_i est nul. Les flux sont conservatifs et donc le calcul des différents flux ne dépend pas du rayon de la sphère de contrôle. Dans le cadre de la théorie de Mie [24], le rayon de la sphère de contrôle doit être très grand afin d'effectuer le calcul en champ lointain. Afin de calculer les différentes sections, nous devons normaliser les flux par l'intensité incidente I_i .

$$\sigma = \frac{W}{I_i} \quad \text{où} \quad I_i = \frac{|E_o|^2 \text{Re}(k)}{2\omega\mu} \quad (2.2)$$

où k est le nombre d'onde, μ la perméabilité du liant, ω la fréquence angulaire et $|E_0|^2$ l'énergie incidente. Nous pouvons calculer les sections efficaces de diffusion σ_{sca} , d'extinction σ_{ext} et d'absorption σ_{abs} .

$$\begin{aligned}\sigma_{ext} &= \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n) \\ \sigma_{sca} &= \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \\ \sigma_{abs} &= \sigma_{ext} - \sigma_{sca}\end{aligned}\tag{2.3}$$

où a_n et b_n sont les coefficients de diffusion externe dont la formulation est fournie à l'annexe A. Cette formulation reste valable en présence d'absorption dans les particules [23]. Ces différentes sections efficaces nous permettent de définir le coefficient d'extinction K_{ext} et l'albédo Ω .

$$\begin{aligned}K_{ext} &= N_p \sigma_{ext} \\ \Omega &= \frac{\sigma_{sca}}{\sigma_{ext}} \quad \text{où} \quad \sigma_{ext} = \sigma_{sca} + \sigma_{abs}\end{aligned}\tag{2.4}$$

où N_p est le nombre de particules par unité de volume. Sans absorption dans la particule, la section efficace d'absorption est nulle. Par conséquent, les sections efficaces de diffusion et d'extinction sont égales et l'albédo vaut 1.

1.2. Impact de l'absorption des particules

Nous nous intéressons à l'influence de l'absorption des particules sur les différentes sections efficaces. Comme pour la fonction de phase temporelle, nous pouvons employer la décomposition des coefficients a_n et b_n à l'aide des modes de Debye (introduits dans le chapitre précédent) afin de diviser la section efficace de diffusion en sections efficaces partielles de diffusion (σ_{sca}^0 et σ_{sca}^1). Nous représentons (FIG. 27) l'ensemble de ces sections efficaces pour des particules ($n_{pa}=1.45$) de rayon $R=2.5$ puis $7.5 \mu m$ plongées dans un liant non absorbant ($k_{li}=0$) d'indice $n_{li}=1.33$ à $\lambda=800 nm$. Pour le reste du chapitre, nous utilisons les mêmes indices pour le liant et la particule ainsi que la même longueur d'onde.

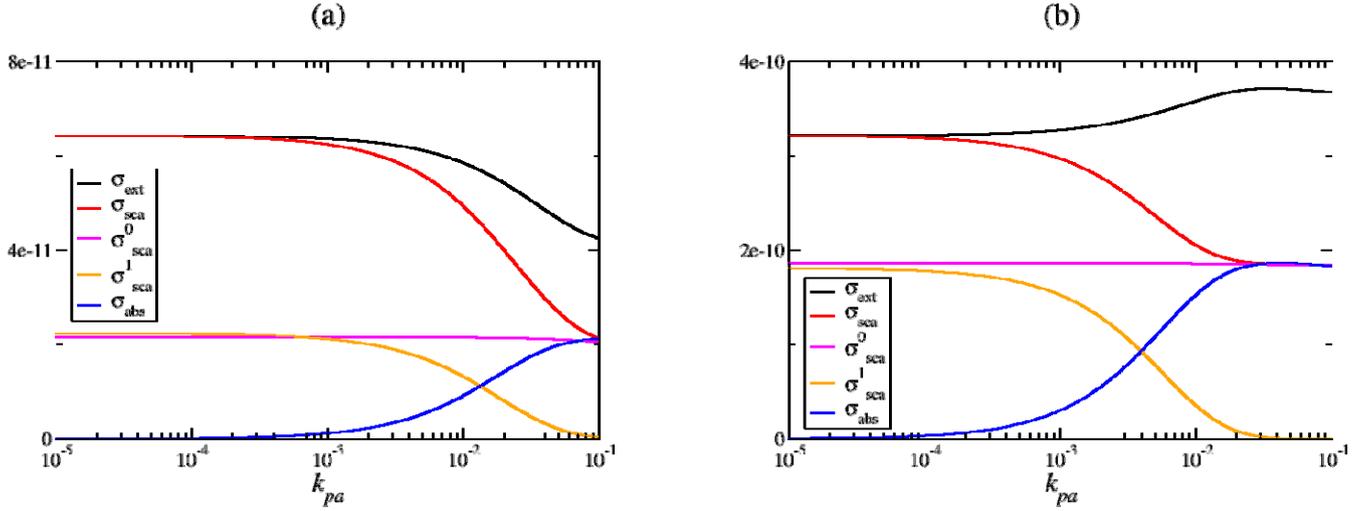


FIG. 27 : σ_{ext} totale, σ_{sca} totale et partielle et σ_{abs} totale en fonction de k_{pa} pour (a) $R=2.5 \mu m$ et (b) $R=7.5 \mu m$.

Pour les deux rayons considérés, nous constatons une augmentation de la section efficace d'absorption et une diminution de la section efficace de diffusion avec k_{pa} . L'énergie initialement diffusée par le mode 1 est absorbée par la particule. Ce transfert intervient d'autant plus vite que la particule est grande. La section efficace partielle de diffusion du mode 0 reste quant à elle inchangée. Ces résultats représentent une réécriture du rapport I_1/I_0 exposé au chapitre 1. L'apport par rapport au précédent chapitre concerne l'évolution de la section efficace d'extinction. Les deux effets (diminution de la diffusion et augmentation de l'absorption) ne se compensent pas totalement. Nous observons une augmentation résiduelle de σ_{ext} pour $R=7.5 \mu m$ (et une diminution pour $R=2.5 \mu m$). En fait, la variation de σ_{ext} avec k_{pa} dépend fortement du paramètre de taille. Pour le comprendre, nous traçons l'efficacité d'extinction q_{ext} ($=\sigma_{ext}/(\pi R^2)$) en fonction du rayon des particules (FIG. 28). Sans absorption, nous observons trois régimes [59]. Pour de petits rayons de particules, q_{ext} augmente ce qui correspond au régime de Rayleigh. Lorsque nous continuons à augmenter le rayon, des oscillations apparaissent [60][61] et nous sommes dans le régime de Mie. Pour finir, lorsque les particules sont grosses, q_{ext} tend vers 2 (paradoxe d'extinction [24]) et cela correspond au régime géométrique. Lorsque k_{pa} augmente, les oscillations diminuent jusqu'à disparaître. C'est le phénomène dit d'« absorption edge » [24]. Nous remarquons que q_{ext} et par conséquent σ_{ext} diminue ou augmente avec k_{pa} , selon le rayon considéré.

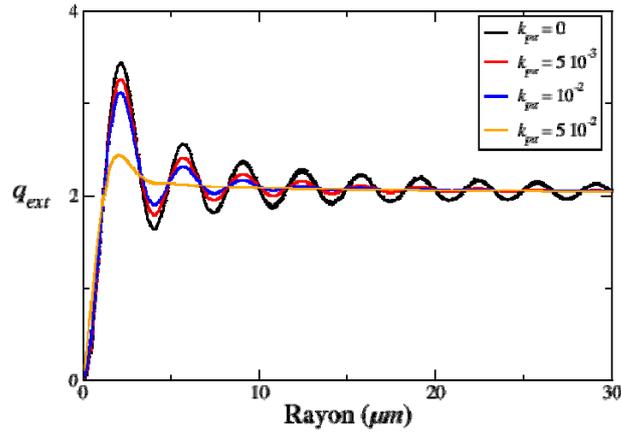


FIG. 28 : Evolution de q_{ext} en fonction du rayon pour plusieurs k_{psa} .

Afin de comprendre la disparition des oscillations, nous déterminons l'efficacité d'extinction pour les modes 0 et 1 de Debye. Nous traçons q_{ext} , q_{ext}^0 et $q_{ext}^0 + q_{ext}^1$ avec et sans absorption (FIG. 29). Sans absorption, l'évolution de $q_{ext}^0 + q_{ext}^1$ coïncide avec celle de q_{ext} excepté pour le régime de Rayleigh où il faut tenir compte d'un nombre de modes de Debye supérieurs à 2 pour définir l'efficacité d'extinction. En présence d'absorption, l'évolution de l'efficacité d'extinction total se confond avec celle du mode 0 au-delà d'un certain rayon, vu que le mode 1 est totalement détruit en présence d'absorption pour les grandes tailles de particule. Nous pouvons en déduire que la disparition des oscillations est corrélée à la destruction du mode 1 en présence d'absorption dans la particule.

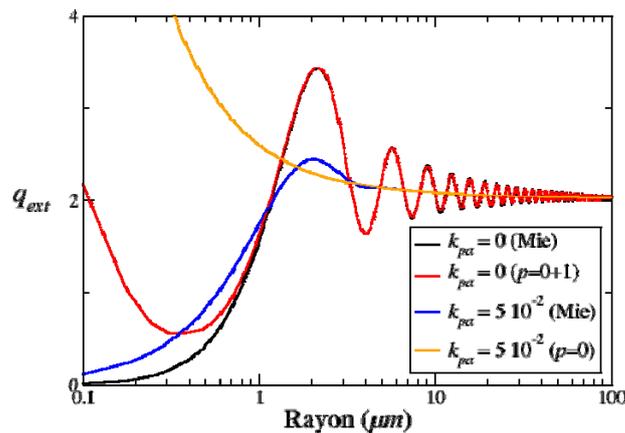


FIG. 29 : Evolution de q_{ext} en fonction du rayon. q_{ext} total sans et avec absorption (en noir et en bleu), modes 0 + 1 sans absorption (en rouge) et du mode 0 uniquement avec absorption (en orange).

Nous souhaitons illustrer l'impact de l'« absorption edge » sur les variations relatives de σ_{ext} (égales à celles de K_{ext} ou de q_{ext}). Pour cela, nous déterminons l'écart relatif ε :

$$\varepsilon = \frac{\sigma_{ext}(k_{pa} \neq 0) - \sigma_{ext}(k_{pa} = 0)}{\sigma_{ext}(k_{pa} \neq 0)}$$

Nous traçons cet écart (FIG. 30) en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particule. Nous constatons que cet effet peut être conséquent, près de 60 % d'effet pour $R=2.5 \mu m$. Notons que cet écart relatif tend vers 0 pour de grand rayon de particules. En effet, pour de forts rayons de particule, q_{ext} est proche de 2 quel que soit k_{pa} (FIG. 28).

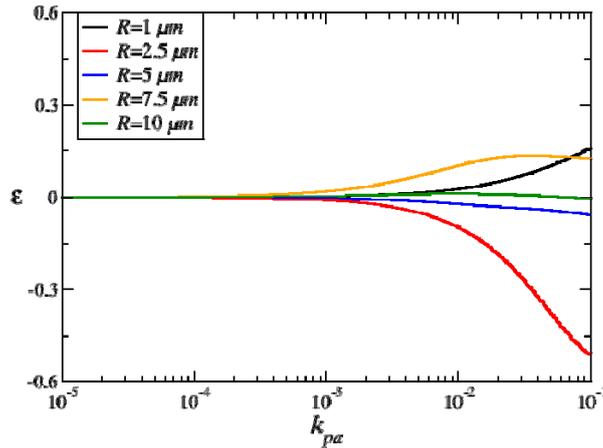


FIG. 30 : Ecart relatif ε en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particule.

Après s'être intéressé au coefficient d'extinction, nous traçons l'albédo en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particules (FIG. 31). Nous avons montré que l'énergie initialement diffusée par le mode 1 est absorbée par la particule. De plus, $\sigma_{sca} = \sigma_{abs} \approx \sigma_{ext} / 2$ pour de fortes absorptions. Nous nous attendons donc à ce que l'albédo (rapport entre σ_{sca} et σ_{ext}) tende vers $1/2$. Pour les quatre rayons de particules et le contraste d'indice choisi, nous constatons bien que l'albédo passe de 1 à $1/2$ lorsque nous augmentons k_{pa} .

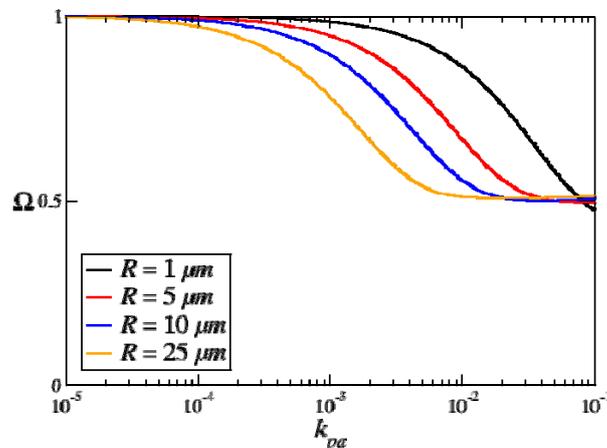


FIG. 31 : Evolution de l'albédo en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particules.

Nous souhaitons étudier à présent le cas de particule plus absorbante en étendant le k_{pa} jusqu'à 10. Nous reportons (FIG. 32 (a)) les sections efficaces de diffusion, d'absorption et d'extinction pour un rayon de $5 \mu m$. Nous retrouvons le même comportement que précédemment pour les faibles absorptions. Pour de fortes absorptions, la tendance s'inverse : σ_{abs} diminue car l'énergie interne et donc l'énergie absorbée à l'intérieur de la particule diminue. En effet, pour de forts k_{pa} , la particule revêt un comportement pseudo métallique (car la partie réelle de la constante diélectrique $n_{pa}^2 - k_{pa}^2$ devient négative) et la propagation de l'onde incidente à l'intérieur de la particule n'est plus possible. A l'inverse, σ_{sca} augmente car comme pour des particules métalliques, l'énergie ne pénètre pas dans la particule et donc est diffusée. Analysons pour finir l'évolution de σ_{ext} ($=\sigma_{sca} + \sigma_{abs}$). Pour les deux phases observées (diminution puis augmentation de σ_{sca}), les deux effets se compensent. σ_{ext} (K_{ext}) reste donc du même ordre de grandeur quel que soit k_{pa} .

L'évolution de l'albédo est plus complexe (FIG. 32 (b)). Pour de faible k_{pa} , nous retrouvons la tendance décrite précédemment. Pour de fort k_{pa} , l'albédo augmente à nouveau et tend vers 1 car l'énergie est diffusée par la particule sans y pénétrer.

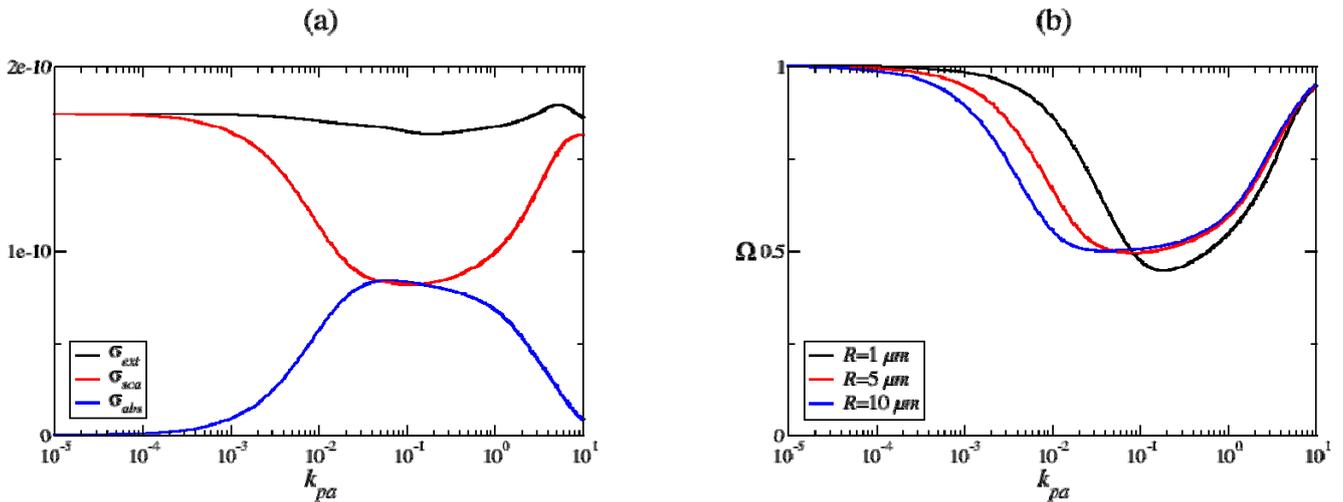


FIG. 32 : (a) Sections efficaces en fonction de k_{pa} pour $R=5 \mu m$. (b) Albédo en fonction de k_{pa} pour plusieurs rayons de particules.

Un résultat important de cette étude est que l'albédo et le coefficient d'extinction présentent des variations modérées et ce même pour de très fortes valeurs de k_{pa} . Nous verrons qu'il n'en est pas de même avec l'absorption dans le liant que nous étudions dans la prochaine section.

2. MODELISATION DE L'ABSORPTION DANS LE LIANT

2.1. Formulation des sections efficaces apparentes

La difficulté majeure en présence d'absorption dans le liant est la définition ainsi que le calcul des sections efficaces. Le passage des flux W (champs rayonnés et/ou incidents à travers une surface de contrôle arbitraire) à la section efficace correspondante est délicat. Le principe consiste effectivement à calculer les champs se propageant et à en déduire les flux sortant d'une sphère de contrôle Σ . En présence d'absorption dans le liant, les flux ne sont pas

conservatifs et dépendent du choix du rayon de la sphère de contrôle ce qui est problématique. Différentes méthodes présentes dans la littérature proposent des alternatives à la théorie de Mie pour le calcul des différentes sections efficaces. Certains auteurs [29–31] utilisent l’approximation en champ lointain. Or, cette approximation pose problème lorsque le liant est très absorbant car l’onde incidente risque de ne jamais rencontrer la particule. D’autres auteurs [32] utilisent une sphère de contrôle dont le rayon est **strictement** supérieur à celui de la particule. Pour s’affranchir du caractère non conservatif des flux, certains auteurs [23][25][33] utilisent une sphère de contrôle **confondue** avec la surface externe de la particule. Nous avons choisi d’adopter cette dernière démarche. **Cette approche nous permet effectivement de nous affranchir des effets du liant sur le calcul des poids relatifs de l’énergie diffusée et absorbée par la particule en réalisant un découplage entre les particules et le liant.** Nous déterminons proprement et de manière locale ces poids et nous en déduisons le coefficient d’extinction et l’albédo de manière globale. L’étape suivante consiste à injecter ces deux paramètres dans la procédure de type Monte Carlo. Les références [23][33] ne tiennent pas compte du flux W_i . Or, nous avons vu que ce terme est nécessaire afin de définir et calculer l’ensemble des flux présents à la surface de la particule. Quant au formalisme défini par la référence [25], il tient bien compte de W_i . C’est pourquoi, nous utilisons par la suite ce formalisme qui fournit une formulation des différents flux. La formulation analytique des différents flux est la suivante.

$$W_i = \pi R^2 \operatorname{Re}(k) \frac{|E_o|^2}{\omega \mu} \frac{1}{\operatorname{Im}(k)R} \left[ch(2 \operatorname{Im}(k)R) - \frac{sh(2 \operatorname{Im}(k)R)}{2 \operatorname{Im}(k)R} \right]$$

$$W_{sca} = \frac{\pi |E_o|^2}{\omega \mu |k|^2} \left\{ \begin{array}{l} \operatorname{Re}(k) \sum_n (2n+1) \operatorname{Re}(-i \xi'_n(kR) \xi_n^*(kR)) [|a_n|^2 + |b_n|^2] \\ + \operatorname{Im}(k) \sum_n (2n+1) \operatorname{Im}(-i \xi'_n(kR) \xi_n^*(kR)) [|a_n|^2 - |b_n|^2] \end{array} \right\}$$

$$W_{ext} = \frac{\pi |E_o|^2}{\omega \mu |k|^2} \sum_n (2n+1) \operatorname{Re} \left[\begin{array}{l} (ik \psi_n^*(kR) \xi'_n(kR) - ik \psi_n'(kR) \xi_n^*(kR)) a_n \\ + (ik \psi_n^*(kR) \xi'_n(kR) - ik \psi_n'(kR) \xi_n^*(kR)) b_n \end{array} \right]$$

Où ψ_n et ξ_n sont les fonctions de Ricatti-Bessel, ψ'_n et ξ'_n leurs dérivées respectives, ψ_n^* et ξ_n^* leurs conjugués respectifs. Afin d’obtenir les sections efficaces, nous avons décidé d’adopter la même normalisation que pour le cas non absorbant (équation (2.2)). Nous diviserons les flux par l’énergie incidente I_i que nous obtiendrions au centre de la particule en ayant préalablement remplacée celle-ci par du liant. Nous en déduisons la section efficace d’absorption à partir des autres d’après la formule (2.1) définie lors du paragraphe précédent.

$$\sigma_{abs} - \sigma_i = \sigma_{ext} - \sigma_{sca} \quad (2.5)$$

Par abus de langage et par analogie avec le cas du liant non absorbant, nous appellerons les grandeurs obtenues des sections efficaces apparentes σ_{abs} , σ_{sca} , σ_i et σ_{ext} , bien qu’il ne soit pas possible en général de définir ces notions dans le cas du liant absorbant [25]. Nous garderons cependant à l’esprit qu’il s’agit de notions délicates à manipuler : la seule opération autorisée est de multiplier I_i par σ afin de calculer les flux W correspondants au

niveau de la sphère de contrôle de rayon R . Dans la prochaine section, nous allons évaluer numériquement les effets de l'absorption sur les différentes sections efficaces apparentes.

2.2. Effet de l'absorption

La section efficace d'absorption σ_{abs} est directement reliée à l'énergie absorbée à l'intérieur de la particule. Comme cette grandeur est calculée indirectement à l'aide des autres sections efficaces (équation (2.5)), nous souhaitons vérifier qu'elle est bien nulle ou résiduelle lorsque k_{pa} est nul. Pour cela, nous traçons le rapport entre σ_{abs} et σ_{ext} pour plusieurs rayons de particules en fonction de l'absorption dans le liant (FIG. 33). Nous constatons que σ_{abs} est bien résiduelle ($\sigma_{abs} \ll \sigma_{ext}$) tant que k_{li} n'excède pas 10^{-2} . Cette figure met en évidence la limite de notre formalisme. Pour des valeurs plus importantes de k_{li} , nous observons que σ_{abs} est négatif et non négligeable par rapport à σ_{ext} (25 % typiquement). L'effet apparaît pour des k_{li} plus faibles dans le cas de gros rayons. En toute rigueur, si nous prenons une valeur résiduelle d'absorption inférieure à 0.5%, la limite vaut $k_{li} < 9 \cdot 10^{-3}$ pour $R=25 \mu m$ et $k_{li} < 4 \cdot 10^{-2}$ pour $R=1 \mu m$. Ces limites s'expliquent par la normalisation que nous avons proposée. L'intensité incidente est, en effet, plus faible que l'intensité réelle au centre de la particule. Un facteur voisin de $\exp(-4\pi(k_{li}-k_{pa})R/\lambda)$ existe entre les deux intensités. Ce facteur devrait provoquer une augmentation systématique des sections efficaces de diffusion et d'absorption quand k_{li} est très supérieur à k_{pa} .

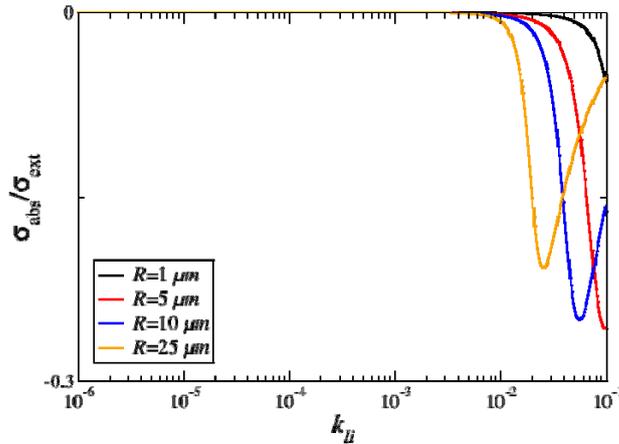


FIG. 33 : Rapport entre σ_{abs} et σ_{ext} en fonction de k_{li} pour différents rayons de particule.

Nous nous plaçons donc dans le cas où les particules sont absorbantes et nous représentons l'effet de k_{li} sur les sections efficaces (FIG. 34). Nous constatons que tant que k_{li} est inférieur à k_{pa} , σ_{sca} diminue et σ_{abs} augmente avec k_{li} . Cet effet est dû au piégeage de l'énergie à l'intérieur de la particule. Nous pouvons comparer ce phénomène à celui observé dans un guide d'onde : un diélectrique transparent est entouré d'un métal très absorbant confinant l'énergie à l'intérieur du diélectrique. Le piégeage entraîne une augmentation du champ à l'intérieur de la particule (augmentation de σ_{abs}) et une diminution de l'énergie diffusée. Pour de forts k_{li} ($k_{li} > k_{pa}$), nous observons donc bien une augmentation mécanique de σ_{sca} et de σ_{abs} liée à notre défaut de normalisation. Nous nous attendons à une compensation de certains de ces effets dans le calcul de σ_{ext} .

Nous représentons (FIG. 35 (a)) l'évolution de σ_{ext} en fonction de k_{li} pour plusieurs k_{pa} . Nous limitons la représentation graphique au domaine de validité identifié plus haut

($k_{li} < 10^{-2}$). Nous constatons que σ_{ext} n'est pas affecté par l'absorption dans les particules. σ_{ext} diminue légèrement avec k_{li} . Nous observons une baisse d'environ 60% pour de très fortes absorptions du liant. L'origine de cette baisse pourrait venir de la destruction du mode 0 de Debye. Cependant, la notion de poids relatif des modes étant très délicate en présence d'absorption, il est difficile de s'en assurer.

Nous représentons l'efficacité d'extinction en présence uniquement d'absorption dans le liant (FIG. 35 (b)). Nous confirmons la baisse globalement de q_{ext} avec k_{li} pour plusieurs rayons [62]. Il est cependant nécessaire d'avoir un fort k_{li} et un rayon important pour observer une diminution notable de l'absorption sur q_{ext} . Contrairement à la FIG. 28, les oscillations ne sont pas modifiées ici quand k_{li} augmente. Cette observation semble confirmer la rémanence du mode 1 (à l'origine des oscillations) alors que le mode 0 semble lui fortement diminuer.

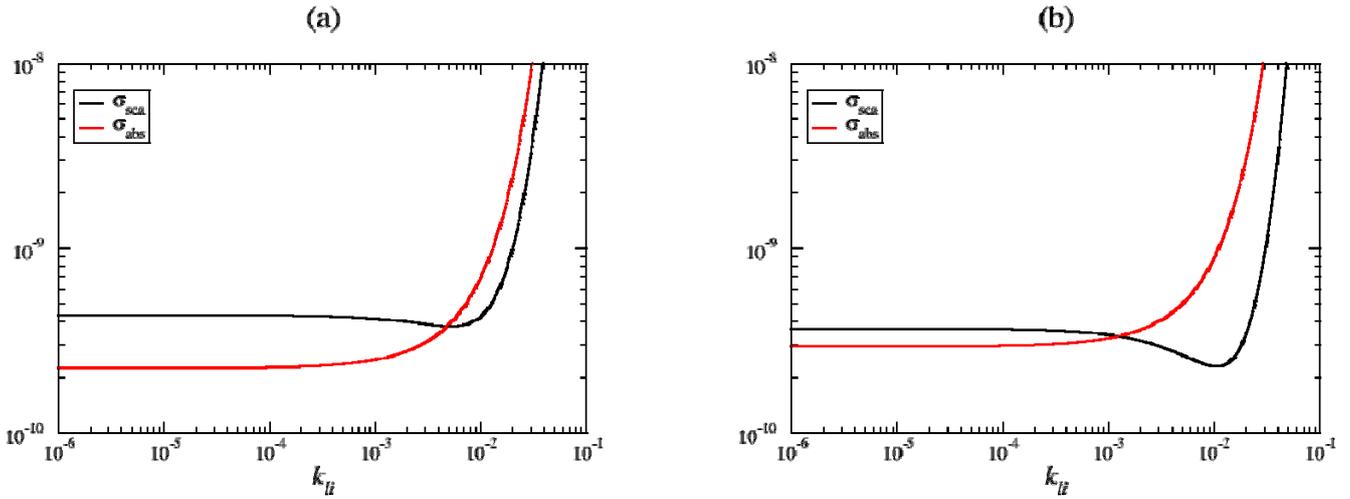


FIG. 34 : Evolution de σ_{sca} et σ_{abs} en fonction de k_{li} pour $R = 10 \mu m$ et (a) $k_{pa} = 5 \cdot 10^{-3}$ et (b) $k_{pa} = 10^{-2}$.

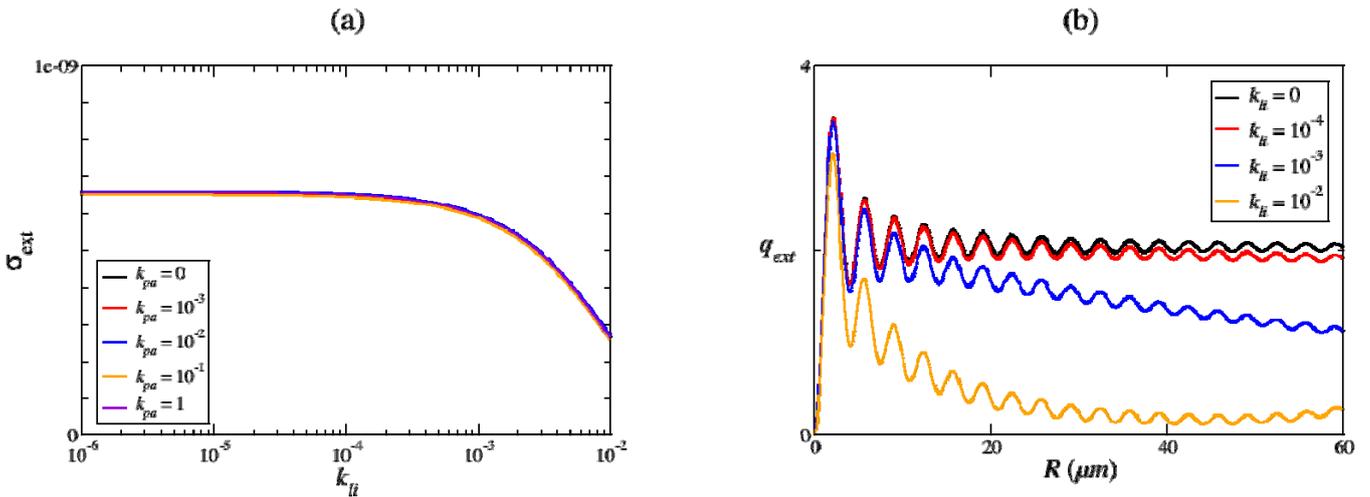


FIG. 35 : (a) Section efficace d'extinction en fonction de k_{li} pour plusieurs k_{pa} et pour $R = 10 \mu m$. (b) Efficacité d'extinction en fonction du rayon pour plusieurs k_{li} .

2.3. Comparaison des différents modèles

Après avoir défini des sections efficaces apparentes et étudié les effets de l'absorption sur elles, nous pouvons donc déterminer naturellement le coefficient d'extinction et l'albédo pour un ensemble de particules de taille unique de la manière suivante :

$$K_{ext} = N_p \sigma_{ext} + \frac{4\pi k_{li}}{\lambda} \quad (2.7)$$

$$\Omega = \frac{N_p \sigma_{sca}}{K_{ext}}$$

Le deuxième terme de l'extinction ($4\pi k_{li}/\lambda$) est dû à l'absorption du liant. Cela s'explique par la dépendance des champs électriques en $\exp(-ik.r)$ avec $k=2\pi(n_{li}+ik_{li})/\lambda$. Donc, lorsque nous prenons le module carré du champ électrique, il apparaît alors une décroissance en $\exp(-4\pi k_{li}/\lambda)$. Nous avons donc rajouté à la main l'absorption du liant dans le calcul de K_{ext} . A l'inverse, la méthode de Fardella [25] ne définit pas de sections efficaces à partir des différents flux car ces flux englobent à la fois les effets de la particule et du liant. Afin d'obtenir le coefficient d'extinction et l'albédo, il utilise les rapports de flux suivants :

$$q_{ext} = \frac{W_{ext}}{W_i}, q_{sca} = \frac{W_{sca}}{W_i} \text{ et } q_{abs} = \frac{W_{abs}}{W_i}$$

$$K_{ext} = \frac{4\pi k_{li}}{\lambda} (1 + xvq_{ext}) \quad (2.8)$$

$$\Omega = \frac{xvq_{sca}}{1 + xvq_{ext}}$$

où xv est la fraction volumique. Nous notons ici, qu'un développement limité de W_i au premier ordre en $4\pi k_{li}R/\lambda$ permet de trouver une équivalence stricte entre les deux modèles [63]. Nous avons de plus vérifié que le domaine de validité de ce développement limité était équivalent au domaine de validité de notre modèle (section efficace d'absorption résiduelle pour $k_{pa}=0$ négligeable par rapport à σ_{ext} (section 2.2)).

En plus de ces deux formalismes, nous avons retenu trois autres méthodes [26–28] nous permettant de calculer K_{ext} et Ω . La **méthode de Kuga** [28] revient à calculer les sections efficaces en faisant l'hypothèse d'un milieu non absorbant. Les formules de Mie sont utilisées et le terme $4\pi k_{li}/\lambda$ pondéré de $(1-xv)$ est rajouté à l'expression du K_{ext} . Cette pondération prend compte de la baisse effective du volume de liant présent dans l'échantillon lorsque nous rajoutons des particules. La **méthode de Brusaglioni** [26] revient à calculer les sections efficaces en remplaçant dans l'équation (2.3) k par $|k|$ pour le calcul de σ_{sca} et k par $Re(k)$ pour σ_{ext} . Comme pour notre méthode, le terme $4\pi k_{li}/\lambda$ est rajouté à l'expression du K_{ext} . Pour la **méthode de Yang** [27], la section σ_{sca} est la même que pour la méthode de Brusaglioni. A l'inverse des autres méthodes, σ_{abs} est calculé directement pour une sphère de contrôle donnée. Nous avons évalué cette expression pour une sphère confondue avec la particule :

$$\sigma_{abs} = \frac{2\pi}{n_{li} k^2} \text{Im}((nli + ikli) \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left[\begin{array}{l} \psi_n(x)\psi_n'^*(x) - \psi_n'(x)\psi_n^*(x) \\ + a_n \xi_n'(x)\psi_n^*(x) + a_n^* \psi_n'(x)\xi_n^*(x) \\ - b_n \psi_n'^*(x)\xi_n(x) - b_n^* \psi_n'(x)\xi_n'^*(x) \\ - |a_n|^2 \xi_n'(x)\xi_n^*(x) + |b_n|^2 \xi_n(x)\xi_n'^*(x) \end{array} \right]$$

La section efficace d'extinction est obtenue en faisant la somme de σ_{abs} et σ_{sca} . Comme précédemment, le terme $4\pi k_{li}/\lambda$ est rajouté à l'expression du K_{ext} . Le calcul de l'albédo pour ces trois dernières méthodes est équivalent au notre (équation (2.7)).

Nous comparons ces différentes méthodes en faisant varier le coefficient d'absorption du liant entre 10^{-6} et 10^{-1} . La fraction volumique est de 5%. Nous traçons le coefficient d'extinction et l'albédo obtenus (FIG. 36 et FIG. 37) en fonction de k_{li} pour deux rayons de particules (1 puis 5 μm). Nous observons que lorsque $4\pi k_{li}R/\lambda$ est faible (k_{li} faible et/ou rayon de particule raisonnable), l'ensemble des méthodes donne le même résultat. A partir du moment où cette limite est dépassée, nous constatons de nettes divergences. Les méthodes de Yang [27] et Bruscaaglioni [26] sont sensiblement différentes pour K_{ext} et l'albédo. Les autres méthodes sont équivalentes pour le K_{ext} mais divergent pour le calcul de l'albédo lorsque k_{li} est supérieur à 10^{-2} . Les trois méthodes qui tentent de calculer des sections efficaces en tenant compte de l'absorption du liant (DOTA, Yang et Bruscaaglioni) donnent les albédos les plus erronés pour de fort k_{li} (albédo aberrant). Ceci confirme qu'il n'est pas recommandé dans l'absolu de définir des sections efficaces dans ces conditions. Notons néanmoins que pour de telles valeurs de k_{li} , la probabilité qu'un photon puisse ressortir du milieu et être détecté expérimentalement est très faible. De plus, nous pouvons nous interroger sur l'applicabilité du formalisme de l'Equation de Transfert Radiatif dans de tels milieux où les distances de propagation très faibles rendent complexes une homogénéisation des paramètres radiatifs. C'est pourquoi, nous nous restreignons au domaine de plus faibles absorptions où les méthodes sont équivalentes.

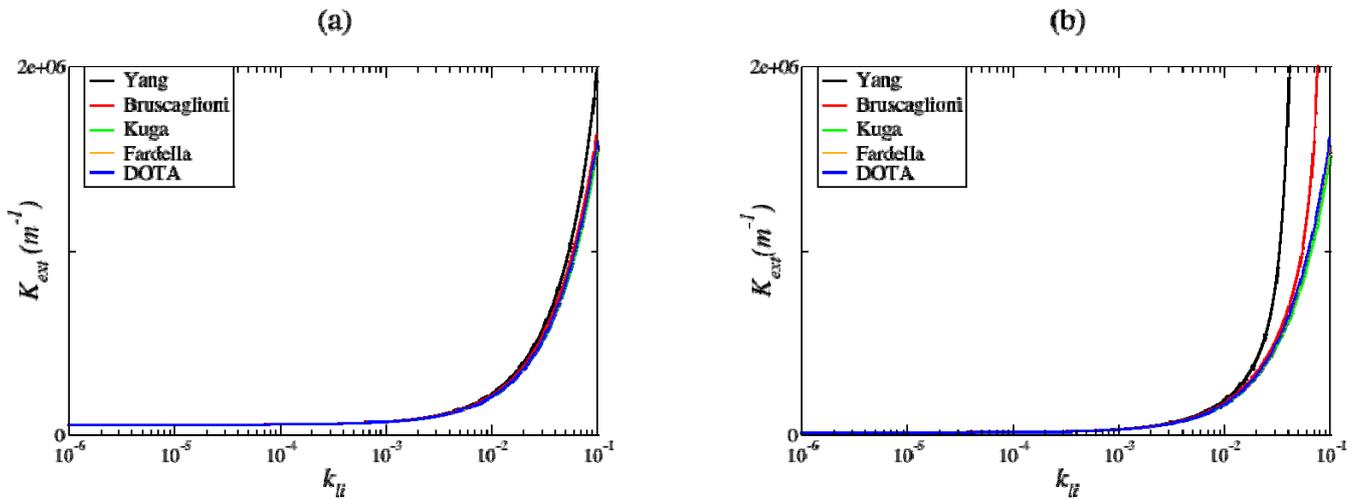


FIG. 36 : Coefficient d'extinction calculé avec les différentes méthodes pour (a) $R=1 \mu m$ et (b) $R=5 \mu m$.

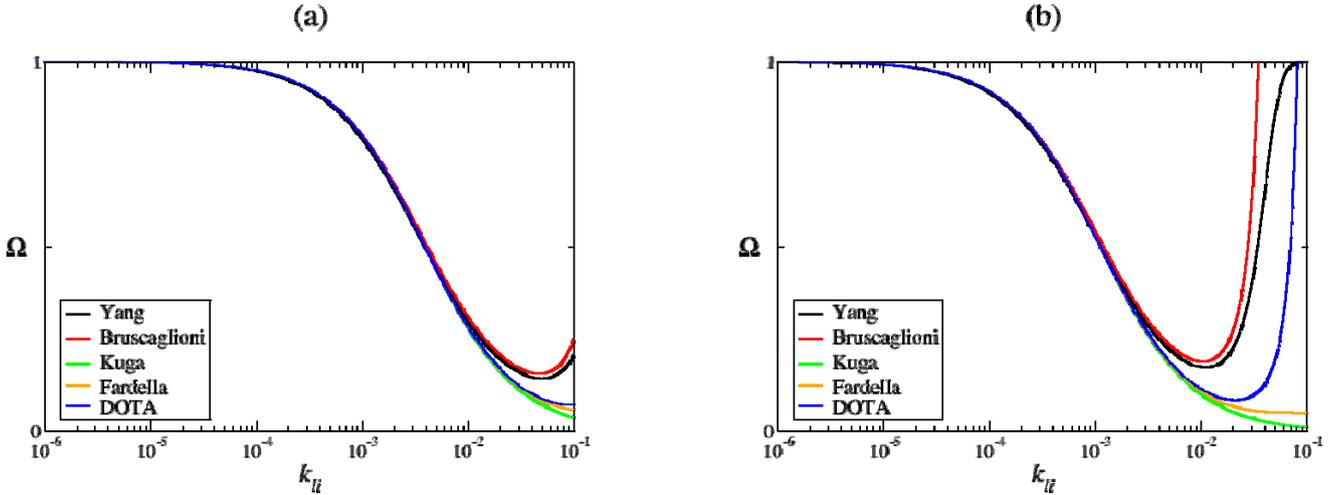


FIG. 37 : Albédo calculé avec les différentes méthodes pour (a) $R=1 \mu\text{m}$ et (b) $R=5 \mu\text{m}$.

3. VARIATION DE K_{EXT} ET Ω

Nous avons montré que les différentes méthodes étaient équivalentes tant que $4\pi k_{li}/\lambda$ reste faible. Nous retenons donc la méthode que nous avons exposée. Nous étudions numériquement, en fonction de k_{li} , les effets du nombre de particule par unité de volume N_p , du rayon de la particule R , puis de l'absorption de la particule k_{pa} .

3.1. Influence de la concentration

Nous étudions les effets du nombre de particules par unité de volume N_p , en fixant les autres paramètres. Pour cette section, les particules sont non absorbantes ($k_{pa}=0$) et le rayon des particules est fixé à $R=1 \mu\text{m}$. Nous traçons le coefficient d'extinction et l'albédo (FIG. 38). Nous constatons que l'augmentation de N_p implique une augmentation du coefficient d'extinction pour de faibles k_{li} . Pour de forts k_{li} , l'écart entre les coefficients d'extinction diminue car le terme $4\pi k_{li}/\lambda$ devient prédominant et il est indépendant de N_p . Nous constatons que, quel que soit N_p , l'albédo diminue de 1 à 0 avec k_{li} . Pour un k_{li} donné, l'augmentation de N_p implique une augmentation de l'albédo. Cela est dû à l'augmentation du poids de la diffusion par rapport à l'absorption.

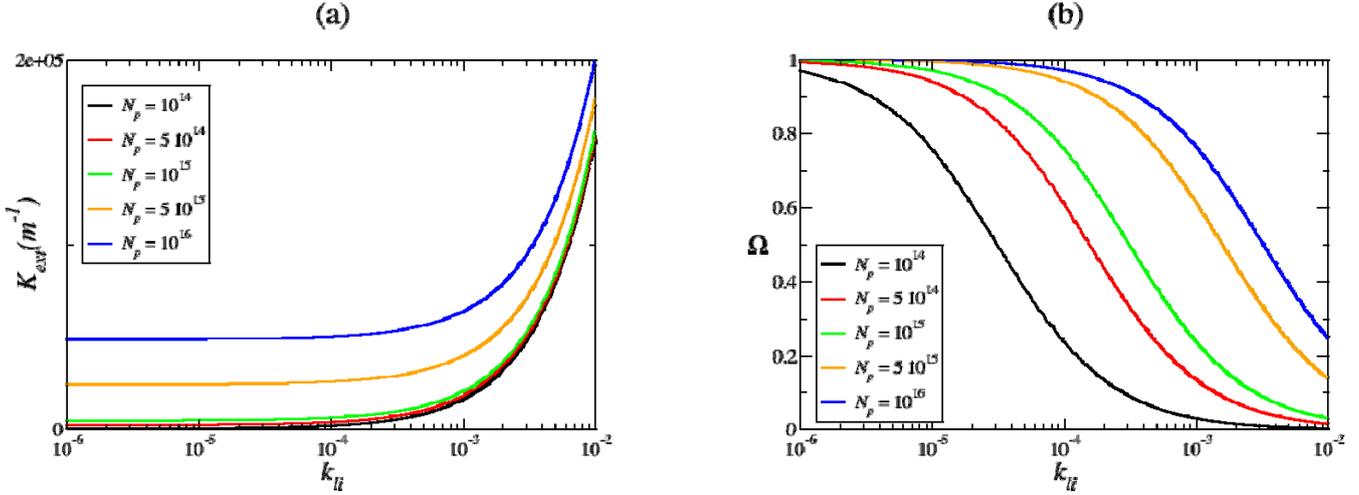


FIG. 38 : (a) Coefficient d'extinction et (b) albédo pour $R=1 \mu\text{m}$ en fonction de k_{li} et pour plusieurs N_p .

3.2. Influence du rayon

Nous faisons varier le rayon de la particule en présence d'absorption dans le liant (FIG. 39). Les particules sont toujours non absorbantes et le nombre de particules par unité de volume est égal à 10^{13} . Nous constatons que le coefficient d'extinction augmente avec le rayon quel que soit k_{li} . Cependant, pour de faibles k_{li} , l'augmentation est nettement plus importante (facteur 100 pour $k_{li}=10^{-6}$ et 1.05 pour $k_{li}=5 \cdot 10^{-3}$). Cette différence s'explique par le fait que dans un régime de faible k_{li} , K_{ext} est dominé par $N_p \sigma_{ext}$ et σ_{ext} varie comme R^2 (si nous négligeons les oscillations de q_{ext} avec R). Au contraire, pour de fort k_{li} , K_{ext} est dominé par $4\pi k_{li}/\lambda$ et est donc indépendant du rayon de la particule. Nous constatons que l'albédo augmente avec le rayon quel que soit k_{li} . Ceci est dû à l'augmentation de σ_{sca} avec le rayon qui l'emporte sur les termes d'absorption.

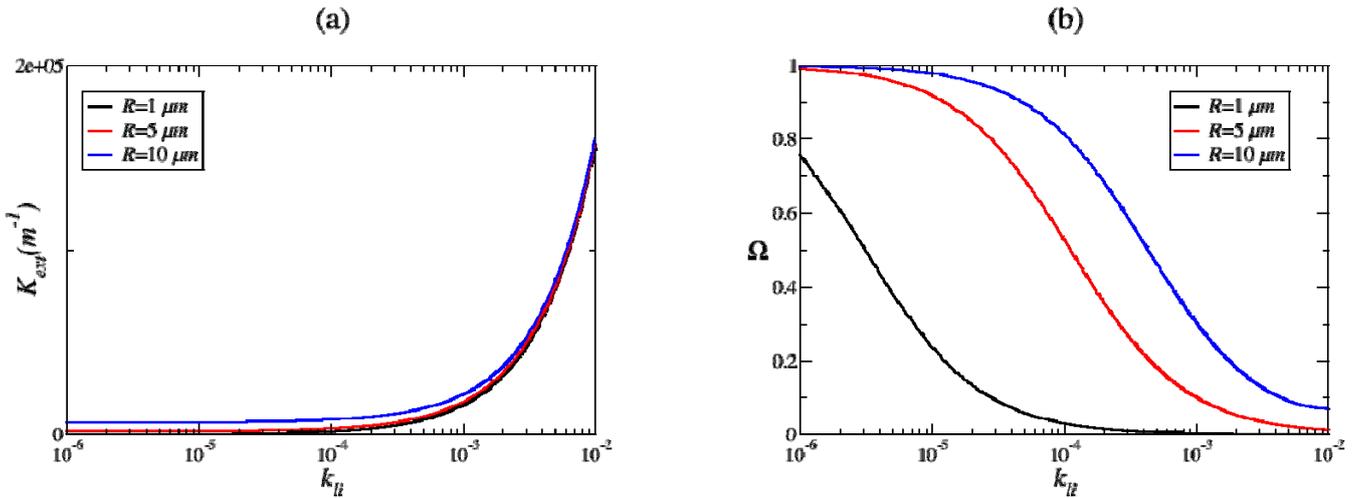


FIG. 39 : (a) Coefficient d'extinction et (b) albédo en fonction de k_{li} , pour $N_p=10^{13}$ et pour plusieurs rayons.

3.3. Influence de l'absorption

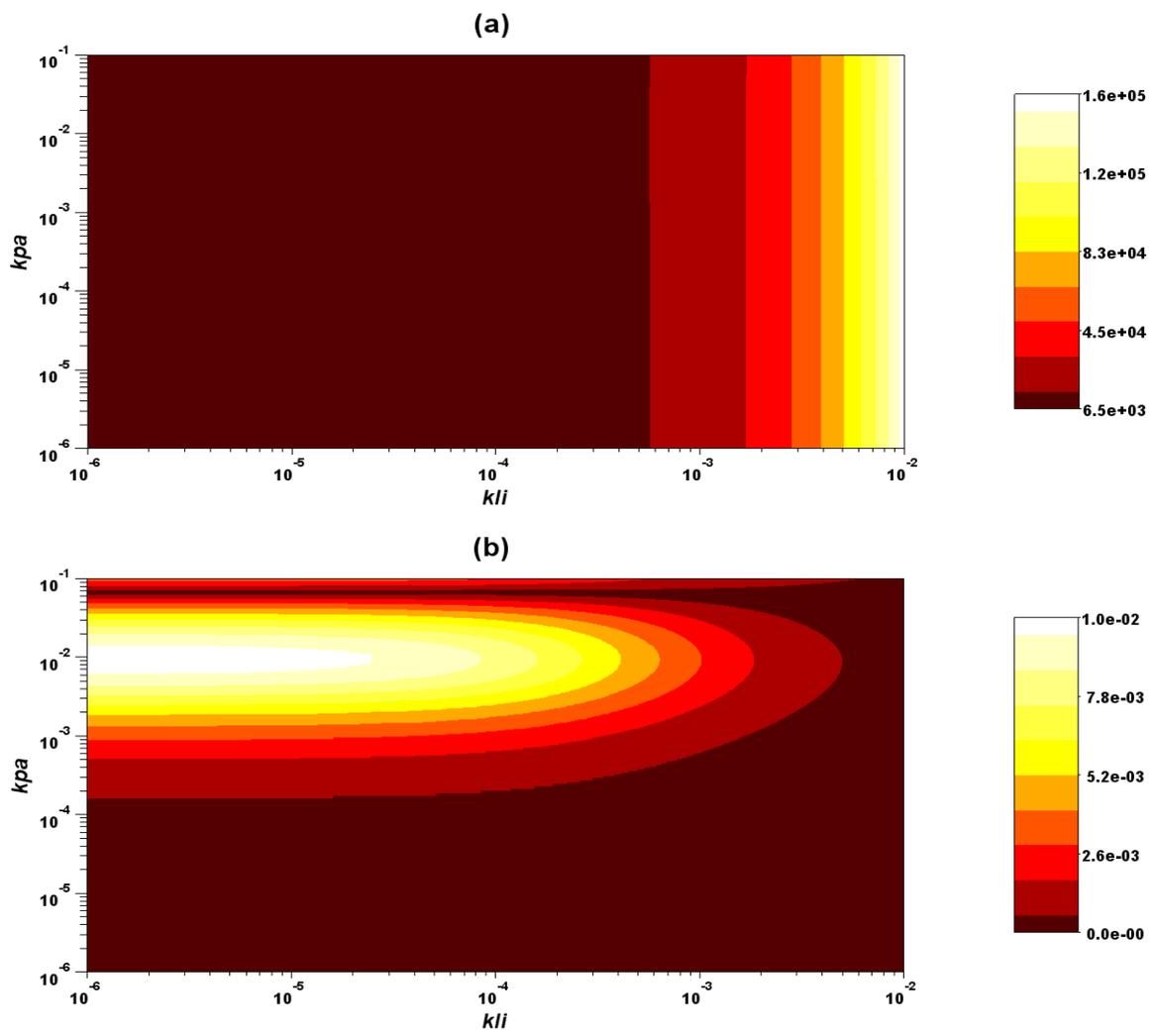
Nous avons étudié séparément les effets de k_{pa} et de k_{li} . Nous nous intéressons à présent aux effets combinés de k_{pa} et k_{li} sur le coefficient d'extinction et l'albédo. Nous représentons (FIG. 40 (a)) le coefficient d'extinction en fonction de k_{pa} et de k_{li} pour $R=10 \mu m$. La fraction volumique est de 4.2%. Nous remarquons que K_{ext} semble ne dépendre que de k_{li} et pas de k_{pa} . Cependant, nous avons montré que K_{ext} pouvait varier légèrement avec k_{pa} dans le cas d'un liant non absorbant. Afin de quantifier les effets relatifs de l'absorption de la particule, nous représentons (FIG. 40 (b)) l'écart ε_1 :

$$\varepsilon_1 = \frac{\left| K_{ext}(k_{li}, k_{pa}) - K_{ext}(k_{li}, 0) \right|}{K_{ext}(k_{li}, k_{pa})}$$

Nous constatons que, sur l'ensemble de la cartographie 2D, l'écart est inférieur ou égal à 1%. Ce qui confirme que nous ne pouvons pas visualiser ces variations sur la figure précédente (FIG. 40 (a)). Ces variations avec k_{pa} pour de faibles k_{li} sont dues au phénomène d'« absorption edge » décrit précédemment. Pour de forts k_{li} , l'absorption du liant est prédominante et les variations avec k_{pa} deviennent totalement négligeables. Pour en revenir à K_{ext} , il augmente progressivement jusqu'à être gouverné par le terme $4\pi k_{li}/\lambda$, quel que soit k_{pa} .

Nous nous intéressons à la fois aux effets de k_{pa} et de k_{li} en réalisant une cartographie 2D de l'albédo pour deux rayons de particules (FIG. 41). Pour les deux rayons de particules et quand k_{li} est faible ($<10^{-3}$) nous constatons que l'albédo passe de 1 à 0.5 pour de faibles k_{pa} puis de 0.5 à 1 pour de forts k_{pa} . Nous retrouvons le comportement visible à la FIG. 32 (b). Quel que soit k_{pa} , l'albédo tend vers 0 pour de forts k_{li} car l'extinction vient essentiellement du liant alors que la diffusion demeure limitée aux seules particules.

La conclusion de cette section est que l'absorption dans le liant a plus d'impact sur le coefficient d'extinction que l'absorption des particules pour une faible fraction volumique. En ce qui concerne l'albédo, l'absorption dans les particules et celle dans le liant ont toutes les deux un impact : l'absorption des particules pour de faibles k_{li} et l'absorption du liant pour de forts k_{li} .



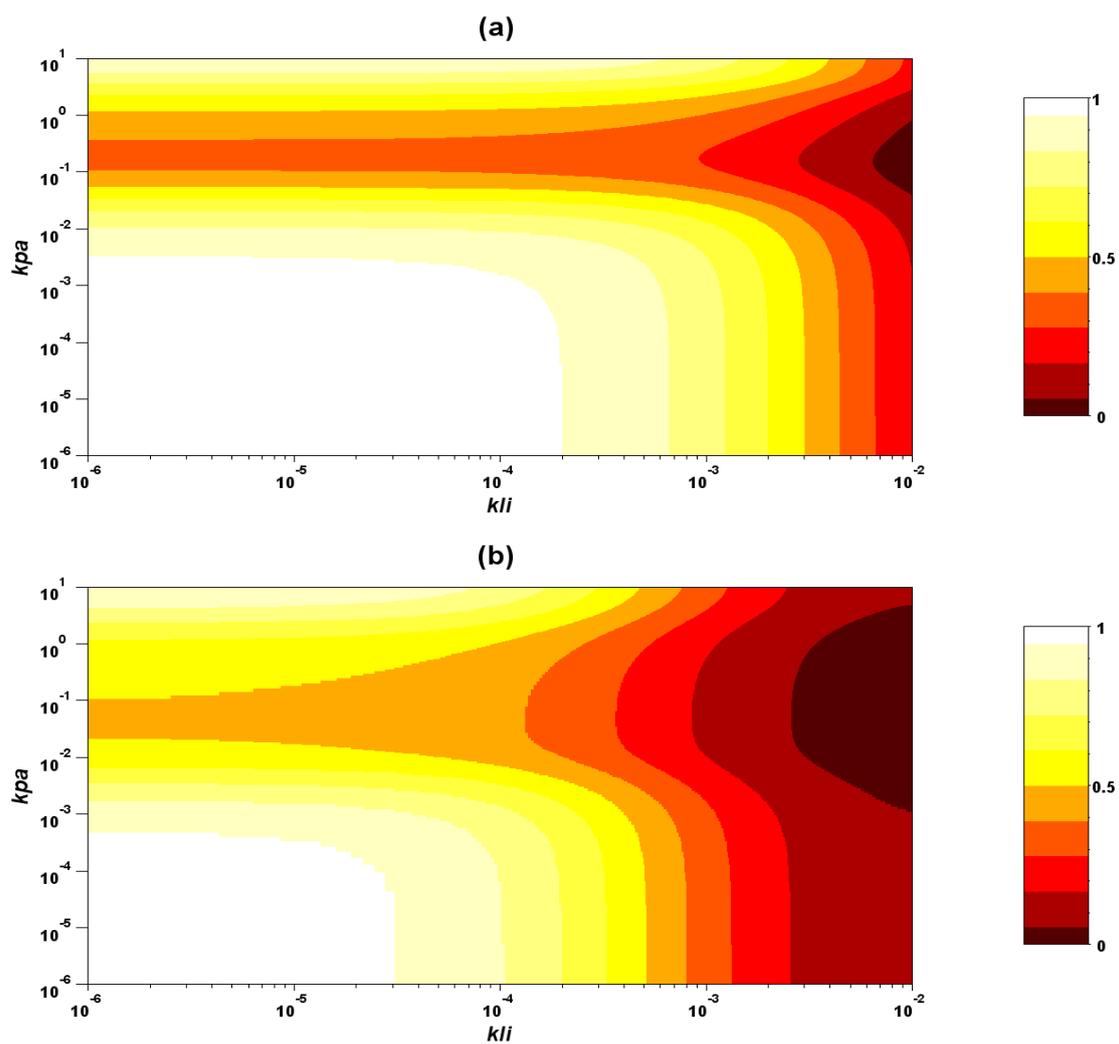


FIG. 41 : Cartographie 2D de l'albedo en fonction de k_{pa} et k_{li} pour (a) $R=1 \mu\text{m}$ et (b) $R=10 \mu\text{m}$.

4. SYNTHÈSE DU CHAPITRE 2

L'objectif de ce chapitre est d'étudier l'influence de l'absorption sur le coefficient d'extinction et l'albédo. En présence uniquement d'absorption dans les particules, nous avons montré que **l'albédo passe de 1 à environ 0.5** et que le **coefficient d'extinction est peu modifié** excepté le phénomène d'« absorption edge ». Pour de plus fortes absorptions (particule quasi métallique), l'expulsion de l'énergie à l'extérieur des particules implique une augmentation de l'albédo. Quant à lui, K_{ext} reste à peu près constant.

Le cas de l'absorption dans le liant est plus délicat et a nécessité l'introduction d'une nouvelle méthode que nous avons comparée avec d'autres issues de la littérature. Tant que $4\pi k_{li}R/\lambda$ est faible, l'ensemble des méthodes donne des résultats équivalents. De manière très locale au niveau de la particule, nous constatons qu'une forte absorption dans le liant tend à piéger l'énergie à l'intérieur de celle-ci, impliquant ainsi une baisse de l'énergie diffusée et une augmentation de l'absorption interne si k_{pa} n'est pas nul. Mais cet effet est marginal par rapport à l'énergie absorbée dans le liant et tend à se compenser lorsque nous considérons l'extinction. La seule conclusion à retenir est que **l'énergie éteinte par la particule ne dépend que très peu de k_{pa} et décroît légèrement avec k_{li}** .

Nous avons étudié la variation de K_{ext} et Ω avec les différents paramètres d'intérêt. L'extinction est rapidement dominée par l'absorption du liant ($4\pi k_{li}/\lambda$) quand nous augmentons k_{li} . Ce terme est indépendant des caractéristiques des particules et de la concentration. L'albédo passe de 1 à 0 quand nous augmentons k_{li} et la décroissance dépend fortement de tous les paramètres cités. Nous avons ensuite étudié les effets combinés de k_{pa} et k_{li} . Nous avons pu confirmer les effets observés séparément pour k_{pa} et k_{li} .

Nous pouvons discuter à présent de l'impact de ces modifications sur le temps de vol des photons dans le milieu. La prise en compte de l'absorption dans le K_{ext} et l'albédo tendrait intuitivement à supprimer les trajectoires de diffusion multiple et donc à tuer les photons les plus retardés. Ceci engendrerait un raccourcissement des temps de vol que ce soit vers l'avant ou en rétrodiffusion. Cependant, seule une simulation complète de la chaîne d'évènement dans le milieu est nécessaire pour appréhender la modification du temps de vol des photons avec l'absorption. Ce point est étudié dans le prochain chapitre.

CHAPITRE 3 : MODELISATION DE LA DIFFUSION TEMPORELLE DANS UN MILIEU DIFFUSANT ET ABSORBANT

Dans ce chapitre, nous souhaitons modéliser l'interaction entre une impulsion ultrabrève et un milieu complexe composé d'un ensemble de particules en suspension dans un liant. L'utilisation d'un code de Monte-Carlo a été retenue. Cette approche très souple permet de modéliser le transfert radiatif dans des milieux diffusants et elle est apte à reproduire des géométries de détection complexes. L'objectif de ce travail est de prendre en compte les phénomènes d'absorption dans le liant et/ou dans les particules. Dans les précédents chapitres, nous nous sommes intéressés aux impacts de l'absorption sur la fonction de phase (Chapitre 1) ainsi que le coefficient d'extinction et l'albédo (Chapitre 2). Dans un premier temps, nous présentons le code de Monte-Carlo utilisé ainsi que les modifications apportées pendant cette thèse. Nous étudions ensuite l'effet de l'absorption des particules sur le profil temporel de l'intensité diffusée vers l'avant. En effet, au vu des chapitres précédents, la signature temporelle d'une particule vers l'avant présente une forte sensibilité au couplage diffusion/absorption. Pour finir, nous nous consacrons à l'impact de l'absorption du liant pour les deux directions d'observation.

1. PRESENTATION DU CODE DE MONTE-CARLO

1.1. Principe du code de Monte-Carlo

Lors d'une thèse précédente, un code de simulation de la diffusion temporelle vers l'avant [8] avait été développé et comparé à d'autres travaux [46][14]. Les quelques validations expérimentales conduites pendant la thèse ont depuis été étendues à un domaine d'épaisseurs optiques bien plus larges [12]. Nous décrivons ici le schéma du code mis en œuvre en soulignant à chaque fois l'apport de ce travail de thèse. La démarche choisie est une approche stochastique de type « Monte Carlo ». Nous considérons des grains de lumière ou photons que nous envoyons aléatoirement sur un milieu diffusant. Au cours de leurs propagations dans le milieu, ces photons ont une probabilité d'être diffusé, absorbé (par des particules ou le liant) ou réfléchi sur les interfaces du milieu. Nous résumons ici les différentes étapes de la simulation de la trajectoire d'un photon (FIG. 42). Pour l'ensemble de ce code, *random* correspond à un nombre aléatoire entre 0 et 1 et l'équation $temp := random$ désigne un tirage aléatoire.

1/ Initialisation : Nous supposons que le profil spatial transverse du faisceau laser est gaussien avec un *waist* connu ω_z . La position du photon est repérée par ces coordonnées (X, Y, Z) , où Z est l'axe de propagation du faisceau laser. Deux tirages aléatoires permettent d'initialiser la position du photon (X, Y) dans le profil transversal du faisceau. Z est initialisé à 0. Le profil temporel de l'impulsion est lui aussi gaussien avec une largeur à mi-hauteur $FWHM=100 fs$. Ceci permet d'initialiser le temps initial t du photon. Nous initialisons également la polarisation du photon par son vecteur de Stokes (polarisation généralement choisie linéaire). Ainsi, l'initialisation de (X, Y, Z) et t nécessite quatre tirages aléatoires $temp_i$ et se résume par les équations suivantes :

$$\begin{aligned}
temp_i &= random \quad \text{avec } i = \{1,4\} \\
X &= \omega_z \sqrt{-\log(temp_1)} \cos(2\pi * temp_2) \\
Y &= \omega_z \sqrt{-\log(temp_1)} \sin(2\pi * temp_2) \\
Z &= 0 \\
t &= \frac{FWHM}{2\sqrt{\log(2)}} \sqrt{-\log(temp_3)} \cos(2\pi * temp_4)
\end{aligned}$$

2/ Propagation : La connaissance du K_{ext} permet de déterminer la distance D_{int} au bout de laquelle le photon interagit avec le milieu à l'aide du tirage aléatoire suivant :

$$\begin{aligned}
temp_1 &= random \\
D_{int} &= -\ln(temp_1) / K_{ext}
\end{aligned}$$

Nous supposons que cette interaction est automatiquement une diffusion. Cependant, pour chaque interaction, nous multiplions le vecteur de Stokes du photon par l'albédo afin de tenir compte des absorptions possibles dans le milieu, que ce soit par la particule ou par le liant. Le temps de vol est incrémenté du temps nécessaire pour parcourir la distance entre deux interactions.

3/ Vérification : Pour les deux géométries de notre étude (diffusion avant et rétrodiffusion), nous vérifions si le photon est encore dans le milieu après propagation. Si ce n'est pas le cas, le photon est tué. Un des apports de ce travail de thèse est la gestion des interfaces permettant de traiter la portion de flux lumineux réinjectée dans le milieu à cause de la réflexion sur les interfaces, ainsi que la dépolarisation créée par chaque rencontre avec une interface.

4/ Diffusion par la particule : Nous déterminons la nouvelle direction de propagation en tirant aléatoirement l'angle (θ, ϕ) du vecteur diffusé e_d dans la base associée au vecteur incident e_i . θ désigne l'angle entre les deux vecteurs et $\phi=0$ définit le plan d'incidence (e_z, e_i) . Nous rappelons que e_z définit la direction initiale de propagation du faisceau laser. Le tirage de θ se fait à l'aide de la fonction de phase stationnaire. Le principe est de construire une densité de probabilité angulaire $dp(\theta)$ de la manière suivante :

$$dp(\theta) = \int_0^\theta \sin(\theta') M_{11}(\theta') d\theta' / \int_0^\pi \sin(\theta') M_{11}(\theta') d\theta'$$

Nous faisons alors un nouveau tirage et nous cherchons l'angle dans le maillage angulaire réalisant :

$$\begin{aligned}
temp_1 &= random \\
dp(\theta) &\prec temp_1 \prec dp(\theta+1)
\end{aligned}$$

L'angle ϕ est tiré aléatoirement entre 0 et 2π . La matrice de Muller et les matrices de rotation associées permettent de décrire complètement le vecteur de Stokes (Annexe A) après diffusion [8][64]. L'angle θ permet aussi de déduire directement le temps passé à l'intérieur

de la particule connaissant $\tau(\theta)$. Le temps de vol global du photon est incrémenté en conséquence. Nous revenons ensuite au point 2 pour retirer une nouvelle distance de propagation mais avec la nouvelle direction de propagation et le nouveau vecteur de Stokes.

5/ Détection du photon : Selon le type de milieu considéré (taille des particules et albédo), deux types de détection sont à considérer. La détection complète consiste à suivre le photon jusqu'à ce qu'il atteigne le détecteur. Ce mode de détection demande un grand nombre de lancer mais s'avère être adapté au cas de grosses particules. **La détection semi analytique** [65][66] **consiste à collecter une portion de flux à chaque évènement de diffusion.** Cette portion de flux est **pondérée par l'extinction du milieu qu'il reste à parcourir et par l'angle solide de collection**, calculé pour chaque évènement de diffusion. Ce mode de détection est particulièrement adapté au cas de petites particules et au cas de liant fortement absorbant. Une étude, présentée dans la prochaine section, détaille une inter-comparaison entre les deux démarches. Pour ces deux types de détection, nous avons simulé la géométrie précise de détection en diffusion avant [12]. Le code de Monte-Carlo complet en rétrodiffusion ne converge pas dans des temps de calcul raisonnables. L'interaction avec la dernière interface a aussi été traitée et ne semble pas avoir d'impact car aussi bien en diffusion avant qu'en rétrodiffusion, les incidences sont quasi normales. Nous retranchons également le temps balistique équivalent afin de déterminer le retard 0. En diffusion avant, ce temps balistique correspond à une trajectoire en ligne droite. En rétrodiffusion, le retard 0 équivalent est détaillé dans la section « autres modifications du code ».

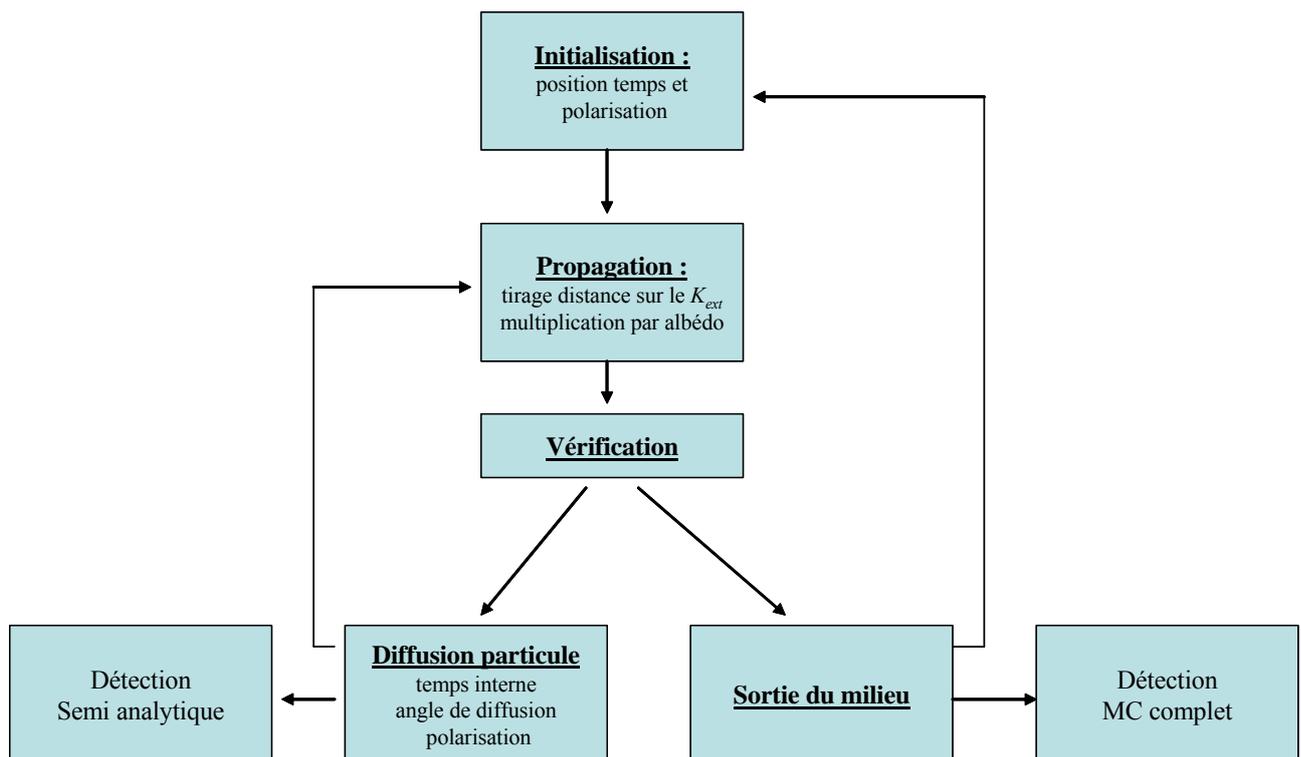


FIG. 42 : Schéma du code de Monte-Carlo.

1.2. Comparaison entre les Monte-Carlo complet et semi-analytique

Le code de Monte-Carlo complet nécessite généralement un grand temps de calcul (par rapport au code semi-analytique) car seuls les photons arrivant réellement sur le détecteur

contribuent au signal diffusé. Un des apports de ce travail de thèse a été l'adaptation des deux codes pour le cas de la diffusion avant par de très grosses particules absorbantes avec un faible angle de collection. Dans une telle configuration expérimentale, les lobes de diffusion sont extrêmement piqués vers l'avant, et ce même si nous considérons l'élargissement cumulé sur un très grand nombre de diffusions successives dans l'échantillon. La détermination précise de l'angle de collection et la modélisation de la géométrie de détection deviennent alors critiques si nous souhaitons observer un bon accord entre le modèle semi-analytique et complet. Plus que l'accord en tant que tel, c'est la validité du modèle semi-analytique que nous vérifions pour plusieurs géométries de détection.

Nous représentons (FIG. 43) la géométrie telle qu'elle était modélisée lors des travaux précédents [8]. Chaque évènement de diffusion est repéré par les coordonnées (r_i, z_i) . Pour la détection semi-analytique, un premier diaphragme définit le volume d'échantillon observé, *i.e.* nous vérifions que r_i est bien inférieur à D_1 avant d'incrémenter le flux détecté. Le deuxième diaphragme D_2 , placé à une distance l de l'entrée de la cuve, permet de calculer l'angle solide de collection pour chaque évènement de diffusion (r_i, z_i) . La détection complète consiste à vérifier que les faisceaux diffusés sortant passent bien à l'intérieur des deux diaphragmes.

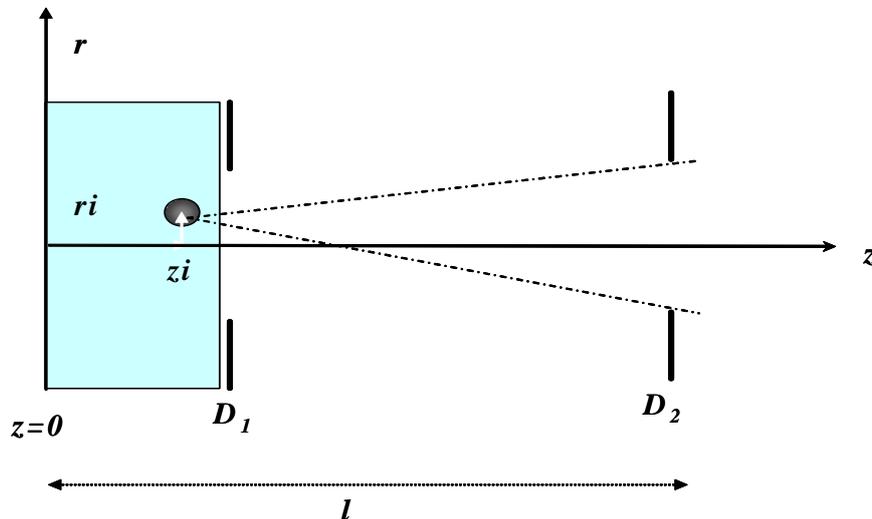


FIG. 43 : Schéma de détection en diffusion avant.

Avec cette détection, nous nous sommes heurtés à un problème d'accord entre les deux modèles, tout particulièrement pour les photons très peu déviés et très peu retardés (grosses particules absorbantes en diffusion avant cf. §3.2). Nous avons pu résoudre le problème en affinant la détection semi-analytique. Pour chaque évènement de diffusion, si r_i est bien inférieur à D_1 , nous tirons de manière homogène un point aléatoire dans un disque défini par D_2 , ce qui nous permet de construire un vecteur diffusé dans le cône (r_i, z_i, D_2) . Les coordonnées du point aléatoirement tiré dans ce disque sont les suivantes :

$$\begin{aligned}
 temp_i &= random \quad \text{avec } i = \{1,2\} \\
 X &= \frac{D_2}{2} \sqrt{temp_1} \cos(2\pi * temp_2) \\
 Y &= \frac{D_2}{2} \sqrt{temp_1} \sin(2\pi * temp_2) \\
 Z &= l - z_i
 \end{aligned}$$

Nous calculons ensuite le flux diffusé dans cette direction précise, que nous pondérons de l'angle solide de détection et de l'extinction résiduelle. La détection est donc presque en tout point similaire à l'étude précédente sauf que nous détectons pour de petits angles tirés aléatoirement plutôt que dans la direction de l'axe optique. Ceci permet de prendre en compte les variations de la fonction de phase à l'intérieur des diaphragmes de collection. Cette amélioration nous a permis d'obtenir un accord parfait entre les deux codes quel que soit le type de particules considéré. Nous illustrons la comparaison entre les deux codes pour six cas remarquables (FIG. 44). Le code de Monte-Carlo semi-analytique semble converger plus rapidement pour de petites particules et pour de fortes absorptions (dans la particule ou dans le liant). En effet, pour de petites particules (fonction de phase peu directive) ou pour des milieux absorbants, un photon n'a que très peu de chance d'arriver jusqu'au détecteur ce qui pénalise la détection complète.

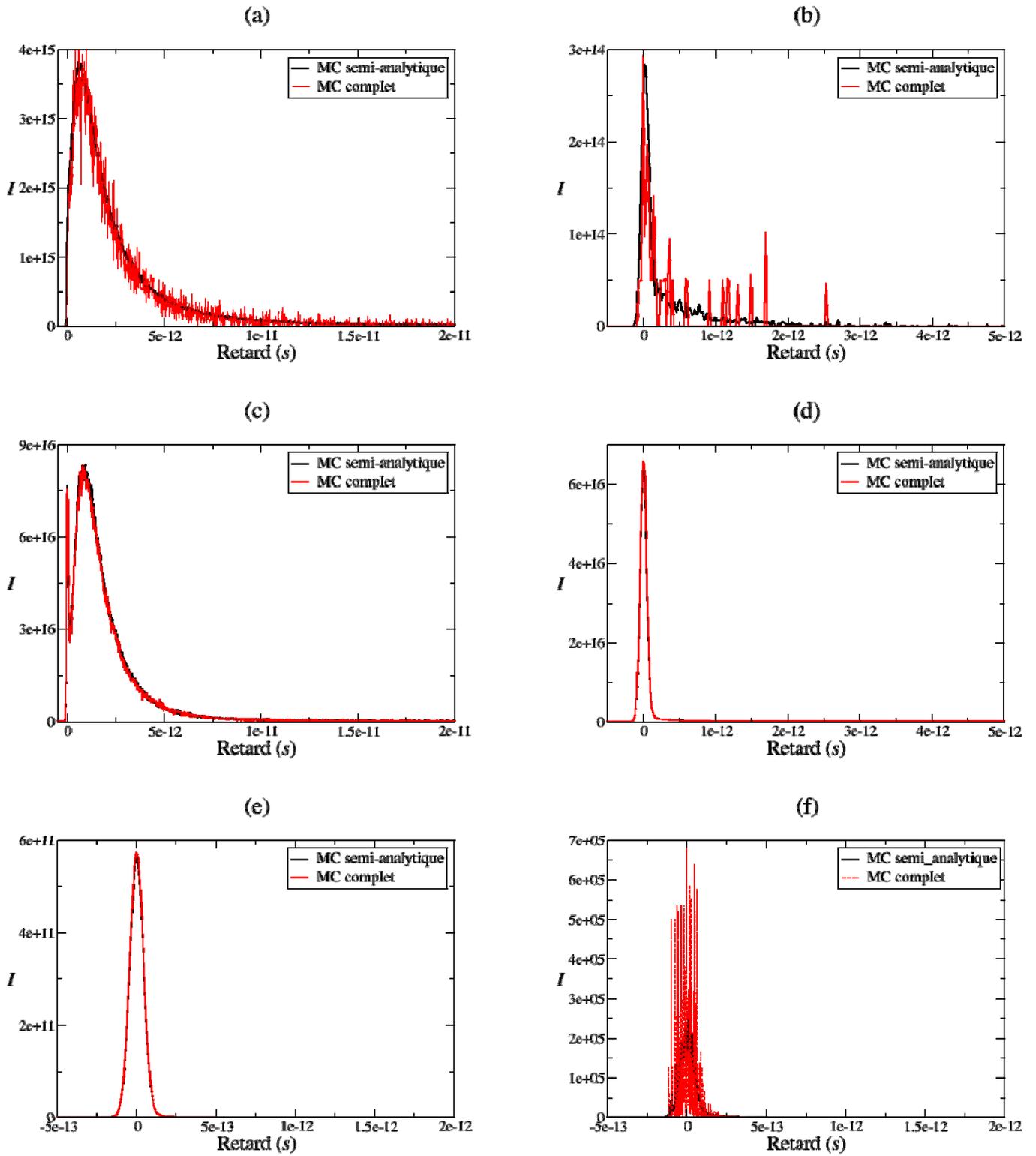


FIG. 44 : Comparaisons entre un code de Monte-Carlo complet et semi analytique ($D_1=D_2=1$ cm, $l=40$ cm, $\lambda=800$ nm, $n_{pa}=1.45$ et $n_{li}=1.33$). (a-b) $R=5$ μm , $xv=0.6\%$, $L_{cuve}=1$ cm, $k_{li}=0$ et $k_{pa}=0$ et 10^{-2} . (c-d) $R=50$ μm , $xv=6.6\%$, $L_{cuve}=1$ cm, $k_{li}=0$ et $k_{pa}=0$ et 10^{-3} . (e-f) $R=50$ μm , $xv=13\%$, $L_{cuve}=1$ mm, $k_{pa}=0$ et $k_{li}=0$ et 10^{-3} .

1.3. Autres modifications du code

En plus de la précédente amélioration, qui s'est avérée nécessaire pour la modélisation de la diffusion avant de grosses particules, nous avons raffiné le code de Monte Carlo en prenant en compte d'une distribution en taille des particules (*PSD* pour Particle Size Distribution). La prise en compte de la distribution en taille permet d'affiner la détermination des différents paramètres d'entrée du code de Monte Carlo. Nous calculons alors la fonction de phase, le coefficient d'extinction et l'albédo pour chaque rayon et les nouveaux paramètres moyens s'écrivent comme une moyenne des équations (1.1) du chapitre 1 et (2.7) du Chapitre 2.

$$\begin{aligned}
 M_{11}(\theta) &= \frac{\int PSD(r)M_{11}(\theta)\sigma_{sca}(r)dr}{\int PSD(r)\sigma_{sca}(r)dr} \\
 K_{ext} &= \frac{4\pi k}{\lambda} \frac{li}{p} + N_p \frac{\int PSD(r)\sigma_{ext}(r)dr}{\int PSD(r)dr} \\
 \Omega &= \frac{N_p}{K_{ext}} \frac{\int PSD(r)\sigma_{sca}(r)dr}{\int PSD(r)dr}
 \end{aligned} \tag{3.1}$$

Nous avons également regardé le rôle des interfaces. A chaque interface, nous introduisons la probabilité que le photon soit réinjecté dans l'échantillon et nous avons évalué la modification potentielle du vecteur de Stokes. Le résultat marquant de cette étude est qu'en diffusion avant, le rôle des interfaces n'intervient que pour des épaisseurs optiques plus élevées et des rayons plus faibles que ceux considérés dans la suite de ce manuscrit. En rétrodiffusion, nous avons pris en compte deux interfaces successives air/paroi en silice et paroi/eau (FIG. 45). Nous considérons ici un milieu diffusant semi-infini. Le retard 0 est défini comme la réflexion du faisceau incident à l'interface eau/cuve (paroi interne de la cuve). En plus de la réinjection d'une portion de flux dans le milieu, nous considérons ici la dépolarisation induite par les deux interfaces mentionnées en choisissant une direction unique de détection définie par un angle externe de détection de 37 mrad par rapport au faisceau incident (configuration expérimentale utilisée dans le Chapitre 4). Pour les deux interfaces considérées, nous avons calculé les coefficients de Fresnel [67] en réfraction et en réflexion et ceci pour un maillage angulaire défini par la normale à la surface. Notons que l'indice de l'eau peut avoir une composante imaginaire conséquente car nous utilisons ce code pour modéliser des expériences dans l'infrarouge. Compte tenu des angles considérés, nous n'avons pas observé de dépolarisation significative due à la dernière interaction avec les deux interfaces (sortie du milieu).

Une étude expérimentale, réalisée en marge de cette thèse, nous a permis d'affiner la description de la géométrie de détection. En plus du diaphragme de champ (vérification que la particule est bien comprise dans un cylindre de rayon $D_1/2$ avant détection) et du diaphragme de collection (le diamètre D_2 définit l'angle de collection), nous avons considéré une atténuation radiale de l'efficacité de collection [12] afin de reproduire le profil spatial de la porte temporelle Kerr. Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé pour nos simulations respectivement les paramètres suivants en diffusion avant ($D_1=D_2=1 \text{ cm}$, $l=40 \text{ cm}$ et pas d'atténuation radiale) et en rétrodiffusion ($D_1=D_2=7 \text{ mm}$, $l=1 \text{ m}$ et une atténuation radiale de 1.3 mm)

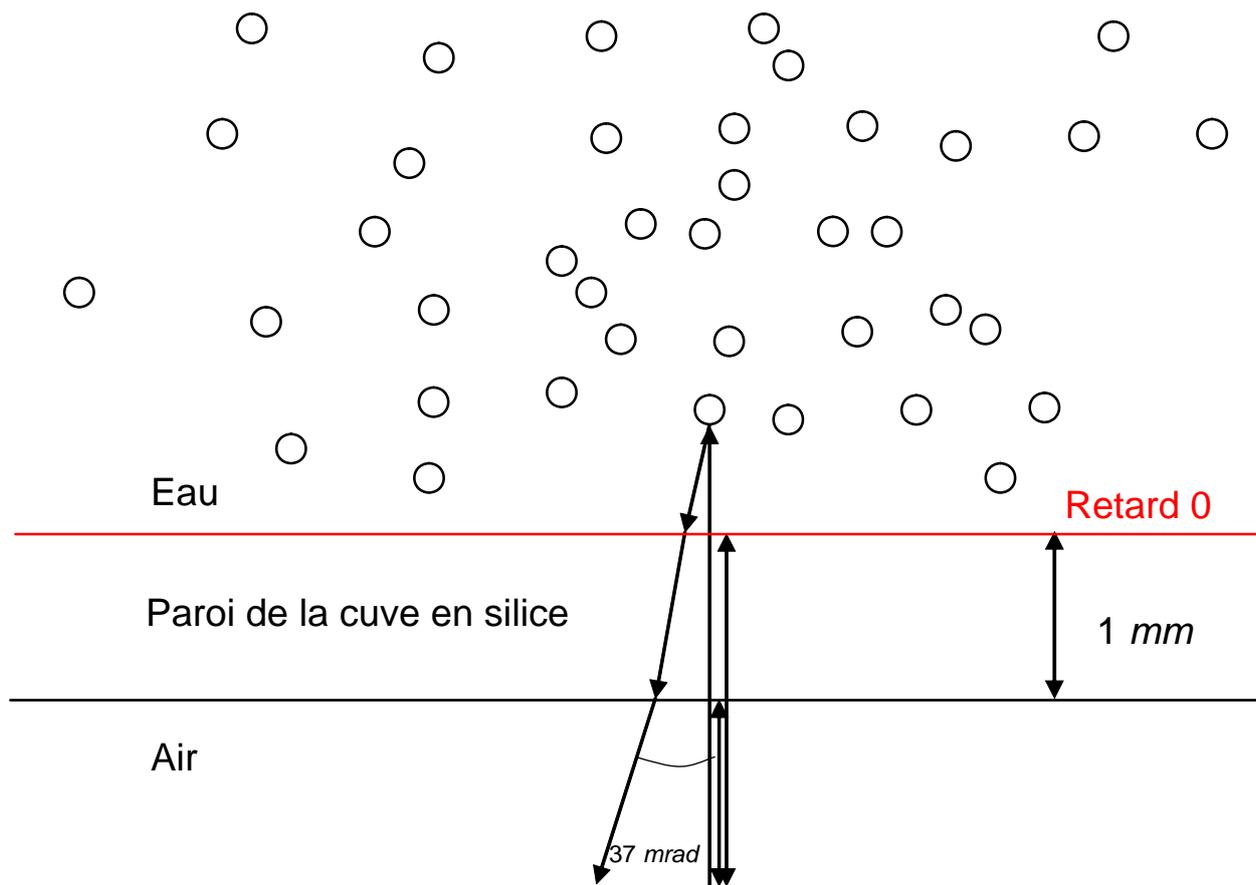


FIG. 45 : Présentation de la géométrie du système en rétrodiffusion. La réflexion sur la paroi interne définit le retard 0. Le milieu est considéré comme semi-infini. L'angle entre les faisceaux incidents et rétrodiffusés est exagéré ici.

2. EFFET DE L'ABSORPTION DES PARTICULES EN DIFFUSION AVANT

Nous avons montré dans les chapitres précédents que l'absorption dans les particules a pour conséquence de tuer le mode 1 (retardé et moins directif) par rapport au mode 0 (non retardé et très directif). En fait, l'ensemble des modifications de tous les paramètres (M_{11} , K_{ext} et Ω) semble contribuer à diminuer le temps de vol des photons dans le milieu [68]. L'objectif est ici de modéliser à l'aide d'un code de Monte-Carlo une expérience en diffusion avant en prenant un angle solide de collection petit. Les impacts relatifs respectivement du coefficient d'absorption et celui de l'indice de réfraction sont alors évalués. Nous étudions finalement une application possible au cas d'un jet de propulseur à propergol solide, *i.e.* contenant des particules d'alumine à haute température.

2.1. Profil temporel de l'intensité diffusée

Pour l'ensemble des simulations des deux premières sections, nous reprenons la géométrie utilisée précédemment : $D_1=D_2=1\text{ cm}$ et $l=40\text{ cm}$ ce qui correspond à un angle solide de $5 \cdot 10^{-4}\text{ Sr}$. Le trajet optique est de 1 cm et l'épaisseur optique est de 20 sans absorption. Nous traçons l'intensité diffusée (FIG. 46) en fonction du temps pour des particules ($n_{pa}=1.45$) de $5\text{ }\mu\text{m}$ de rayon en suspension dans de l'eau non absorbante ($n_{li}=1.33$ et $k_{li}=0$). Pour $k_{pa}=10^{-4}$, nous observons une baisse globale de l'intensité. Pour des valeurs d'absorption plus importantes ($k_{pa}=10^{-3}$), cette baisse est plus prononcée et nous observons une diminution du temps de vol des photons. Pour de fortes absorptions ($k_{pa}=10^{-2}$), la lumière diffusée tend à se confondre avec la lumière balistique (la distribution balistique est centrée en zéro et de largeur à mi-hauteur de 100 fs).

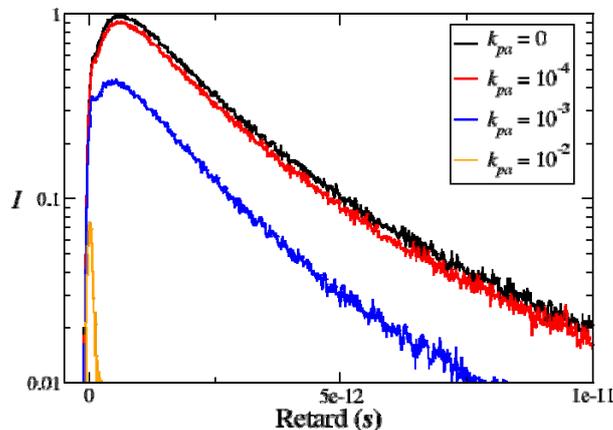


FIG. 46 : Intensité relative pour $R=5\text{ }\mu\text{m}$ et pour plusieurs k_{pa} en fonction du retard. L'ensemble des courbes est multiplié par le même facteur de normalisation afin de ramener le maximum de la courbe sans absorption à 1.

Dans les mêmes conditions que précédemment, nous traçons l'intensité diffusée en fonction du retard pour des particules de $50\text{ }\mu\text{m}$ (FIG. 47 (a)). Sans absorption, nous observons deux lobes séparés temporellement. Afin de comprendre l'origine physique de ces deux lobes, nous avons compté le nombre d'événements de diffusion impliquant le mode 0 ou le mode 1 pour chaque trajectoire simulée et atteignant le détecteur (cas du Monte-Carlo complet uniquement). Nous constatons (FIG. 47 (b)) que le premier lobe correspond au

parcours d'un photon subissant uniquement des éléments de diffusion liés au mode 0. Nous remarquons de plus qu'un seul évènement de diffusion de type « mode 1 » dans la trajectoire entraîne une forte diminution de l'efficacité de collection. Cela est dû au faible angle de collection utilisé, associé à l'étalement de la distribution angulaire de l'intensité diffusée dans le mode 1. L'efficacité de collection décroît donc dramatiquement avec le nombre de diffusion « mode 1 » dans la trajectoire globale du photon. Notons que le décalage temporel entre les courbes rouge et verte est approximativement égal à Δt ($= (n_{pa} - n_{li}) * (2R/c)$) et correspond à la différence de temps entre les modes 1 et 0 pour la traversée d'une particule. Nous observons alors une nette séparation temporelle entre deux lobes distincts. Le premier lobe centré au retard 0 correspond aux photons « serpentiles » [69–71]. Il recouvre complètement la contribution des photons balistiques non représentés sur la figure car approximativement 7000 fois inférieure à la contribution des photons « serpentiles ». Notons que c'est pour cette configuration précise que l'accord entre Monte-Carlo complet et semi-analytique a nécessité le raffinement détaillé plus haut. Une fois l'origine de ces deux lobes connue, nous pouvons décrire l'impact de l'absorption dans les particules. Nous constatons qu'une faible augmentation de l'absorption ($k_{pa}=10^{-5}$) entraîne une décroissance du lobe retardé. Il s'agit à la fois d'une décroissance de l'intensité et du retard moyen. Pour de fortes valeurs de k_{pa} , seul le premier lobe reste présent alors que le deuxième lobe a disparu.

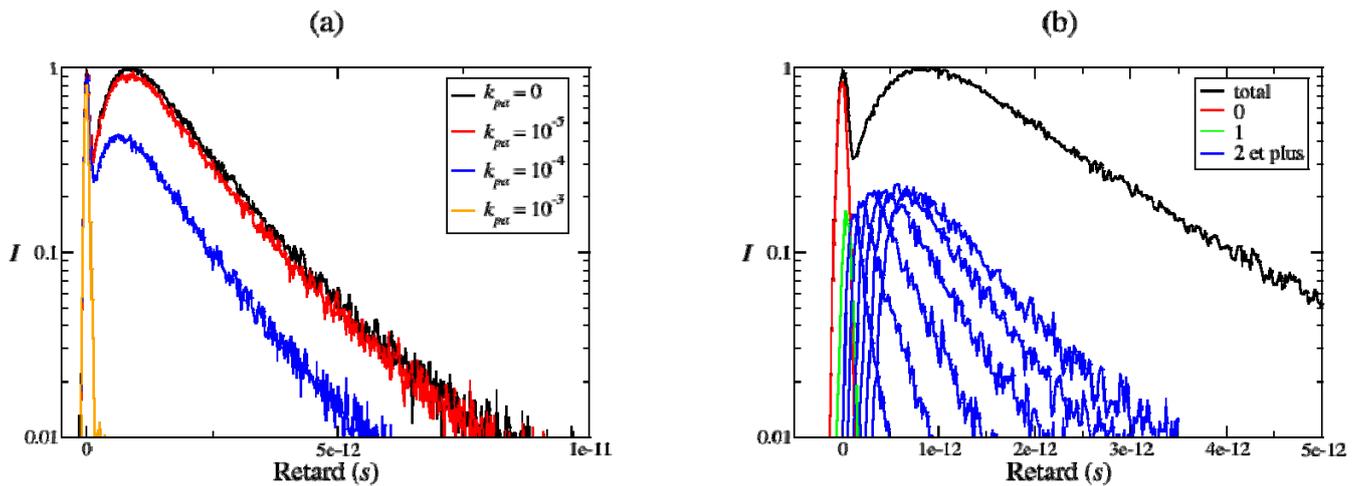


FIG. 47 : (a) Intensité relative diffusée pour $R=50 \mu\text{m}$ et pour plusieurs k_{pa} en fonction du retard. (b) Intensité relative en fonction du retard pour différentes quantités d'évènements du mode 1 de Debye quand $k_{pa}=0$ et $R=50 \mu\text{m}$.

A présent, nous souhaitons évaluer l'influence relative de la fonction de phase, du coefficient d'extinction et de l'albédo dans la modification du profil du temps de vol. Autrement dit, nous souhaitons comprendre si le temps de vol diminue parce que l'absorption dans le milieu tue les trajectoires de photon correspondant à des diffusions très multiples (rôle du K_{ext} et de l'albédo) ou si l'origine de cette diminution est due à la disparition du mode 1 par rapport du mode 0 (rôle de la fonction de phase). Nous étudions donc deux cas distincts. Dans le cas 1, la fonction de phase est modifiée par l'absorption dans les particules, mais nous considérons qu'il n'y a pas de perte d'énergie au cours de la traversée du milieu. Dans le cas 2, les photons peuvent être détruits durant le processus de diffusion, mais la fonction de phase est calculée comme si la particule était non absorbante. Nous traçons les profils temporels obtenus pour ces deux cas intermédiaires ainsi qu'avec et sans absorption (FIG. 48). Pour $R=5 \mu\text{m}$, nous remarquons que les deux effets contribuent à une légère baisse du temps de vol mais

l'effet principal observé est une baisse significative de l'intensité diffusée due uniquement à l'albédo et au coefficient d'extinction. Pour $R=50 \mu m$, la modification de la fonction de phase engendre une augmentation de l'intensité du lobe « serpentile » et une diminution du retard du deuxième lobe. Ceci s'explique intuitivement par la diminution de l'occurrence des diffusions de type « mode 1 » dans la trajectoire des photons. L'albédo et le coefficient d'extinction diminuent globalement le niveau de l'intensité diffusée mais raccourcissent aussi le temps de vol comme pour le cas $R=5 \mu m$.

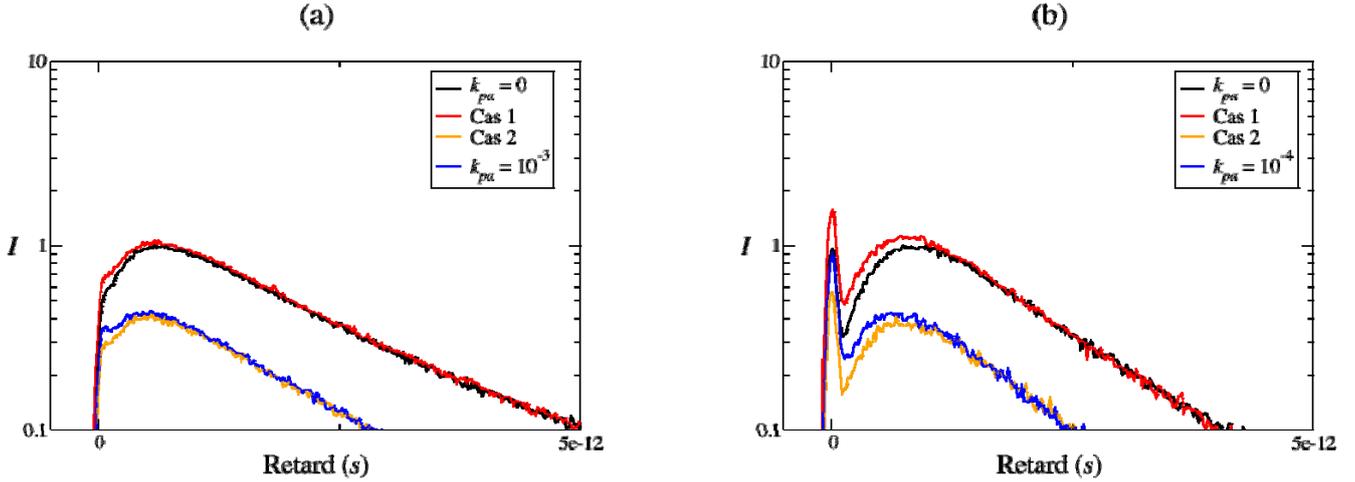


FIG. 48 : Intensité relative diffusée avec $k_{pa}=0$, $k_{pa}\neq 0$ et les cas intermédiaires (a) pour $R=5 \mu m$, $k_{pa}=10^{-3}$ et (b) pour $R=50 \mu m$, $k_{pa}=10^{-4}$.

Pour quantifier la diminution du temps de vol des photons, nous calculons les retards moyens τ de la distribution $I(t)$ temporelle de la lumière diffusée en utilisant la relation suivante :

$$\tau = \frac{\int tI(t)dt}{\int I(t)dt} \quad (3.2)$$

Les retards moyens obtenus (TAB. 4) résument l'ensemble des résultats observés et le poids des différents effets. Notons que les variations des valeurs d'épaisseur optique sont minimales malgré l'importance des coefficients d'absorption envisagés. Ces variations s'expliquent ici par le phénomène d'« absorption edge » décrit à l'occasion du premier chapitre. Nous retrouvons également ici la diminution de Ω ($1 \rightarrow \sim 0.5$) ainsi que l'augmentation de g (fonction de phase de plus en plus piquée). Les temps intermédiaires τ_1 et τ_2 correspondant respectivement aux cas 1 et 2 confirment que les deux effets, M_{11} d'un côté et (Ω, K_{ext}) de l'autre, contribuent à la diminution du temps de vol, bien que dans le cas de petite particule ($5 \mu m$), le rôle de (Ω, K_{ext}) soit prédominant. Le cas de la signature temporelle observée pour les grosses particules est particulièrement intéressant d'un point de vue expérimental car l'existence du premier lobe non retardé permet de référencer le retard 0 et tout le diagnostic du lobe retardé peut se faire relativement au premier lobe (retard relatif et intensité relative).

R	k_{pa}	eo	g	Ω	τ (ps)		
$5 \mu m$	0	20	0.9575	1	2.52		
	10^{-4}	19.99	0.9577	0.99	2.47		
	10^{-3}	19.93	0.9591	0.95	$\tau=2.07$	$\tau_1=2.45$	$\tau_2=2.13$
	10^{-2}	19.55	0.9715	0.66	0.37		
$50 \mu m$	0	20	0.9721	1	1.78		
	10^{-5}	20	0.9723	0.99	1.74		
	10^{-4}	20.01	0.9738	0.94	$\tau=1.42$	$\tau_1=1.67$	$\tau_2=1.55$
	10^{-3}	20.03	0.9848	0.66	0.03		

TAB. 4 : Récapitulatif de k_{pa} , de l'épaisseur optique, du facteur d'asymétrie, de l'albédo et du temps de vol associés. Les indices 1 et 2 font référence aux cas 1 et 2 de simulation.

2.2. Variation du contraste d'indice complexe

Nous avons montré qu'une très faible variation de k_{pa} entraînait une décroissance dans le profil d'intensité et une diminution du temps de vol des photons. Nous voulons connaître la variation que provoquerait un changement équivalent de l'indice de réfraction ($\Delta n_{pa} = \Delta k_{pa} = 10^{-4}$ pour $R=5 \mu m$ et $\Delta n_{pa} = \Delta k_{pa} = 10^{-5}$ pour $R=50 \mu m$). Rappelons que les variations de l'indice de réfraction et du coefficient d'absorption sont généralement reliées (cas d'école relation de Kramers-Kronig [72][73]) Nous observons (FIG. 49) que, pour les deux rayons considérés, la variation de n_{pa} ne semble pas modifier le profil temporel d'intensité. Afin de quantifier plus précisément l'impact de la partie réelle et imaginaire de l'indice, nous calculons le retard moyen pour l'ensemble des cas de figures représentés (TAB. 5) et nous remarquons que l'impact de la partie imaginaire est nettement plus important que celui de la partie réelle pour les deux rayons de particules.

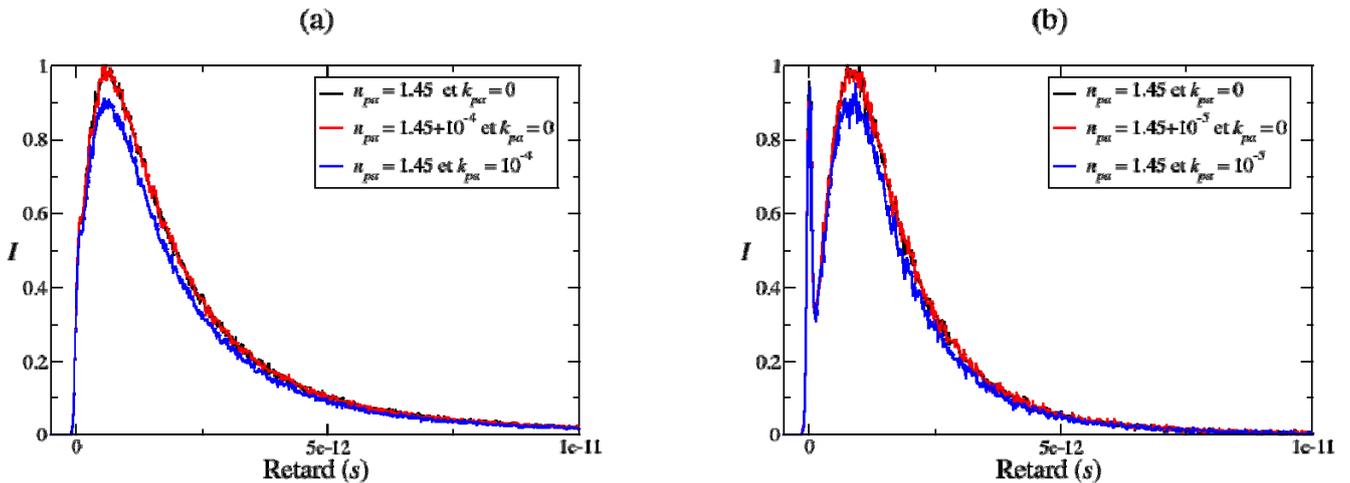


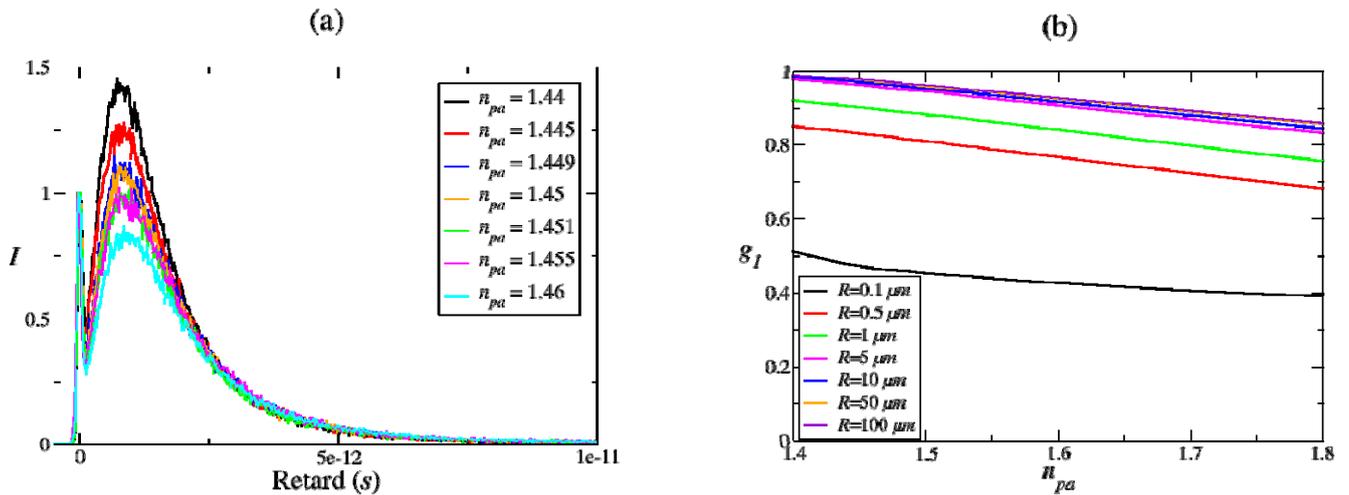
FIG. 49 : Intensité relative diffusée en fonction du temps pour (a) $R=5 \mu m$ et (b) $R=50 \mu m$.

$\{n_{pa}, k_{pa}\}$ pour $R=5 \mu m$	$\{1.45, 0\}$	$\{1.45+10^{-4}, 0\}$	$\{1.45, 10^{-4}\}$
τ (ps) pour $R=5 \mu m$	2.520	2.522	2.471
$\{n_{pa}, k_{pa}\}$ pour $R=50 \mu m$	$\{1.45, 0\}$	$\{1.45+10^{-5}, 0\}$	$\{1.45, 10^{-5}\}$
τ (ps) pour $R=50 \mu m$	1.776	1.777	1.738

 TAB. 5 : Evolution du temps de vol des photons pour $R=5$ puis $50 \mu m$.

Nous nous focalisons à présent sur le cas des grosses particules et nous recherchons une variation de la partie réelle de l'indice susceptible de produire un effet comparable que celui provoqué avec un Δk_{pa} de 10^{-5} . Par anticipation avec une expérience possible, nous normalisons, recentrons le retard sur le pic, rapide et « serpente », et analysons finement la modification de la forme du lobe retardé. L'objectif est de savoir si nous pouvons faire la différence entre une variation des parties réelles et imaginaires de l'indice. Lorsque nous augmentons l'absorption, nous provoquons une baisse du lobe retardé et nous avons observé un léger raccourcissement du retard moyen de ce lobe. Lorsque nous augmentons l'indice de la particule, nous observons également une baisse du niveau du lobe retardé (FIG. 50 (a)). Afin d'expliquer cette baisse, il faut rappeler un résultat de la section 1.3. Nous avons remarqué (FIG. 10) que le mode 1 devient moins piqué vers l'avant quand n_{pa} augmente. Nous illustrons cela (FIG. 50 (b)) pour plusieurs rayons. Nous remarquons que g_1 diminue toujours avec l'indice de la particule quel que soit le rayon des particules. L'étalement angulaire du mode 1 avec n_{pa} implique une diminution de l'efficacité de collection vers l'avant du lobe retardé.

En plus de la baisse d'intensité du lobe retardé avec n_{pa} , nous remarquons aussi une augmentation du retard moyen qui passe de 1.65 à 2.01 pour la plage de n_{pa} considérée à la FIG. 50. En effet, les trajectoires seront plus déviées et le retard moyen à chaque diffusion impliquant le mode 1 augmente car Δt ($= (n_{pa} - n_{li}) * (2R/c)$) augmente avec n_{pa} . Ce phénomène est visible sur la FIG. 10 (a).


 FIG. 50 : (a) Intensité diffusée en fonction du temps pour plusieurs n_{pa} . (b) Variation du facteur d'asymétrie du mode 1 en fonction de n_{pa} pour plusieurs rayons de particules.

Nous illustrons (FIG. 51) une diminution du lobe retardé de même incidence correspondant à Δn_{pa} de $5 \cdot 10^{-3}$ et Δk_{pa} de 10^{-5} . Notons qu'il faut deux ordres de grandeur entre ces paramètres pour obtenir le même effet. L'ensemble des temps de vol est résumé ci-dessous (TAB. 6).

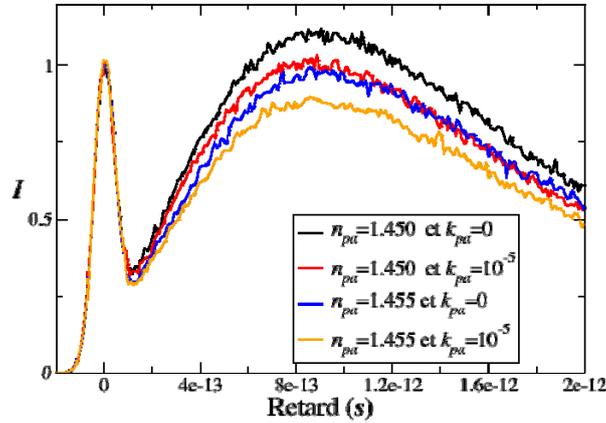


FIG. 51 : Intensité diffusée normalisée par rapport au pic 0 en fonction du temps.

$\{n_{pa}, k_{pa}\}$	$\{1.45, 0\}$	$\{1.45, 10^{-5}\}$	$\{1.455, 0\}$	$\{1.455, 10^{-5}\}$
τ (ps)	1.78	1.74	1.85	1.81

TAB. 6 : Valeur du temps de vol des photons pour plusieurs indices de particule.

De manière synthétique, nous résumons de la manière suivante : **une augmentation de k_{pa} diminue l'intensité et le retard moyen du lobe retardé et une augmentation de n_{pa} diminue l'intensité mais augmente le retard moyen.** Les deux effets cumulés semblent élargir globalement le lobe retardé conduisant néanmoins à une légère augmentation du temps de vol global. Il s'agit maintenant de voir dans un cas concret une variation réelle d'indice et d'absorption de particule afin d'évaluer les impacts respectifs sur la signature temporelle.

2.3. Application au cas d'un jet d'alumine dans de l'air

L'application de la détermination de la granulométrie dans les jets de propulseur est une activité historique du Département Optique Théorique et Appliquée. Par le passé, plusieurs expériences ont été mises en place par l'équipe. Elles consistent à mesurer des spectres d'extinction spectrale obtenus à partir de particules prélevées [74][75] ou des signatures angulaires directement mesurées sur les jets [76][77] afin de remonter à la distribution en taille. La connaissance de la taille des particules et de la concentration est particulièrement intéressante. Il s'agit en effet des données d'entrée de codes numériques permettant de prédire la poussée du propulseur ou la signature optique dans l'infrarouge d'un jet. Parmi les grandes inconnues des propriétés microphysiques des jets, en plus de la taille et la concentration des particules, nous notons la température et la phase des particules (liquide ou solide avec plusieurs caractéristiques cristallines α et γ). Le coefficient d'absorption k_{pa} est intéressant en tant que tel car il permet de remonter à l'émissivité des particules. La difficulté majeure dans le diagnostic des jets réside dans leur importante densité optique. Il est en effet

souvent impossible d'utiliser une signature angulaire telle que la réfractométrie « arc-en-ciel » ou une mesure de diffusion angulaire plus globale. La diffusion multiple brouille en effet toutes les signatures angulaires. Toute technique alternative de diagnostic (spectrale, temporelle et polarimétrique) pourrait représenter un apport conséquent.

Les milieux considérés sont le plus généralement des particules d'alumine en suspension dans un gaz chaud dont nous assimilerons les propriétés optiques à celle du vide ($n_{li}=1$ et $k_{li}=0$). Les particules d'alumine présentes dans les chambres de combustion ou à l'intérieur du propulseur sont très différentes de celles présentes dans le jet. Dans le premier cas, les particules d'alumine sont grosses (de $50 \mu m$ à quelques centaines de microns), très chaudes et en phase liquide. En sortie de tuyère puis dans le jet, elles refroidissent, se cristallisent et peuvent s'éclater en plusieurs classes de taille possible allant du sub-micron jusqu'à quelques dizaines de microns (*NB* : elles peuvent parfois repasser dans des zones chaudes). Ces deux cas limites présentent des besoins en caractérisation. La caractérisation de la taille des particules dans une chambre de combustion répond à des problématiques en aérodynamique, en rendement énergétique et pour la combustion du propulseur. La connaissance des particules dans le jet répond entre autres à des problématiques de prédiction de signature optronique.

Afin d'illustrer notre étude sur la dépendance entre la signature temporelle et les caractéristiques des particules, nous nous proposons ici d'étudier le cas d'une chambre de combustion. Nous considérons le cas de particules d'alumine de $50 \mu m$ de rayon. Dans un premier temps, nous avons considéré la même géométrie que celle étudiée précédemment, *i.e.* un trajet optique de $1 cm$ et une épaisseur optique de 20. Nous reportons les différents indices et absorptions en fonction de la température obtenus selon les différents modèles. Nous avons choisi une longueur d'onde d'excitation laser vers $2 \mu m$ afin d'être sensible à la variation d'indice avec la température. L'indice réel est calculé selon le modèle de Dombrovsky [78] pour l'alumine solide et celui de Parry/Brewster [79] pour l'alumine liquide. La détermination de k_{pa} se déduit de n_{pa} ainsi que d'autres paramètres comme la température. Nous reportons les valeurs obtenues selon les modèles de Plastinin [80] et Anfimov [81] (TAB. 7). Nous notons une baisse de l'indice de réfraction entre 2200 et 2400 K correspondant à la fusion de l'alumine qui intervient à 2320 K.

$T(K)$	Plastinin avec fusion à 2300 K		Anfimov avec fusion	Anfimov sans fusion	
	n_{pa}	k_{pa}	k_{pa}	n_{pa}	k_{pa}
2000	1.815	2.84E-08	1.24E-04	1.815	1.24E-04
2200	1.825	2.61E-07	5.86E-04	1.825	5.86E-04
2400	1.616	5.03E-04	1.85E-03	1.835	1.84E-03
2800	1.575	1.91E-03	4.40E-03	1.845	4.34E-03
3000	1.534	6.01E-03	8.57E-03	1.855	8.37E-03

TAB. 7 : Valeurs d'indice pour plusieurs modèles et températures.

L'objectif de cette étude préliminaire est de reporter les signatures temporelles obtenues en phase liquide pour 2400 et 2800 K (case orangée). Nous reportons (FIG. 52 (a)) les résultats obtenus pour les deux températures pour le modèle de Plastinin et avec les deux cas intermédiaires (variation de l'indice seul et de l'absorption seule). Nous constatons en premier lieu que le lobe retardé est déjà fortement diminué dès 2400 K. L'augmentation de la température à 2800 K fait disparaître complètement le lobe retardé. L'influence de l'indice est négligeable.

Afin de nous placer dans des considérations plus représentatives d'une chambre de combustion de propulseur, nous avons considéré un trajet optique de $50 cm$. Nous avons

éloigné la détection à 1 m (initialement à 40 cm), tout en gardant le même diamètre pour les deux diaphragmes. Nous avons conservé une épaisseur optique de 20. Nous reportons les mêmes cas que précédemment (FIG. 52 (b)). Dans ces conditions, nous n’observons plus de dépendance avec l’indice ou l’absorption. C’est certainement dû au fait que le milieu est trop dilué ou trop étendu. La statistique de temps de vol semble être dominée par la déviation des trajectoires sur 50 cm et semble plus sensible à la géométrie globale du système qu’à la nature de la diffusion (poids relatifs des modes de Debye). Ceci nous permet d’appréhender que la sensibilité que nous avons mise en évidence précédemment n’existerait que dans des systèmes relativement compacts et denses : micro-jet, injecteur, lame centimétrique, etc.

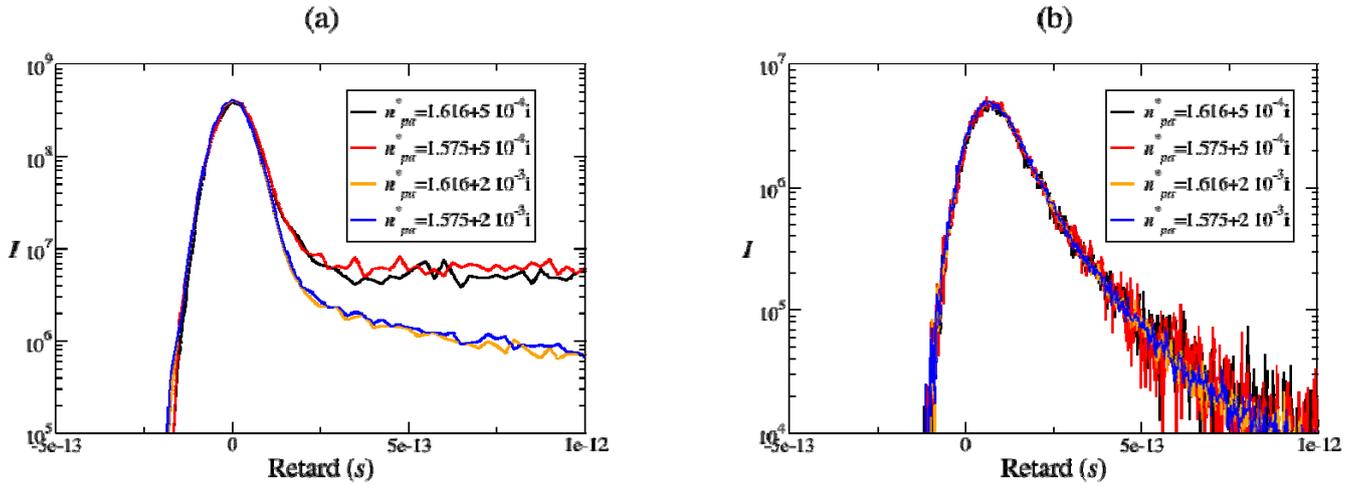


FIG. 52 : Intensité diffusée en fonction du temps pour une épaisseur optique de 20 lorsque la chambre de combustion est de (a) 1 cm et (b) de 50 cm.

3. EFFET DE L’ABSORPTION DU LIANT

Nous avons montré dans le Chapitre 1 que l’absorption du liant a pour conséquence de privilégier le mode 1 par rapport au mode 0 en diffusion avant. Contrairement à l’absorption des particules, nous aimerions donc observer une augmentation du lobe retardé. Ceci est possible dans des conditions extrêmes (très fort k_{li} ou très fort taux de charge). Cependant, cet effet est minime par rapport à la baisse globale de l’intensité. Afin d’observer des signatures temporelles significatives, nous nous intéressons plus particulièrement au cas de la rétrodiffusion. Nous discutons aussi de l’impact des différents paramètres (M_{11} , K_{ext} et Ω) sur ces signatures.

3.1. Cas de la diffusion avant

Dans le Chapitre 1, pour de grosses particules ($R=50 \mu m$), nous avons observé une modification de la fonction de phase pour de forts k_{li} . Pour de très faibles angles de collection considérés, nous pouvons nous attendre à ce que les photons détectés subissent des trajectoires plus longues car le lobe dû au mode 0 (très piqué) disparaît. De plus, le poids du mode 1, retardé, augmente. Les deux effets vont donc vers une augmentation du temps global passé dans le milieu. Afin de le vérifier, nous traçons l’intensité diffusée (FIG. 53 (a)) pour

des particules de silice ($n_{pa}=1.45$ et $k_{pa}=0$) de $50 \mu\text{m}$ en suspension dans une cuve de 1 cm remplie d'eau ($n_i=1.33$). La fraction volumique est de 6.6% afin d'avoir une épaisseur optique de 20 sans absorption. Nous constatons que l'augmentation de k_{li} entraîne une baisse globale significative de l'intensité diffusée. Cette baisse semble être principalement due à la variation de l'albédo et du coefficient d'extinction car nous avons vérifié qu'il n'y avait pas de modification significative de fonction de phase pour de telles valeurs de k_{li} (FIG. 13). Lorsque nous normalisons par l'intensité du retard 0 (FIG. 53 (b)), nous n'observons strictement aucun effet de k_{li} sur la signature temporelle.

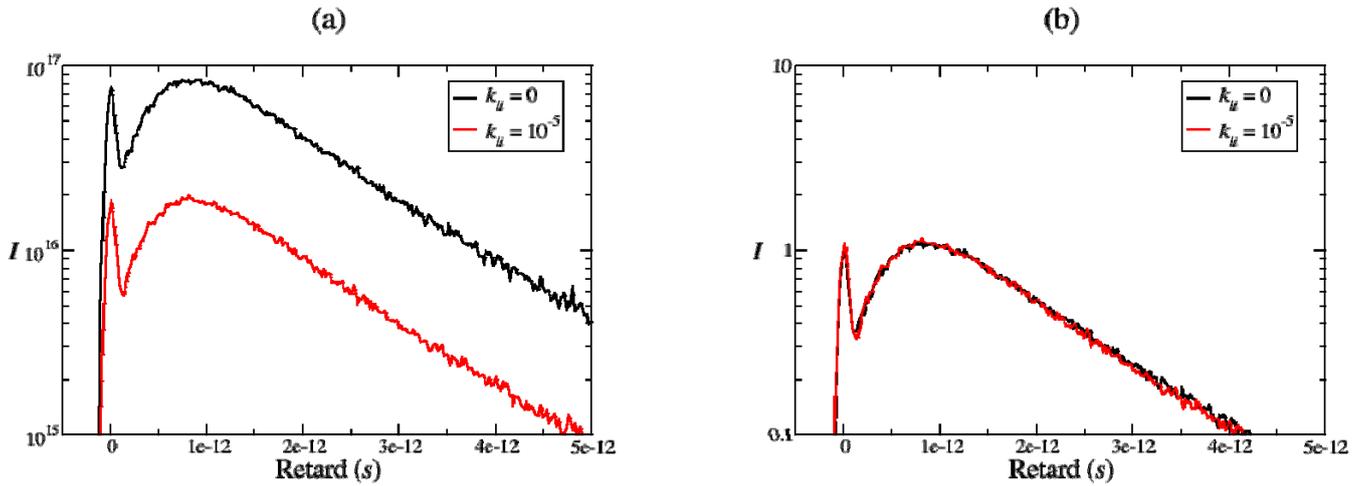


FIG. 53 : Intensité diffusée (a) sans et (b) avec normalisation pour $R=50 \mu\text{m}$ et pour deux k_{li} (0 et 10^{-5}) en fonction du retard. La cuve est de 1 cm .

Afin d'observer un effet, nous réduisons le trajet optique à 1 mm . Nous augmentons la fraction volumique à 66% afin de garder la même épaisseur optique. Nous traçons le profil temporel de l'intensité diffusée (FIG. 54 (a)). Nous constatons que k_{li} doit être supérieur ou égal à $5 \cdot 10^{-5}$ pour observer une baisse significative de l'intensité. Lorsque nous normalisons par l'intensité du retard 0 (FIG. 54 (b)), nous constatons que le poids relatif du lobe retardé augmente légèrement avec k_{li} . Ceci correspond bien à une augmentation du poids du mode 1 par rapport au mode 0. Cependant, nous sommes proches du maximum possible de chargement dans un milieu diphasique chargé en particules solides. Rappelons en effet que pour un cristal cubique face centrée la compacité est de 74% (à comparer avec $xv=66\%$). Il faut se ramener à un cas plus réel de suspensions diphasiques.

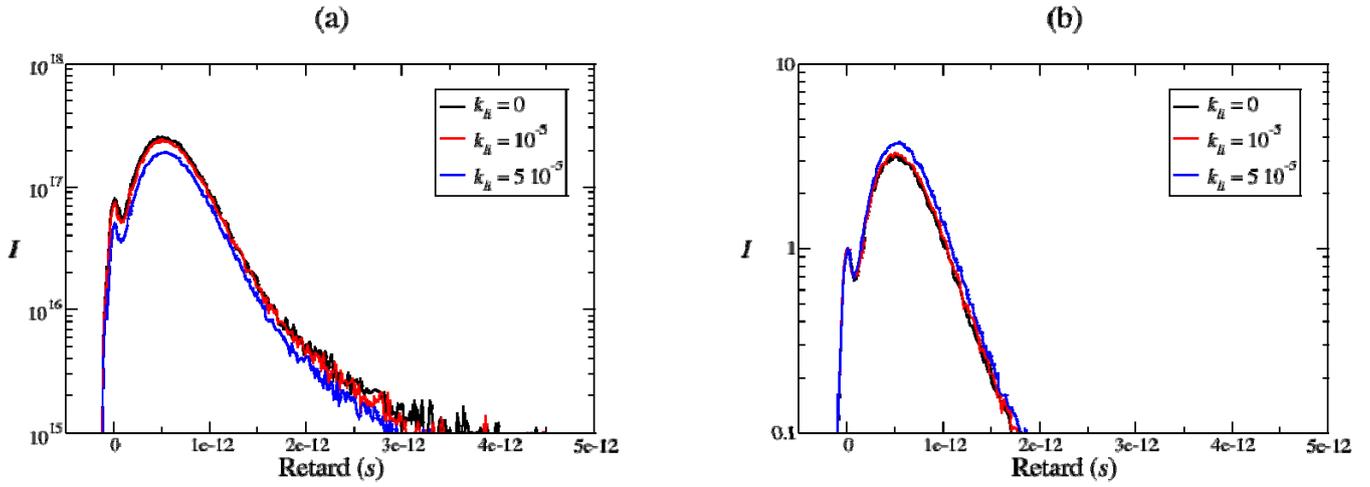


FIG. 54 : Intensité diffusée (a) sans et (b) avec normalisation pour $R=50 \mu\text{m}$ et pour trois k_{li} (0 , 10^{-5} et $5 \cdot 10^{-5}$) en fonction du retard. La cuve est de 1 mm .

Nous conservons donc un trajet optique de 1 mm . Nous considérons une fraction volumique de 13% . Afin d'observer un effet sur le profil temporel, nous augmentons considérablement k_{li} ($=10^{-3}$), tout en restant dans la limite de validité de calcul de K_{ext} et Ω . Nous traçons le profil temporel de l'intensité diffusée (FIG. 55 (a)). Nous observons une baisse significative de l'intensité globale (perte d'environ 7 décades entre le cas sans et avec absorption). Après normalisation par l'intensité du retard 0 (FIG. 55 (b)), nous observons que l'épaule retardée augmente relativement au pic non retardé quand k_{li} augmente. Nous retrouvons le même effet que ci-dessus mais dans des conditions plus réalistes.

Nous voulons savoir si cette augmentation est due à la fonction de phase ou au couple (K_{ext} , Ω). Nous traçons les profils temporels où la fonction de phase puis (K_{ext} , Ω) sont calculés avec k_{li} . Il s'agit des mêmes cas intermédiaires que ceux que nous avons considérés dans l'étude de l'absorption dans la particule. Nous constatons alors que la baisse globale de l'intensité diffusée observée pour l'ensemble des cas présentés est bien due à K_{ext} et Ω . Nous constatons que l'épaule est liée principalement à la modification de la fonction de phase en présence d'absorption dans le liant. L'absorption dans le liant modifie la fonction de phase en privilégiant le mode 1 (plus retardé) par rapport au mode 0. Nous remarquons de plus que l'effet seul de l'albédo et le K_{ext} semble augmenter légèrement cet épaulement. Par analogie avec l'absorption dans les particules, nous nous attendrions plutôt à une baisse relative de cet épaulement. Le raisonnement était en effet de dire que les trajectoires les plus longues sont les trajectoires les plus exposées au phénomène d'absorption et donc tuées. Ici ce raisonnement est faux car les trajectoires les plus retardées sont les trajectoires internes aux particules (maximum de mode 1) et donc les plus protégées de l'absorption du liant. Cependant, l'ensemble de ces effets (augmentation de l'épaulement due à M_{11} , K_{ext} et Ω) reste négligeable par rapport à la baisse globale de l'intensité diffusée due à l'albédo et à K_{ext} (FIG. 55 (a)).

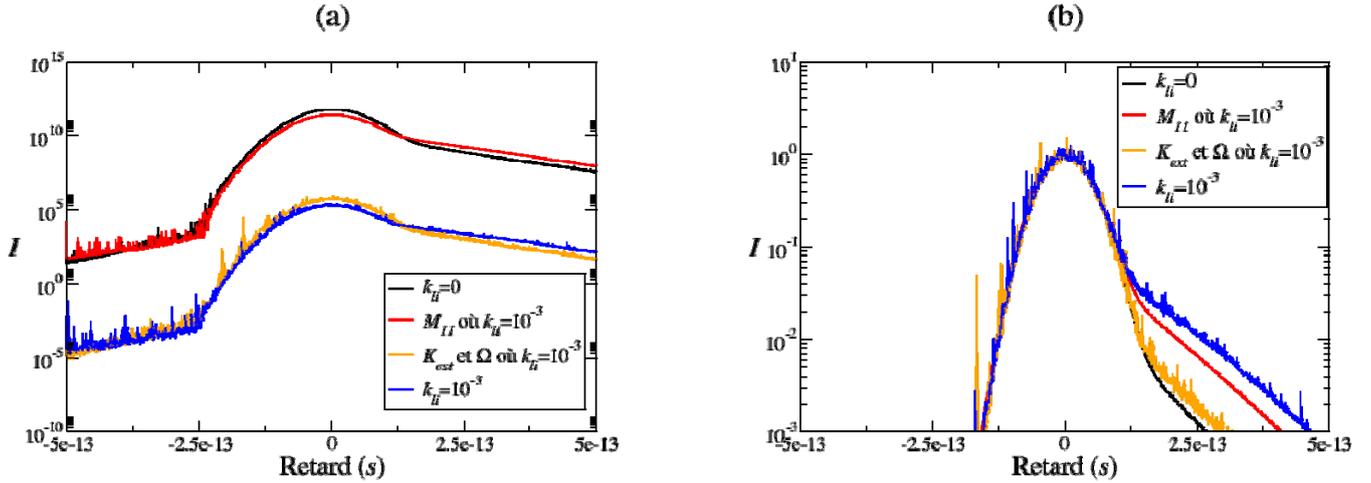


FIG. 55 : (a) Intensité diffusée en fonction du temps pour $R=50 \mu\text{m}$ et deux k_{li} (0 et 10^{-3}). (b) Intensité diffusée normalisée en fonction du temps pour $R=50 \mu\text{m}$ et avec $k_{li}=0$, $k_{li}=10^{-3}$ et les cas intermédiaires. Dans le cas 1, seule la fonction de phase est dépendante de k_{li} et dans le cas 2, K_{ext} et Ω sont dépendants de k_{li} . La cuve est de 1 mm .

Nous ne pouvons pas aller au-delà de ces valeurs de k_{li} (10^{-3}) car elles correspondent à des épaisseurs optiques démesurées et nécessiteraient des temps de calcul prohibitifs. De plus, les modèles de calcul de K_{ext} et Ω , présentés au Chapitre 2, ne sont plus valables pour ces valeurs de k_{li} . Afin de pouvoir observer les effets du liant sur le profil temporel, nous avons décidé de nous intéresser à l'intensité rétrodiffusée.

3.2. Cas de la rétrodiffusion

L'objectif de notre étude est d'évaluer le poids de K_{ext} , Ω et M_{11} (ou bien, plus en amont encore de k_{li} , R et xv) sur la signature temporelle de l'intensité rétrodiffusée. Nous modélisons et représentons l'intensité rétrodiffusée pour deux états de polarisation, parallèle et croisée, par rapport à celle du laser incident. D'après le formalisme de Stokes, nous notons sur l'ensemble des figures ces deux états de polarisation respectivement $(I+Q)/2$ et $(I-Q)/2$. Nous traçons les intensités en fonction du temps pour des particules de $1 \mu\text{m}$ pour des valeurs de k_{li} croissantes (FIG. 56).

Pour l'intensité parallèle sans absorption, nous observons deux régimes distincts. Le premier régime que nous appellerons lobe « retour direct » est un pic relativement centré en zéro ou très peu retardé. Il pourrait correspondre à des trajectoires ne comprenant qu'un seul évènement de rétrodiffusion par une particule unique. Le deuxième régime que nous appellerons lobe retardé apparaît pour des retards plus importants. Il pourrait correspondre à des trajectoires où le photon subit un grand nombre de diffusion avant successives. Chaque petite déviation finit par renvoyer le photon vers l'arrière. Pour la polarisation croisée sans absorption, seul le lobe retardé est visible pour $R=1 \mu\text{m}$. Le lobe « retour direct » apparaît complètement polarisé et le lobe retardé bien dépolarisé. Ceci confirme donc nos hypothèses quant à la nature des deux lobes. En effet, un évènement de diffusion unique en rétrodiffusion ne dépolarise pas la lumière si nous considérons des particules sphériques (polarisation complète du lobe « retour direct »). A l'opposé, un grand nombre de diffusions dépolarise la lumière (cas du lobe retardé).

Lorsque nous augmentons k_{li} , le lobe retardé disparaît complètement alors que le lobe « retour direct » ne semble que très peu affecté. Ceci s'explique par le fait que les photons

parcourant un long trajet dans le liant sont plus sensibles à k_{li} . L'augmentation de k_{li} entraîne donc une modification du poids des deux lobes. De plus, le lobe « retour direct » étant complètement polarisé, seule l'étude de la polarisation parallèle est pertinente pour une forte absorption du liant. Notre étude consiste à étudier l'impact des différents paramètres sur le poids et la forme des deux lobes observés. Au second chapitre, nous avons défini une gamme de k_{li} où les modèles de calcul de K_{ext} et Ω restent valables. Nous vérifions bien que pour toutes les simulations les valeurs de k_{li} sont inférieures ou égales à 10^{-3} . A titre indicatif, l'ensemble des paramètres de simulation est résumé dans TAB. 9, à la fin du chapitre.

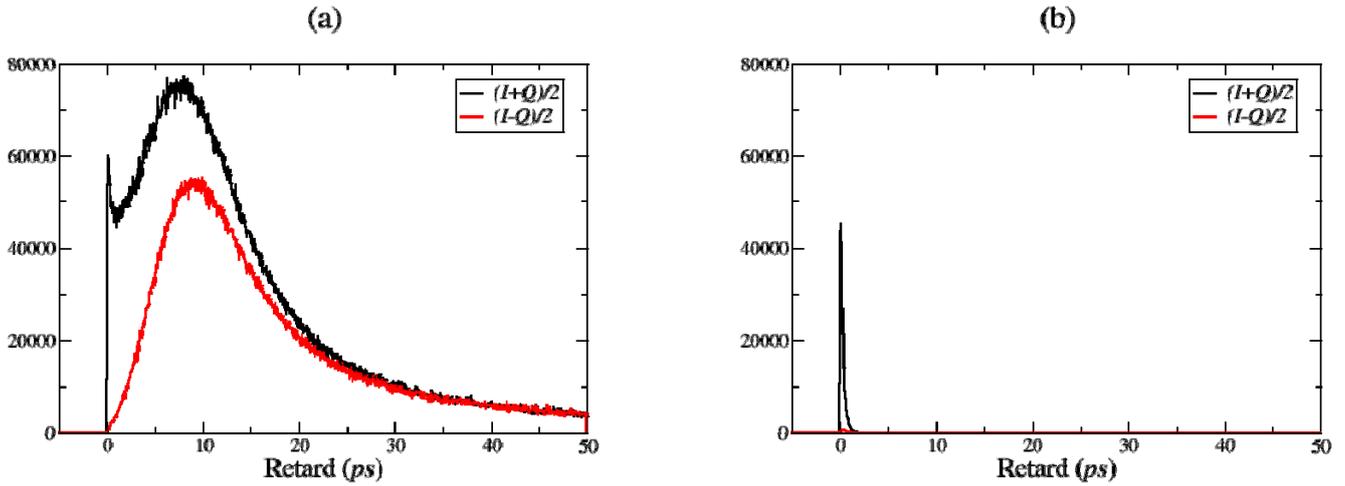


FIG. 56 : Intensité $(I+Q)/2$ et $(I-Q)/2$ en fonction du temps pour $R=1 \mu m$ et pour (a) $k_{li}=0$ et (b) $k_{li}=10^{-3}$.

Au cours du premier chapitre, nous avons constaté que des k_{li} inférieurs ou égaux à 10^{-3} ne modifient que légèrement la forme de la fonction de phase temporelle. Nous voulons savoir si cette faible modification a un impact sur le profil de l'intensité pour plusieurs rayons de particules (FIG. 57). L'albédo est fixé à 1, le coefficient d'extinction à $20000 m^{-1}$ mais les fonctions de phase sont calculées pour $k_{li}=0$ et $k_{li}=10^{-3}$. Pour de fortes absorptions et un fort rayon (FIG. 57 (c)), nous observons une légère augmentation du temps de vol des photons ainsi que du niveau relatif du lobe retardé. L'augmentation du poids relatif de l'énergie rétrodiffusée (TAB. 8), $M_{11}(180^\circ)$ normalisée sur les $4\pi Sr$, devrait provoquer l'augmentation relative du lobe « retour direct », ce qui est contradictoire avec l'observation faite. L'augmentation du temps de vol est donc exclusivement due au fait que la fonction de phase soit plus piquée (augmentation de g total). Les trajectoires multi-diffusées dans le lobe retardé seront en effet plus longues. En revanche, la diminution de $\tau(180^\circ)$, *i.e.* le temps interne à la particule (FIG. 5 du Chapitre 1), ne semble pas avoir d'impact. Rappelons que ce temps passe de 1.3 à 1 ps (FIG. 19) quand k_{li} passe de 0 à 10^{-3} . La réduction du temps interne aux particules devrait avoir un effet opposé à celui engendré par le facteur d'asymétrie et principalement être limitée au lobe « retour direct ». L'impact de l'asymétrie des fonctions de phase et la nature globale des trajectoires des photons semblent donc l'emporter. De plus, pour observer cet impact de l'asymétrie des fonctions de phase, nous devons considérer des particules très grosses et des liants très absorbants ($R > 50 \mu m$ et $k_{li} > 10^{-3}$).

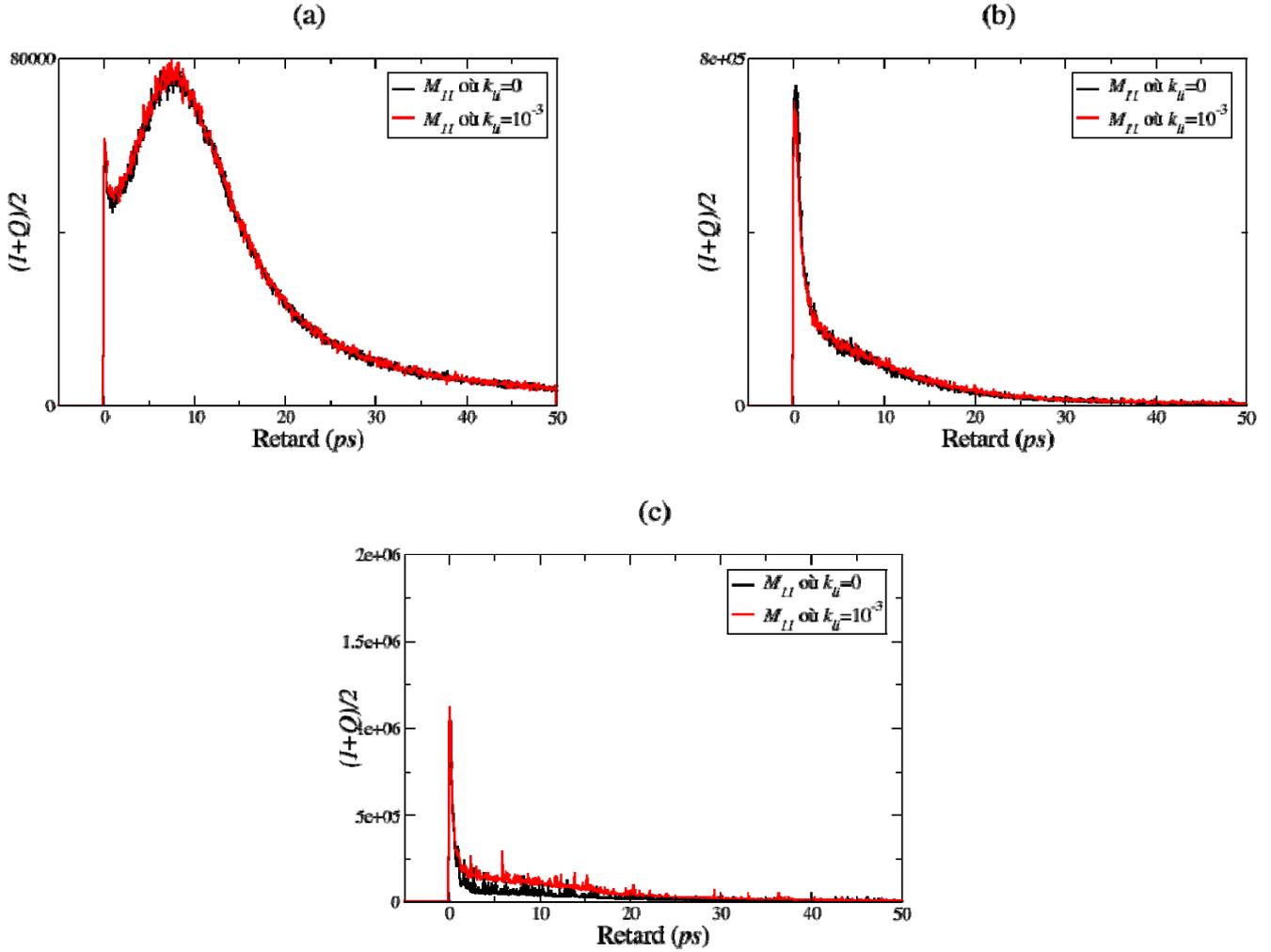


FIG. 57 : Intensité normalisée au pic « retour direct » avec et sans absorption dans la fonction de phase pour $\Omega=1$, $K_{ext}=20000 \text{ m}^{-1}$ et pour trois rayons de particules ((a) $R=1 \mu\text{m}$, (b) $R=10 \mu\text{m}$ et (c) $R=50 \mu\text{m}$).

Rayon (μm)	k_{li}	g_t	$1000 * M_{II}(180^\circ)$
1	0	0.971	0.55
	10^{-3}	0.971	0.57
10	0	0.985	24.49
	10^{-3}	0.986	24.76
50	0	0.984	39.09
	10^{-3}	0.988	48.73

TAB. 8 : Modification des paramètres d'intérêt de la fonction de phase avec et sans absorption.

Pour simplifier notre étude paramétrique et étudier spécifiquement le poids du K_{ext} et de l'albédo, nous choisissons de nous limiter à des cas où la modification de la fonction de phase par l'absorption du liant n'a pas d'impact sur la signature temporelle, *i.e.* $R \leq 10 \mu\text{m}$ et $k_{li} \leq 10^{-3}$. Par la suite, nous supposons que les fonctions de phase sont calculées sans absorption dans le liant. Pour un albédo de 1 et pour quatre rayons donnés (FIG. 58 (a)), nous retrouvons les deux lobes présentés ci-dessus. Entre 0.5 et $1 \mu\text{m}$, nous observons que le lobe retardé se décale vers les temps positifs. Ceci s'explique par le fait que les fonctions de phase sont de plus en plus piquées vers l'avant lorsque R augmente. Les trajectoires correspondantes à ce

lobe sont donc de plus en plus longues et de moins en moins probables. Nous constatons que pour des rayons plus importants ($R \geq 5 \mu m$) le lobe retardé s'effondre. A l'inverse, le poids relatif du lobe « retour direct » augmente avec le rayon. Lorsque le liant devient absorbant (FIG. 58 (b), (c) et (d)), nous observons une diminution voire une disparition du lobe retardé. Seul le lobe « retour direct » reste présent (FIG. 58 (d)) pour un faible albédo (*i.e.* fort k_{ij}).

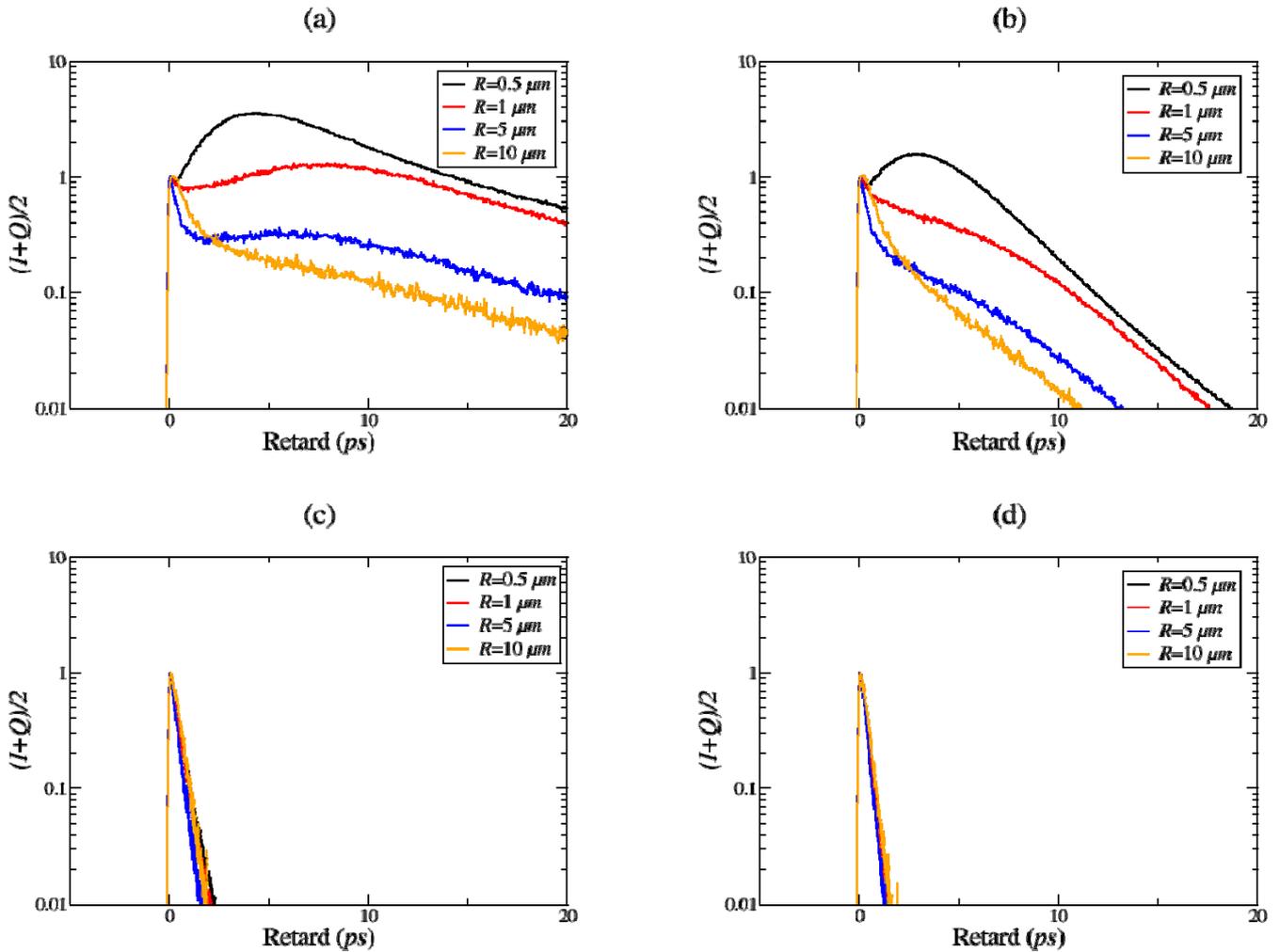


FIG. 58 : Intensité parallèle en fonction du retard pour plusieurs rayons quand (a) $\Omega=1$, (b) $\Omega=0.95$, (c) $\Omega=0.5$ et (d) $\Omega=0.3$. K_{ext} est fixé à $20000 m^{-1}$.

Etudions plus en détail ce lobe « retour direct » en présence de forte absorption dans le liant. Rappelons qu'il est fortement polarisé et statistiquement en moyenne gouverné par un seul événement de rétrodiffusion par une particule unique. Ce lobe semble être indépendant du rayon et de l'albédo pour un milieu très absorbant. Nous le vérifions (FIG. 59 (a)) en traçant l'intensité rétrodiffusée pour plusieurs rayons et albédos. En revanche, une augmentation de K_{ext} diminue le temps de vol global (FIG. 59 (b)). Le coefficient d'extinction gouverne alors la position de l'unique événement de rétrodiffusion. Ainsi, un coefficient d'extinction de $5000 m^{-1}$ correspond à une distance aller-retour de $400 \mu m$ soit une durée d'une picoseconde environ ($500 fs$ et $250 fs$ environ pour les deux autres K_{ext}). La mesure expérimentale du temps de décroissance de ces signatures temporelles pourrait donc permettre de déterminer directement le K_{ext} . En revanche, le rayon et l'albédo restent inconnus et nous semblent très difficilement accessibles.

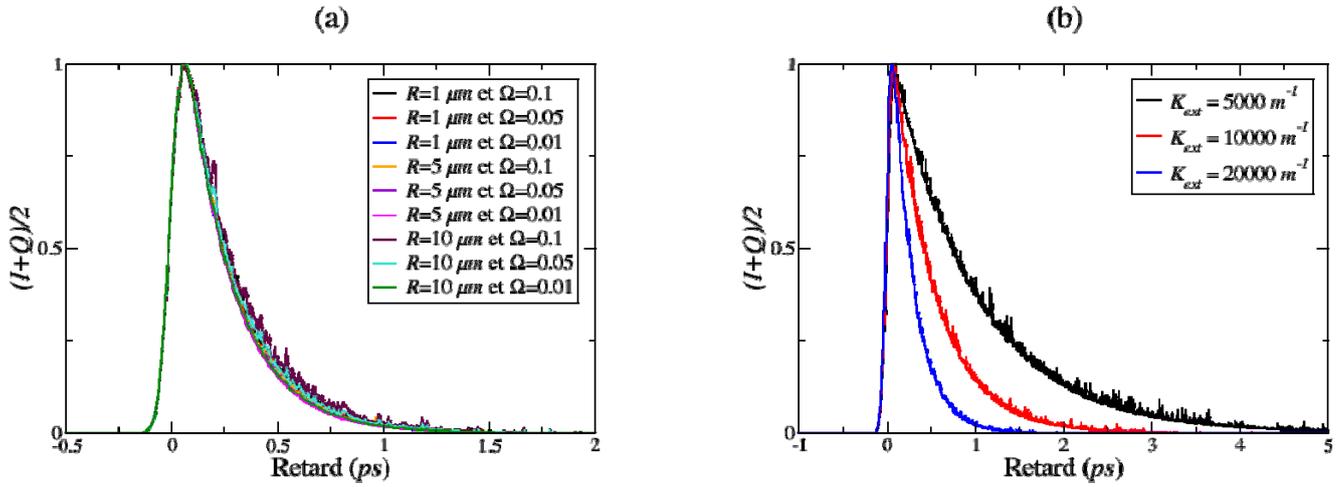


FIG. 59 : (a) Intensité parallèle en fonction du retard pour $K_{ext}=20000 \text{ m}^{-1}$ et pour plusieurs couples (R, Ω) . (b) Intensité en fonction du retard pour trois K_{ext} (5000 m^{-1} , 10000 m^{-1} et 20000 m^{-1}) et pour un albédo de 0.1 et un rayon de $1 \text{ }\mu\text{m}$.

Pour de plus faibles k_{li} , nous sommes dans un régime intermédiaire où coexiste les lobes retardé et « retour direct ». Nous reprenons le cas de simulation exposé (FIG. 58 (b)) pour des rayons de 1 et $10 \text{ }\mu\text{m}$ que nous étendons à d'autres K_{ext} . Nous constatons (FIG. 60) que le temps de vol diminue avec K_{ext} pour ces deux rayons. Ce phénomène avait été observé pour le lobe « retour direct » dans le cas de très forte absorption, nous l'observons ici également au niveau du lobe retardé. Nous généralisons le résultat de la FIG. 58 (b) en observant que le poids relatif du lobe retardé diminue avec le rayon quel que soit K_{ext} . A l'inverse du régime de forte absorption, nous ne pouvons pas ici remonter à la valeur de K_{ext} à partir d'une seule mesure du profil temporel car ce profil dépend de tous les paramètres (K_{ext} , Ω et R). Contrairement au cas fortement absorbant, une détermination complète de tous ces paramètres nous paraît envisageable en réalisant des mesures pour plusieurs longueurs d'onde et états de polarisation. L'objectif du chapitre 4 est de réaliser une mesure de rétrodiffusion temporelle pour plusieurs longueurs d'onde afin d'évaluer la faisabilité d'une telle détermination.

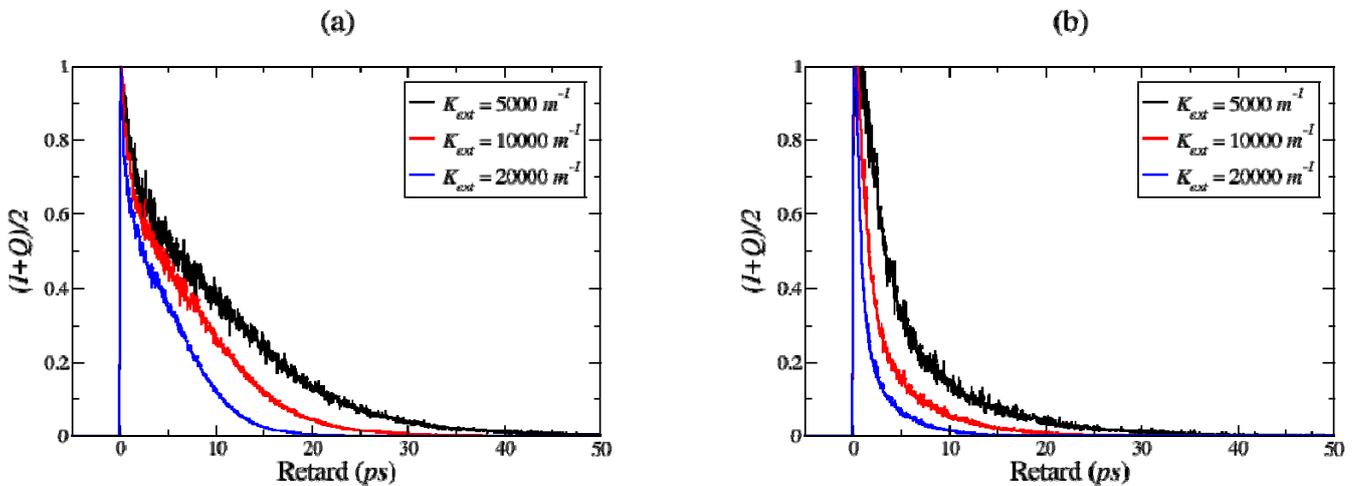


FIG. 60 : Intensité parallèle en fonction du retard lorsque $\Omega=0.95$ pour plusieurs K_{ext} et pour (a) $R=1 \text{ }\mu\text{m}$ et (b) $R=10 \text{ }\mu\text{m}$.

Rayon (μm)	k_i	N_p (m^{-3})	K_{ext} (m^{-1})	Ω	N° de la figure
0.5	0	$5.99 \cdot 10^{16}$	20000	1	FIG. 58 (a)
	$6.37 \cdot 10^{-5}$	$5.69 \cdot 10^{16}$	20000	0.95	FIG. 58 (b)
	$6.37 \cdot 10^{-4}$	$3.00 \cdot 10^{16}$	20000	0.5	FIG. 58 (c)
	$8.91 \cdot 10^{-4}$	$1.80 \cdot 10^{16}$	20000	0.3	FIG. 58 (d)
1	0	$4.11 \cdot 10^{15}$	20000	1	FIG. 56
	10^{-3}	$4.11 \cdot 10^{15}$	35441	0.56	FIG. 56
	0	$4.11 \cdot 10^{15}$	20000	1	FIG. 57 (a) et FIG. 58 (a)
	$6.37 \cdot 10^{-5}$	$3.90 \cdot 10^{15}$	20000	0.95	FIG. 58 (b)
	$6.37 \cdot 10^{-4}$	$2.05 \cdot 10^{15}$	20000	0.5	FIG. 58 (c)
	$8.91 \cdot 10^{-4}$	$1.23 \cdot 10^{15}$	20000	0.3	FIG. 58 (d)
	$1.15 \cdot 10^{-3}$	$4.11 \cdot 10^{14}$	20000	0.1	FIG. 59 (a)
	$1.21 \cdot 10^{-3}$	$2.05 \cdot 10^{14}$	20000	0.05	FIG. 59 (a)
	$1.26 \cdot 10^{-3}$	$4.11 \cdot 10^{13}$	20000	0.01	FIG. 59 (a)
	$5.73 \cdot 10^{-4}$	$2.05 \cdot 10^{14}$	10000	0.1	FIG. 59 (b)
	$2.86 \cdot 10^{-4}$	$1.03 \cdot 10^{14}$	5000	0.1	FIG. 59 (b)
	$3.18 \cdot 10^{-5}$	$1.95 \cdot 10^{15}$	10000	0.95	FIG. 60 (a)
$1.59 \cdot 10^{-5}$	$9.75 \cdot 10^{14}$	5000	0.95	FIG. 60 (a)	
5	0	$1.15 \cdot 10^{14}$	20000	1	FIG. 58 (a)
	$6.37 \cdot 10^{-5}$	$1.09 \cdot 10^{14}$	20000	0.95	FIG. 58 (b)
	$6.37 \cdot 10^{-4}$	$5.74 \cdot 10^{13}$	20000	0.5	FIG. 58 (c)
	$8.91 \cdot 10^{-4}$	$3.44 \cdot 10^{13}$	20000	0.3	FIG. 58 (d)
	$1.15 \cdot 10^{-3}$	$1.15 \cdot 10^{13}$	20000	0.1	FIG. 59 (a)
	$1.21 \cdot 10^{-3}$	$5.74 \cdot 10^{12}$	20000	0.05	FIG. 59 (a)
	$1.26 \cdot 10^{-3}$	$1.15 \cdot 10^{12}$	20000	0.01	FIG. 59 (a)
10	0	$3.07 \cdot 10^{13}$	20000	1	FIG. 57 (b) et FIG. 58 (a)
	$6.37 \cdot 10^{-5}$	$2.92 \cdot 10^{13}$	20000	0.95	FIG. 58 (b)
	$6.37 \cdot 10^{-4}$	$1.54 \cdot 10^{13}$	20000	0.5	FIG. 58 (c)
	$8.91 \cdot 10^{-4}$	$9.21 \cdot 10^{12}$	20000	0.3	FIG. 58 (d)
	$1.15 \cdot 10^{-3}$	$3.07 \cdot 10^{12}$	20000	0.1	FIG. 59 (a)
	$1.21 \cdot 10^{-3}$	$1.54 \cdot 10^{12}$	20000	0.05	FIG. 59 (a)
	$1.26 \cdot 10^{-3}$	$3.07 \cdot 10^{11}$	20000	0.01	FIG. 59 (a)
	$3.18 \cdot 10^{-5}$	$1.46 \cdot 10^{13}$	10000	0.95	FIG. 60 (b)
	$1.59 \cdot 10^{-5}$	$7.29 \cdot 10^{12}$	5000	0.95	FIG. 60 (b)
50	0	$1.26 \cdot 10^{12}$	20000	1	FIG. 57 (c)

TAB. 9 : Récapitulatif des paramètres de simulation.

4. SYNTHÈSE DU CHAPITRE 3

L'objectif de ce chapitre est de modéliser les profils temporels dans un milieu diffusant et absorbant et d'étudier l'impact de l'absorption. Nous avons présenté le code de Monte-Carlo prenant en compte les phénomènes de diffusion et d'absorption. Nous avons comparé deux approches différentes : semi-analytique et complet. Le code de Monte-Carlo semi-analytique converge plus rapidement pour de petites particules et pour de fortes absorptions. Des modifications ont été apportées à ce code afin de prendre en compte la distribution en taille des particules et les interfaces en rétrodiffusion.

En présence d'absorption dans les particules, nous avons montré une diminution du temps de vol des photons quel que soit le rayon des particules. Pour de grosses particules, nous avons observé la présence de deux lobes séparés temporellement. Le premier est directement lié aux événements du mode 0 alors que le deuxième plus retardé est lié à une combinaison d'évènement des modes 1 et 0. L'étude fine du poids relatif des deux lobes démontre une très grande sensibilité à l'absorption des particules. Nous avons comparé la dépendance avec les parties réelle et imaginaire de l'indice de la particule : une augmentation de k_{pa} et de n_{pa} diminue l'intensité relative du lobe retardé mais les retards moyens varient de manière opposée. Nous avons appliqué ce code de Monte-Carlo au cas concret d'un jet d'alumine dans l'air. Nous avons constaté que la sensibilité aux indices n'existe que dans des systèmes relativement compacts et denses.

En présence d'absorption dans le liant, nous avons montré que l'intensité globale est fortement diminuée et le lobe retardé est très légèrement augmenté après normalisation au lobe centré en 0. Cette augmentation reste négligeable par rapport à la baisse globale de l'intensité diffusée. Afin de pouvoir observer des effets importants du liant sur le profil temporel, nous nous sommes intéressés à l'intensité rétrodiffusée. Nous avons observé deux types de diffusion nommés lobe « retour direct » (très polarisé) et lobe retardé (fortement dépolarisé). Le lobe retardé disparaît pour de fortes absorptions et seul le lobe « retour direct » demeure. Ce lobe est alors indépendant du rayon et de l'albédo mais dépend fortement du K_{ext} . Pour des milieux moins absorbants, le profil temporel dépend à la fois du rayon, de l'albédo et de K_{ext} . Nous avons de plus évalué l'impact sur le profil temporel de la modification de la fonction de phase avec k_{li} . Cet impact n'est visible que pour de grosses particules et de forts k_{li} .

CHAPITRE 4 : MESURE D'UNE SIGNATURE DE RETRODIFFUSION TEMPORELLE

L'objectif de ce chapitre est de présenter une mesure en rétrodiffusion afin d'illustrer la diminution du temps de vol des photons quand le liant devient absorbant. Nous avons choisi le cas d'une suspension de particules de silice en suspension dans de l'eau. L'intérêt est que lorsque nous accordons la longueur d'onde du laser dans l'IR, l'absorption de l'eau va varier sur plusieurs ordres de grandeur. Il devient alors possible de choisir presque n'importe quelle valeur pour k_i . Rappelons en effet que l'absorption passe de 0 dans le visible à une valeur maximale de $3 \cdot 10^{-1}$ pour $\lambda=3 \mu\text{m}$. Le travail de thèse est principalement numérique et nous nous contentons ici d'exploiter quelques expériences obtenues par ailleurs.

Après avoir présenté le dispositif expérimental femtoseconde de mesure de temps de vol, nous montrerons des signatures temporelles de rétrodiffusion pour plusieurs longueurs d'onde (et donc pour plusieurs k_i). Une confrontation expérience/simulation sera également présentée. Finalement, nous étendrons le cas expérimental afin de discuter de l'apport éventuel de plusieurs signatures temporelles (visible, IR, polarisation croisée) quant à la détermination de la granulométrie d'un échantillon inconnu.

1. PRESENTATION DU BANC DE MESURE DE DIFFUSION TEMPORELLE

Nous disposons d'une source laser kHz femtoseconde amplifiée (Coherent « libra HE », Santa Clara, CA, USA). La durée des impulsions est de 100 fs . Elles sont centrées à 800 nm et ont une énergie de 3 mJ . Le faisceau est séparé en deux voies (FIG. 61). La première voie (2 mJ) est injectée dans un système TOPAS (Light Conversion Ltd., Vilnius, Lituanie). La sortie est continuellement accordable de 200 nm à $20 \mu\text{m}$. Il s'agit en premier lieu d'un système amplificateur paramétrique optique (OPA) pompé à 800 nm et générant de la lumière dans le proche infrarouge ($1\text{-}2.5 \mu\text{m}$). Les différents faisceaux sortant de l'OPA (signal, Idler et pompe) sont injectés dans des générateurs d'harmonique afin d'obtenir l'ultraviolet et le visible (phénomène non linéaire de doublage, quadruplage et somme de fréquences). L'infrarouge plus lointain ($3 - 20 \mu\text{m}$) est réalisé à l'aide d'une différence de fréquences entre les faisceaux Signal et Idler. L'ensemble de ces faisceaux est ensuite dirigé vers le milieu diffusant et absorbant. La lumière, diffusée vers l'avant ou rétrodiffusée, est ensuite dirigée vers un milieu Kerr dont le rôle est de réaliser l'échantillonnage temporel [7]. La voie 2 (1 mJ) est utilisée comme une porte optique. Une ligne à retard permet d'ajuster finement le temps d'arrivée relatif des deux impulsions sur la lame Kerr. Le milieu Kerr ne laisse passer la lumière provenant de l'échantillon uniquement si les deux faisceaux sont superposés spatialement et temporellement.

Le système d'échantillonnage a initialement été développé dans le visible et en diffusion avant [12]. Le principe est de focaliser les deux faisceaux (voies 1 et 2) sur la lame Kerr. Cette dernière est placée entre deux polariseurs croisés P_1 et P_2 (FIG. 62). Il s'agit ici d'une lame en BK_7 . Le faisceau porte optique (voie 2) induit une biréfringence instantanée dans la lame Kerr. Cette biréfringence tourne la polarisation de la voie 1. Par conséquent, lorsque les deux faisceaux sont superposés, la lumière réémise provenant de l'échantillon est visible par le détecteur. Les détecteurs utilisés dans le visible sont des photomultiplicateurs (Perkin Elmer *MH973*, Waltham, MA, USA) et ils sont très peu sensibles dans l'infrarouge.

Afin d'étendre notre détection et notre mesure de temps de vol dans l'infrarouge, nous avons développé un échantillonnage temporel basé sur un mélange à 4 ondes.

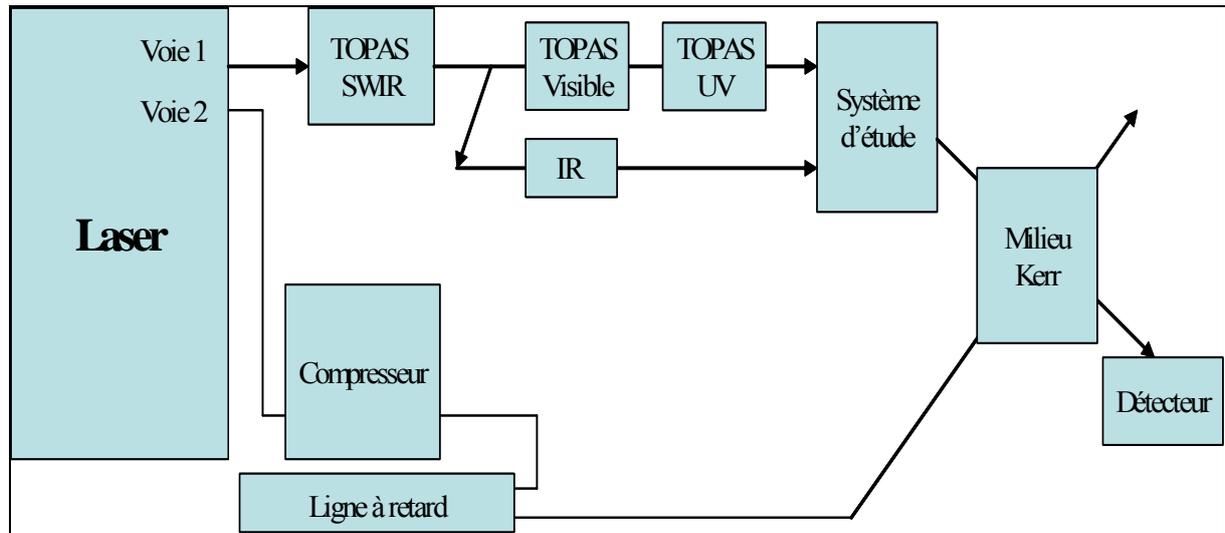


FIG. 61 : Schéma de principe des installations du laboratoire femtoseconde.

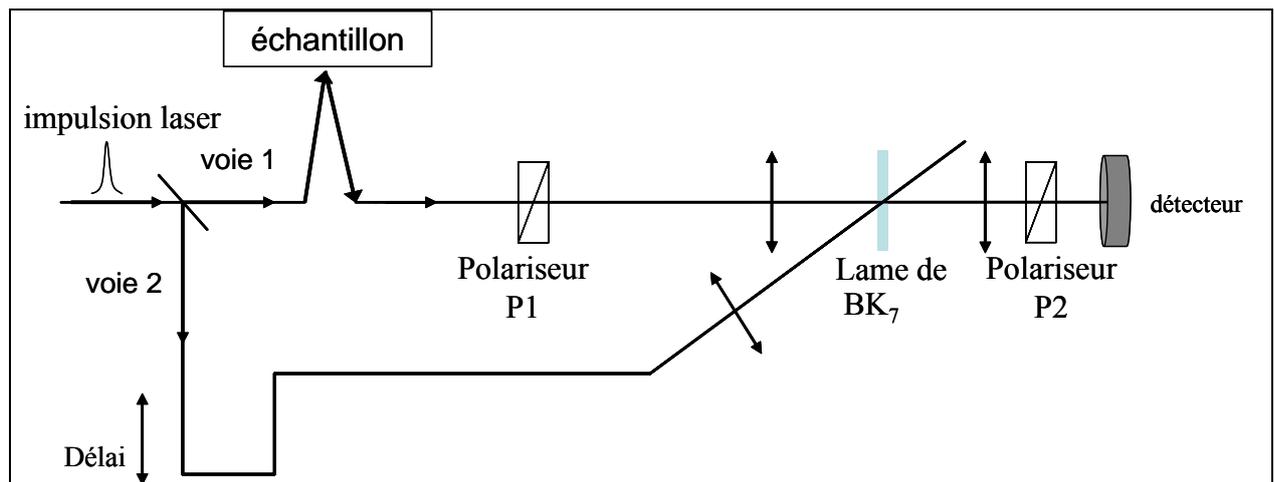


FIG. 62 : Principe de l'échantillonnage Kerr : amplification de la partie balistique ou diffusée.

En fait, l'effet Kerr et le mélange à 4 ondes sont deux effets non linéaires indissociables. Pour le comprendre, nous écrivons la polarisation p non linéaire du troisième ordre de la manière suivante [82] :

$$\vec{p} = \chi \cdot \vec{E}_1 \vec{E}_2 \vec{E}_2^* + \chi \cdot \vec{E}_2 \vec{E}_1 \vec{E}_1^* + \chi \cdot \vec{E}_2 \vec{E}_2 \vec{E}_1^* + \dots \quad (4.1)$$

où nous avons écrit qu'une partie de l'ensemble possible des termes. \vec{E}_1 et \vec{E}_2 désignent les champs électriques associés à la voie 1 et 2 respectivement, χ est la susceptibilité non linéaire du troisième ordre. Le premier terme est responsable de l'effet Kerr tel que nous l'utilisons dans le visible : l'intensité du faisceau de $\vec{E}_2 \vec{E}_2^*$ vient modifier l'indice de propagation du faisceau 1. Le deuxième terme est le symétrique et correspond quant à lui à la modification de l'indice du faisceau 2 par le faisceau 1. Il est négligeable dans notre cas car l'énergie du faisceau 1 en sortie de l'échantillon est beaucoup plus faible que

celle de la voie 2. De manière générale, seuls les premier et troisième termes de la décomposition ci-dessus sont importants car ils font intervenir deux fois le champ \vec{E}_2 et qu'une seule fois le champ \vec{E}_1 . Ce troisième terme est aussi appelé mélange à 4 ondes. Il est responsable de la création d'une onde de pulsation $2\omega_2 - \omega_1$. Ce phénomène est d'une efficacité comparable à l'effet Kerr et il permet tout autant de réaliser un échantillonnage temporel (FIG. 63). Les deux phénomènes ont en effet pour origine les mêmes mécanismes physiques, *i.e.* la réponse ultra rapide du nuage électronique du milieu Kerr [83]. Le très grand avantage du mélange à 4 ondes par rapport à l'effet Kerr est de décaler la lumière de l'infrarouge vers le visible, tout en réalisant l'échantillonnage temporel. Il suffit alors de détecter le mélange à 4 ondes à l'aide d'un photomultiplicateur plus performant que des détecteurs *IR* conventionnels. Ainsi, un seul et unique détecteur est alors utilisé sur toute la bande ($200 \text{ nm} - 20 \mu\text{m}$). Nous avons réalisé des échantillonnages jusqu'à des longueurs d'onde de $4 \mu\text{m}$ avec des limites de détection comparables voire supérieures à celles obtenues sur la bande visible (épaisseur optique typique de 20). Au-delà de $4 \mu\text{m}$, la transmission du BK_7 devient problématique. Le problème devrait être résolu en utilisant une lame de germanium pour générer le mélange 4 ondes. Pour les besoins de ce travail de thèse, la bande désormais accessible ($0.4\text{-}3 \mu\text{m}$) est amplement suffisante pour faire varier le coefficient d'absorption.

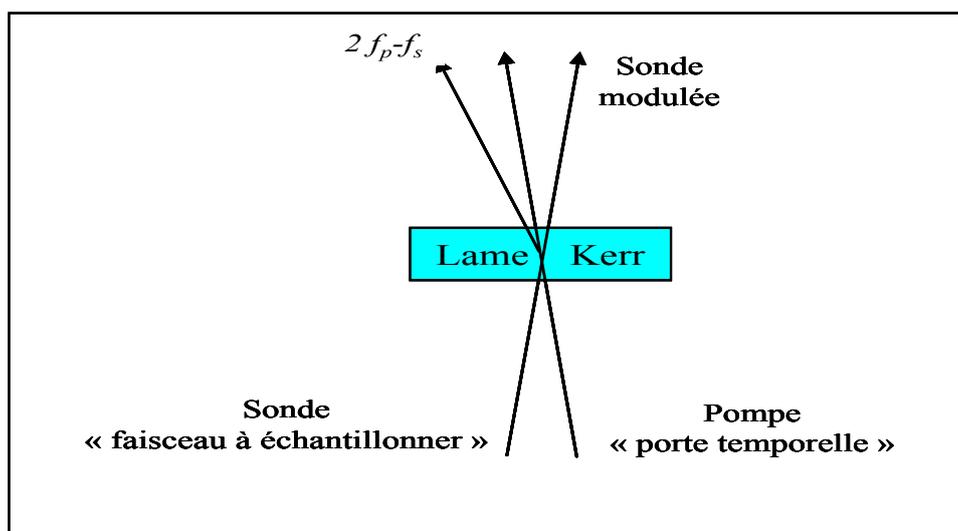


FIG. 63 : Principe du mélange à 4 ondes.

2. MESURE DE RETRODIFFUSION

Nous avons réalisé un échantillon très concentré d'une suspension aqueuse de particules de silice. Le rayon moyen des particules est égal à $0.5 \mu\text{m}$. Nous avons pu vérifier à partir d'une mesure d'un spectre d'extinction sur un échantillon dilué, inversé par une méthode numérique développée au DOTA [76] que ce rayon moyen était valide. Pour l'ensemble de ce chapitre, la silice est non absorbante pour les longueurs d'onde utilisées. L'échantillon a été préparé dans le but d'obtenir un coefficient d'extinction à 600 nm d'environ 30000 m^{-1} . Mais vu les concentrations mises en jeu et les fortes incertitudes (dilution, solubilisation et agrégation des particules), notre expérience est entachée d'incertitude quant à la connaissance précise de la concentration en particule réellement

diluée dans le milieu. Nous avons réalisé une mesure à 600 nm à l'aide de l'échantillonnage Kerr classique afin de disposer d'un point de mesure où l'absorption du liant est rigoureusement nulle. Nous avons de plus réalisé trois mesures à différentes longueurs d'onde dans l'infrarouge (1330, 1430 et 1930 nm). Nous avons tenté sans succès de nous rapprocher du maximum d'absorption de l'eau vers 3 μm . Très rapidement, le niveau d'intensité rétrodiffusée chute et nous n'avons pas réussi à dépasser 2 μm .

La calibration et la pureté spectrale de l'émission infrarouge par le TOPAS n'étant pas facilement contrôlable, nous utilisons un monochromateur (Newport, Oriel Instrument 74125, Stratford, MT, USA) visible devant le détecteur afin de précisément connaître la longueur d'onde. Les trois longueurs d'onde mentionnées sont d'ailleurs calculées d'après la valeur visible choisie au monochromateur et en utilisant la formule de conversion du mélange 4 ondes $\omega_{\text{vis}} = 2.\omega_p - \omega_{\text{IR}}$ où nous avons introduit respectivement la pulsation visible après conversion, la pulsation de la pompe et la pulsation du signal IR. Pour l'ensemble des quatre longueurs d'onde, nous avons collecté les signatures temporelles de la lumière rétrodiffusée et ce pour deux états de polarisation, parallèle et perpendiculaire par rapport à la polarisation du faisceau incident (respectivement $(I+Q)/2$ et $(I-Q)/2$). Nous représentons tout d'abord les résultats obtenus pour les polarisations parallèles (FIG. 64). Nous avons normalisé les courbes par l'intensité obtenue à 1 ps. Ce retard correspond globalement à l'intersection du premier lobe (retour direct et diffusion de l'interface eau/cuve) et du deuxième lobe retardé. Notons que l'intensité relative des deux pics n'est pas reproductible d'une mesure à l'autre. En effet, un réalignement imperceptible de la cuve ou du laser peut changer complètement l'intensité de la partie spéculaire envoyée vers le détecteur, sans trop modifier l'intensité de la diffusion volumique. Il n'est donc pas indiqué de normaliser ici les courbes par rapport au retard 0. Rappelons que ce retard est défini par la réflexion du faisceau incident à l'interface eau/cuve. Cette réflexion est normalement alignée pour ne pas partir en direction du détecteur, mais une diffusion parasite de la surface suffit à perturber la mesure. Le ratio entre les deux pics observés expérimentalement est ainsi difficilement modélisable dans notre cas car la composante « retour direct » est perturbée par ces effets surfaciques. Nous constatons comme prévu que le lobe retardé disparaît progressivement lorsque nous augmentons l'absorption dans le liant. Afin de confirmer cette diminution du temps de vol, nous déterminons un temps de vol moyen Δt (défini au chapitre précédent) pour les deux états de polarisation (TAB. 10). Les résultats confirment bien la diminution observée.

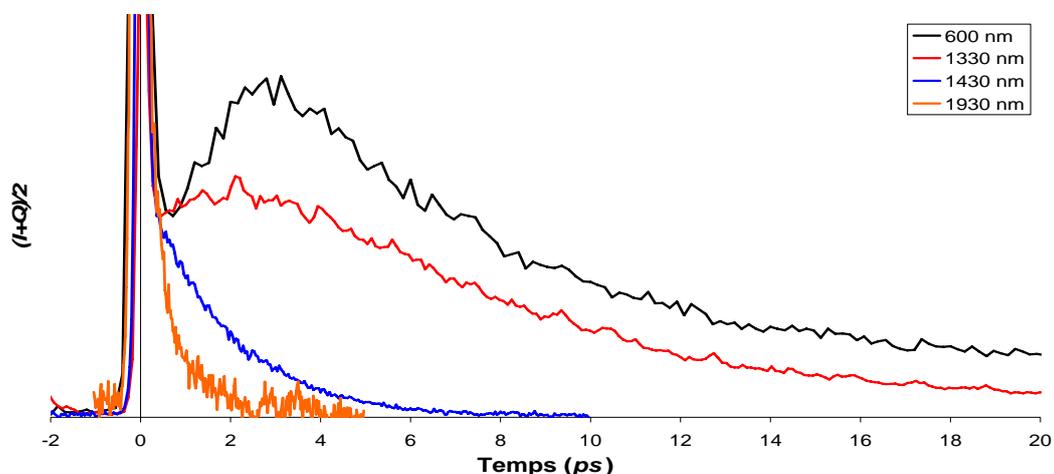


FIG. 64 : Profils expérimentaux de $(I+Q)/2$ en fonction du temps obtenus pour les quatre longueurs d'onde.

Longueur d'onde (μm)	Temps de vol moyen de $(I+Q)/2$	Temps de vol moyen de $(I-Q)/2$
0.6	13.71	15.87
1.33	8.53	11.28
1.43	1.12	3.14
1.93	0.15	2.26

TAB. 10 : Temps de vol moyen pour $(I+Q)/2$ et $(I-Q)/2$ déterminé pour chaque longueur d'onde. Valeur légèrement erronée à $0.6 \mu m$ car la courbe expérimentale n'est pas relaxée à 0 pour de forts retards.

Afin de confronter les résultats expérimentaux à nos codes de simulation, nous avons choisi comme paramètre d'entrée un rayon de $0.5 \mu m$ et nous avons ajusté la concentration en particule sur la courbe visible à $600 nm$ car elle est sans absorption. Ce xv adapté correspond à un K_{ext} (à $600 nm$) de $50000 m^{-1}$ légèrement supérieur à celui estimé expérimentalement ($30000 m^{-1}$). L'ajustement de ce seul xv et la connaissance des valeurs de k_{li} pour les autres longueurs d'onde permet de retrouver l'ensemble des tendances pour toutes les longueurs d'onde et états de polarisation (FIG. 65 et FIG. 66). Notons que les courbes expérimentales de la FIG. 65 sont les mêmes que celles de la FIG. 64. La normalisation appliquée pour les résultats numériques et expérimentaux est une normalisation au maximum pour la polarisation parallèle. Nous appliquons le même coefficient de normalisation pour les polarisations croisées (FIG. 66). Ceci nous permet d'illustrer que nos simulations numériques permettent de retrouver le taux de dépolarisation expérimental. Un récapitulatif des indices complexes de la particule et du liant ainsi que du coefficient d'extinction et de l'albédo est fourni pour chaque longueur d'onde (TAB. 11). Nous avons également dû adapter le ratio entre la composante « réflexion interface eau/paroi » et la composante diffusée par les particules (englobant les lobes « retour direct » et retardée). Notons que l'intensité rétrodiffusée en polarisation croisée pour le cas le plus absorbant est complètement polarisée. L'accord entre les résultats numériques et expérimentaux est très satisfaisant. Vu le bon accord observé pour un rayon de $0.5 \mu m$, nous n'avons pas essayé d'affiner le résultat à l'aide d'une distribution en taille de particule.

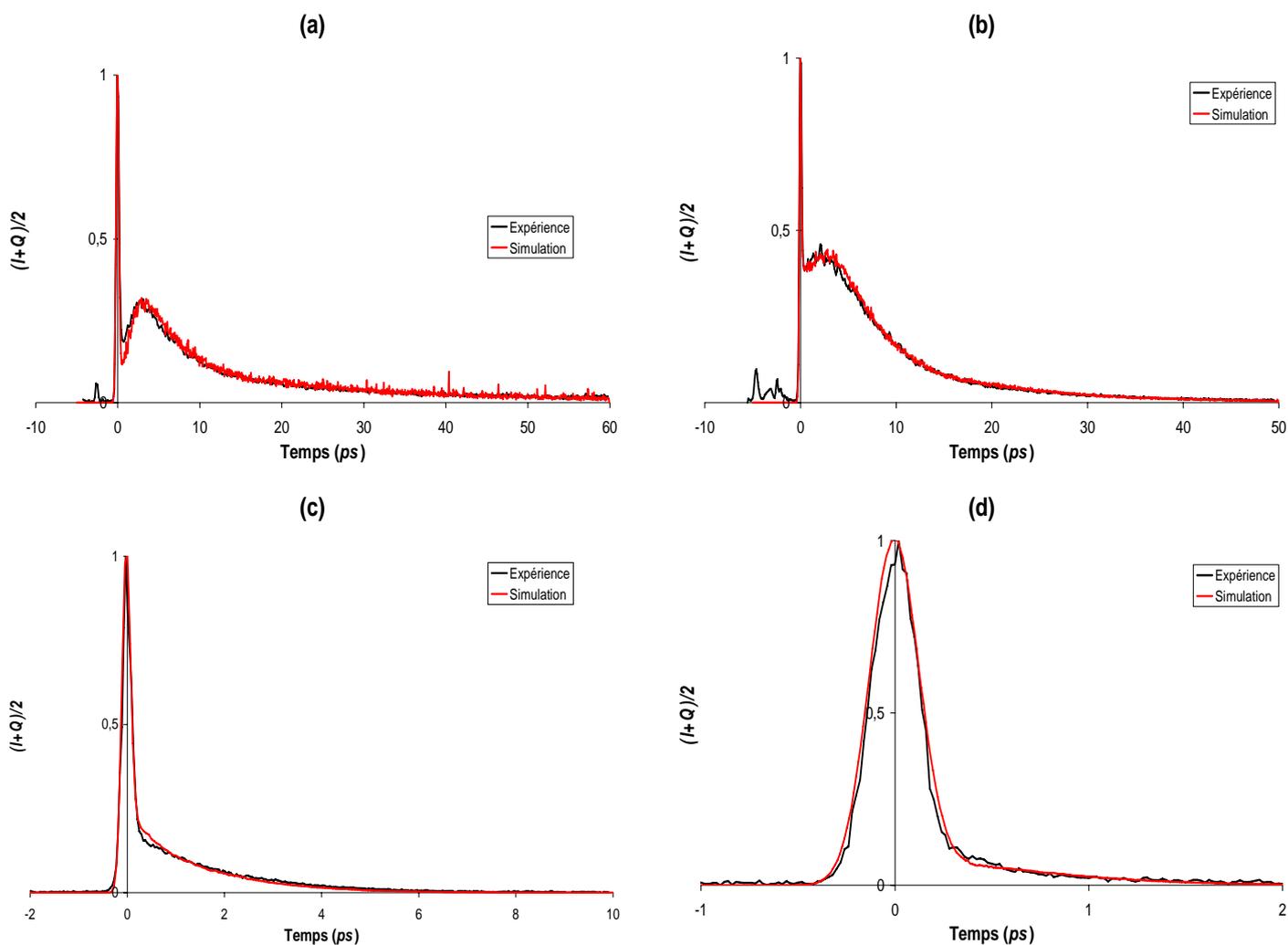


FIG. 65 : Intensité $(I+Q)/2$ en fonction du temps pour quatre longueurs d'onde ((a) 600 nm, (b) 1330 nm, (c) 1430 nm et (d) 1930 nm). Courbes expérimentales en noire et numériques en rouge pour $R=0.5 \mu\text{m}$.

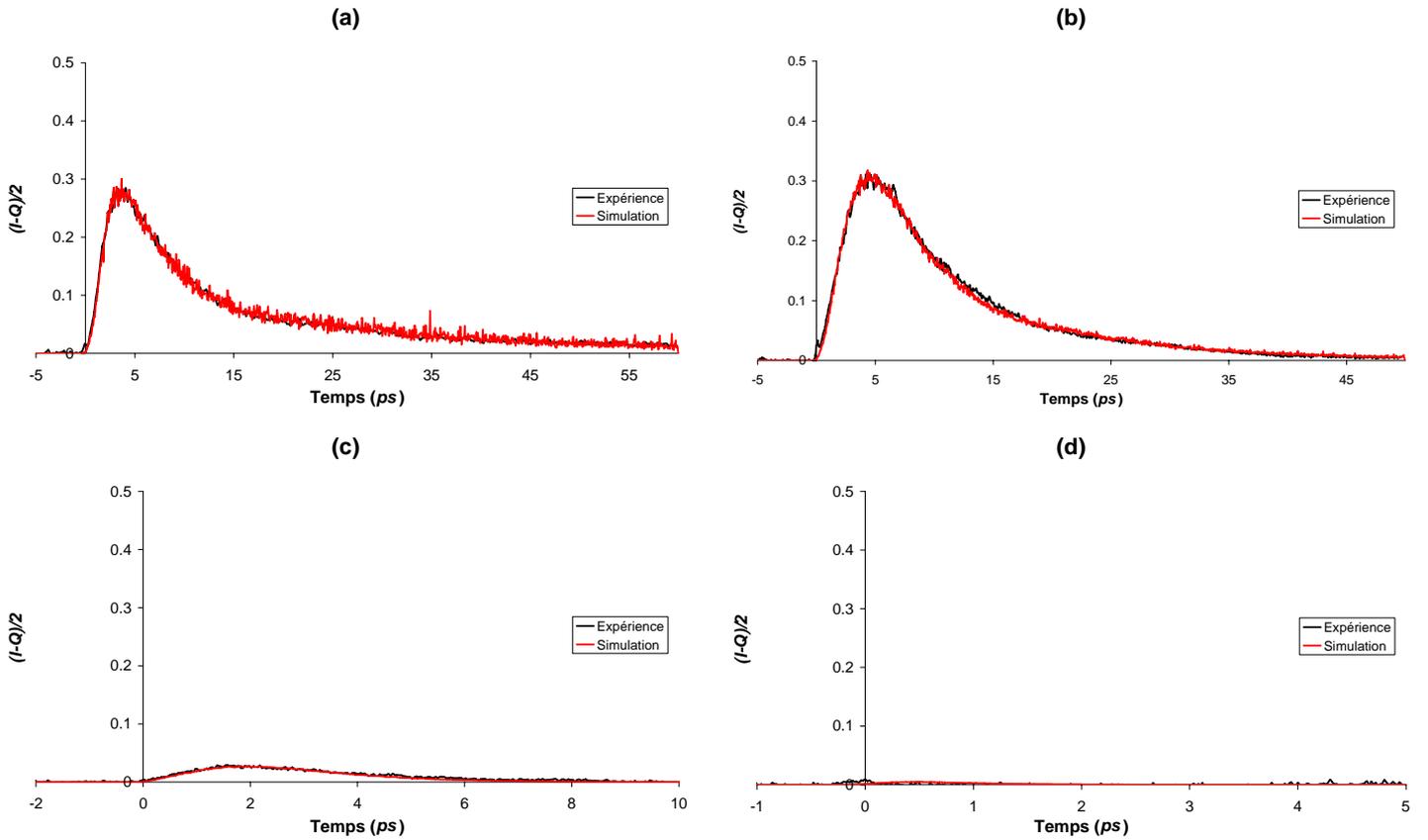


FIG. 66 : Intensité $(I-Q)/2$ en fonction du temps pour quatre longueurs d'onde ((a) 600 nm, (b) 1330 nm, (c) 1430 nm et (d) 1930 nm). Courbes expérimentales en noire et numériques en rouge pour $R=0.5 \mu\text{m}$.

λ (nm)	n_{pa}	n_{li}	k_{li}	K_{ext} (m^{-1})	Ω
600	1.4580	1.3331	0	48668	1.00
1330	1.4466	1.3154	$2.251 \cdot 10^{-5}$	10429	0.98
1430	1.4454	1.3134	$3.538 \cdot 10^{-4}$	11759	0.75
1930	1.4391	1.2987	$1.922 \cdot 10^{-3}$	16662	0.28

TAB. 11 : Récapitulatif de la longueur d'onde, des indices complexes de la particule et du liant, du coefficient d'extinction et de l'albédo.

3. APPLICATION A UNE MESURE DE GRANULOMETRIE

Nous souhaitons à partir de cette étude préliminaire dimensionner un dispositif de détermination de granulométrie en rétrodiffusion pour des milieux très épais. La question est de savoir si nous pouvons retrouver le rayon des particules et leur concentration (R, xv) à partir d'une signature de rétrodiffusion temporelle. Pour ce faire, nous décidons donc de simuler des cas proches mais légèrement différents du cas expérimental présenté ci-dessus, pour plusieurs polarisations et coefficients d'absorption. Nous discuterons de la faisabilité d'un protocole de mesure possible pour déterminer expérimentalement une granulométrie. Pour l'étude numérique de cette section, nous choisissons une gamme de rayons comprise entre 0.3 et 0.7 μm . L'ensemble des indices et longueurs d'onde est résumé (TAB. 12) ci-dessous.

λ (nm)	n_{pa}	n_{li}	k_{li}
450	1.4656	1.34	0
750	1.4542	1.33	0
1200	1.4481	1.32	$1.199 \cdot 10^{-5}$
1450	1.4452	1.31	$3.637 \cdot 10^{-4}$

TAB. 12 : Récapitulatif des longueurs d'onde et des indices complexes de la particule et du liant.

Contrairement à la comparaison entre les résultats numériques et expérimentaux présentés dans la section précédente, nous ne prenons pas en compte ici d'éventuelle composante surfacique. Pour un K_{ext} de $8000 m^{-1}$ à 750 nm, nous représentons (FIG. 67 (a) et (b)) les intensités parallèle et croisée obtenues. Nous constatons que le temps de vol du lobe retardé augmente avec le rayon pour les deux polarisations. Ceci confirme les résultats observés lors du chapitre 3. Par contre, le ratio entre les intensités du lobe « retour direct » et du lobe retardé semble osciller avec le rayon (FIG. 67 (a)). Ce résultat semble a priori contradictoire avec le chapitre 3 (FIG. 58 (b)) car nous avons observé une augmentation de ce ratio avec le rayon. Afin de lever cette contradiction, nous reportons (TAB. 13) l'énergie rétrodiffusée (fonction de phase pour 180° normalisée sur les $4\pi Sr$) pour les cinq rayons de cette simulation et ceux du chapitre 3 (cases ombrées). Nous notons que plus ce poids est important, plus le lobe « retour direct » sera grand. Ces différentes énergies rétrodiffusées permettent donc d'expliquer les oscillations observées ici pour les cinq rayons inférieurs au μm ainsi que la tendance générale (1-10 μm) décrite au chapitre 3. Notons de plus que pour $R=0.3 \mu m$, nous n'avons pas de séparation temporelle entre les deux lobes. Il s'agit effectivement du seul cas de simulation où la fonction de phase est sensiblement moins piquée vers l'avant : $g=0.82$ contre $g>0.9$ pour tous les autres cas. Nous constatons donc une très grande sensibilité (forme et poids relatif) du lobe de « retour direct » avec le rayon des particules. A l'inverse, la forme globale du lobe retardé semble moins sensible au rayon. Nous remarquons cependant que son retard moyen croît lentement avec le rayon. Comme expliqué lors du précédent chapitre, cette augmentation est due au fait que les fonctions de phase sont de plus en plus piquées vers l'avant et que les trajectoires rétrodiffusées correspondantes sont de plus en plus longues.

Cette augmentation peut être compensée par une augmentation de K_{ext} . En effet, nous avons illustré au chapitre 3 qu'une augmentation de K_{ext} diminue le temps de vol du lobe retardé. Pour chaque rayon considéré, nous avons donc ajusté le K_{ext} (TAB. 14) afin que tous les lobes retardés se superposent. Nous remarquons une parfaite superposition sur ces lobes

retardés pour les deux états de polarisation (FIG. 67 (c) et (d)). Notons que nous n'avons jamais réussi à superposer les lobes de « retour direct » présents sur la FIG. 67 (c) car la sensibilité au rayon est trop importante et non compensable par une adaptation du K_{ext} . Ainsi, plusieurs couples (R, xv) permettent d'obtenir les mêmes intensités et donc une indétermination apparaît. Par conséquent, si nous souhaitons déterminer expérimentalement une granulométrie (R, xv) , une seule mesure visible ne suffit pas, à moins d'analyser finement le lobe de « retour direct ». Etudions dans un premier temps l'information exploitable à partir du lobe retardé seul, ce qui revient à étudier les profils de la polarisation croisée.

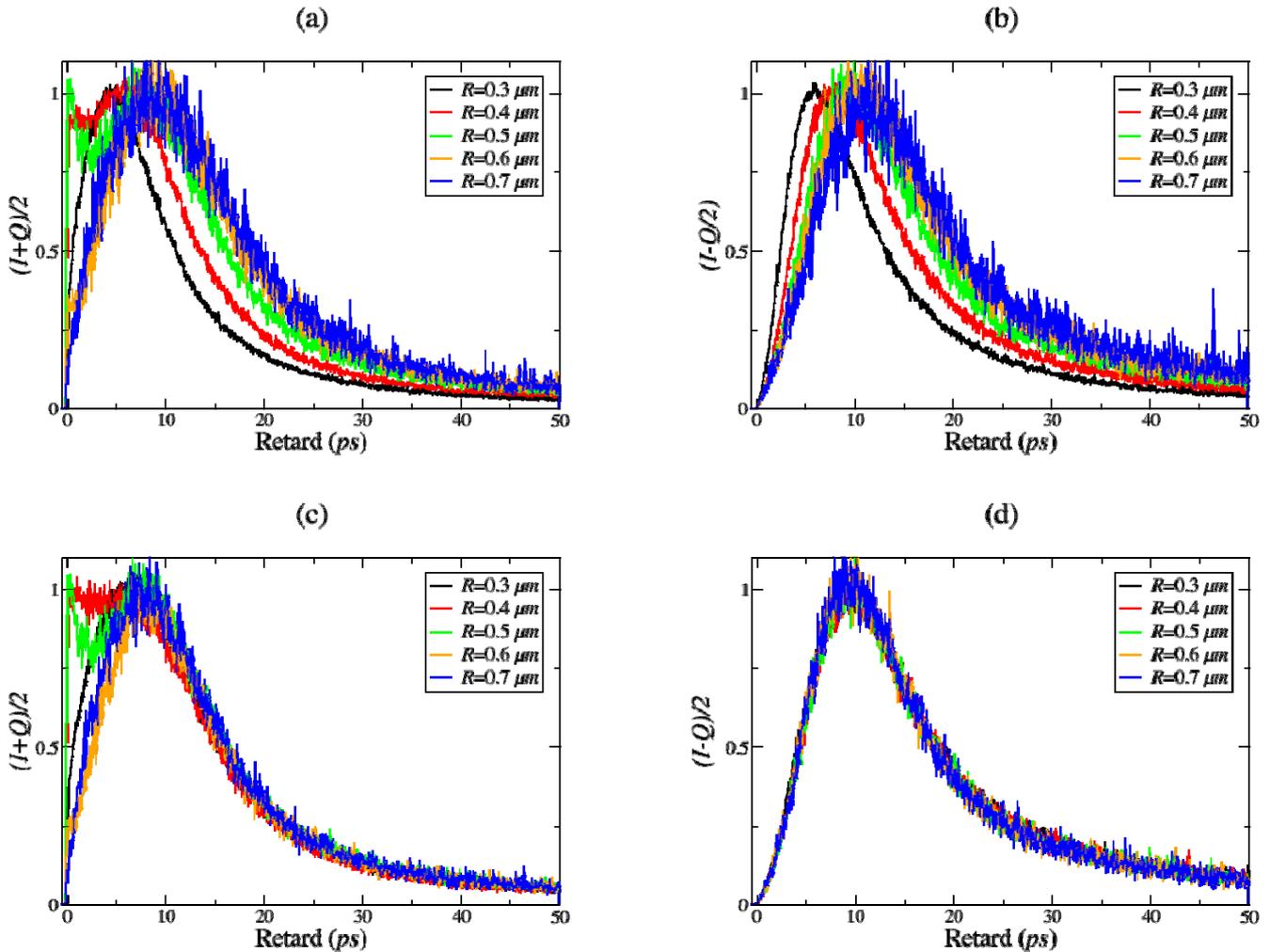


FIG. 67 : Intensités parallèles et croisées en fonction du temps pour $\lambda=750 \text{ nm}$.

(a) et (b) Le coefficient d'extinction est le même pour l'ensemble des rayons.

(c) et (d) Le coefficient d'extinction est adapté afin que le lobe retardé soit le même pour chaque rayon.

$R (\mu\text{m})$	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	1	5	10
$1000 * M_{11}(180^\circ)$	1.3	2.5	1.6	0.3	0.1	0.66	3.2	94

TAB. 13 : Poids relatif de l'énergie diffusée vers l'arrière pour plusieurs rayons de particule. $M_{11}(180^\circ)$ désigne la fonction de phase à 180° .

Une méthode possible de détermination de la granulométrie à partir de profils expérimentaux de rétrodiffusion en polarisation croisée consisterait donc à mesurer un profil dans le visible et un autre dans l'infrarouge. Une mesure en polarisation parallèle pourrait être nécessaire afin de récupérer une composante spéculaire permettant de caler le retard 0. Nous déterminons un ensemble de couples (R, xv) possibles reproduisant le profil temporel expérimental obtenu dans le visible. Ensuite, pour chaque couple (R, xv) , nous simulons des profils de rétrodiffusion temporels dans l'infrarouge que nous comparons avec notre profil expérimental. Cette comparaison devrait nous permettre de choisir le couple le plus pertinent. Notons que dans la section précédente le rayon R était connu et l'ajustement de xv nous a permis de retrouver toutes les courbes expérimentales (visible et infrarouge). Cette méthode de détermination de la granulométrie, comme beaucoup d'autres, suppose la connaissance préalable des indices complexes du liant et des particules [76], [84]. Nous clôturons ainsi l'étude du lobe retardé et discutons à présent de l'apport possible du lobe « retour direct ».

Nous avons pu observer une très grande sensibilité de ce lobe avec le rayon des particules, que ce soit avec un K_{ext} constant (FIG. 67 (a)) ou un K_{ext} adapté (FIG. 67 (c)). Notons que ce lobe de « retour direct » est utilisé préférentiellement dans le lidar aérosol atmosphérique [17], rétrodiffusion simple de particule sur des échelles de temps plus grandes. Cependant, dans le cas précis de notre dispositif expérimental ou pour tout système présentant une interface, ce signal est fortement pollué par les effets surfaciques. Notons de plus qu'à de fort taux de charges, il peut y avoir une légère accumulation/agrégation des particules au niveau de la paroi. Ceci aurait pour but de modifier le signal pour les plus faibles retards, *i.e.* rétrodiffusion par une particule unique située très proche de la paroi. Ces deux phénomènes perturbent préférentiellement le lobe de « retour direct » et peu le lobe retardé. Une mesure de la signature temporelle rétrodiffusée de la polarisation croisée semble donc être plus indiquée dans notre configuration expérimentale car nous filtrons tous les artefacts dus aux effets de surface. Notons que dans la section précédente, la confrontation simulation/expérience avait été plus délicate pour la polarisation parallèle. Nous avons en effet dû ajuster un paramètre supplémentaire, *i.e.* le ratio entre la diffusion de l'interface eau /cuve et celle des particules. De plus, le lobe de « retour direct » apparaît sur des échelles de temps sub-picoseconde très inférieures au lobe retardé (dizaine de picosecondes). L'idée étant de pouvoir à terme utiliser un dispositif disposant d'une résolution temporelle dégradée (pour des raisons de coûts, de portabilité, etc.), l'analyse de la polarisation croisée semble plus indiquée. Il pourrait s'agir par exemple d'un laser fibré picoseconde couplé avec une caméra à balayage de fente. Ce dernier dispositif a une résolution de l'ordre de la dizaine de picoseconde et les performances de tels systèmes progressent.

4. SYNTHÈSE DU CHAPITRE 4

L'objectif de ce chapitre est de pouvoir mesurer expérimentalement une signature temporelle rétrodiffusée d'une suspension de particules de silice dans de l'eau. L'idée directrice du chapitre est de faire varier la longueur d'onde du laser dans l'*IR* afin de faire varier k_{li} . Nous avons présenté le banc de mesure femtoseconde disponible au DOTA permettant d'effectuer des mesures de temps de vol. L'échantillonnage temporel est basé sur une porte Kerr classique pour les mesures visibles et sur un mélange 4 ondes pour les mesures dans l'infrarouge. Des profils temporels pour une longueur d'onde visible (600 nm) et trois longueurs d'onde dans l'infrarouge (1330, 1430 et 1930 nm) ont ainsi été mesurés. A cause de la très forte absorption de l'eau dans l'*IR* lointain et de certaines optiques non adaptées, nous n'avons pas pu aller au delà de 2 μm .

Nous avons pu toutefois observer la décroissance du temps de vol des photons quand k_{li} augmente. Nous avons confronté notre code numérique à nos résultats expérimentaux en ajustant la fraction volumique, le rayon des particules étant connu. L'accord est très satisfaisant pour toutes les longueurs d'onde et les deux polarisations parallèle et croisée. Pour finir, nous avons discuté de la faisabilité d'une méthode numérique permettant de retrouver à la fois R et xv d'un milieu inconnu à l'aide des profils temporels rétrodiffusés. L'utilisation de deux profils temporels (un dans le visible et un dans l'infrarouge) semble suffisante pour isoler un seul et unique couple (R, xv) .

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

La thèse avait pour objectif d'étudier et de prédire l'interaction d'un photon avec un milieu diffusant et absorbant à l'échelle femtoseconde. Pour y parvenir, nous avons développé une chaîne de simulation numérique afin d'étudier l'impact de l'absorption sur la diffusion temporelle que ce soit en diffusion avant ou en rétrodiffusion. En présence d'absorption dans le liant ou dans les particules, nous avons montré que le temps de vol diminuait dans la plupart des cas.

1/ Démarche de l'étude

Notre étude a commencé par la détermination des trois paramètres radiatifs nécessaires à la modélisation de la diffusion temporelle. Il s'agit de la fonction de phase temporelle et angulaire, du coefficient d'extinction et de l'albédo. La complexité du problème résidait dans le fait que l'absorption modifiait simultanément ces trois paramètres. Pour l'étude de la fonction de phase, la théorie de Mie (ainsi que le formalisme temporel développé lors d'étude précédente à cette thèse) reste valable en présence d'absorption. Nous avons introduit et calculé des paramètres d'intérêt tels que le facteur d'asymétrie, le poids des modes de Debye et le temps moyen passé à l'intérieur de la particule. Nous avons ensuite quantifié l'impact de l'absorption sur le poids relatif des deux modes de Debye prédominants (0 et 1) tant au niveau temporel qu'angulaire. En marge de la démarche générale, nous avons mené une étude sans absorption sur les effets de la longueur d'onde, du contraste d'indice et de la dispersion sur la fonction de phase temporelle. Nous avons constaté que, pour un rayon donné, une variation de la longueur d'onde modifiait majoritairement la répartition angulaire sans affecter celle temporelle. A l'inverse, une augmentation du contraste d'indice étalait angulairement et temporellement les modes de diffusion interne (modes de Debye supérieurs ou égaux à 1). Nous avons constaté que la dispersion n'avait que très peu d'impact. La suite de la démarche générale a consisté à étudier l'impact de l'absorption sur les deux autres paramètres radiatifs, le coefficient d'extinction et l'albédo. Le cas de l'absorption dans les particules était assez direct car il est basé sur la théorie de Mie. Pour un liant absorbant, l'étude était plus complexe et nous avons comparé plusieurs modèles existants et non validés expérimentalement.

L'ensemble de ces paramètres radiatifs ont ensuite été rentrés dans un code de simulation de Monte-Carlo afin de simuler une signature temporelle en diffusion avant ou en rétrodiffusion. Nous avons adapté le code existant afin de prendre en compte à la fois les phénomènes de diffusion et d'absorption avec deux approches de détection : semi-analytique et complet. Nous avons rigoureusement détaillé la géométrie de détection afin d'obtenir les mêmes résultats pour ces deux approches. Le code de Monte-Carlo semi-analytique converge plus rapidement pour de petites particules et pour de fortes absorptions. Des modifications ont été aussi apportées à ce code afin de prendre en compte la distribution en taille des particules et les interfaces en rétrodiffusion. Une validation de notre chaîne de simulation a été possible avec le banc de mesure femtoseconde disponible au DOTA. Dans cette thèse, l'ensemble des résultats obtenus peuvent être regroupés en deux parties distinctes : absorption dans les particules puis dans le liant.

2/ Absorption dans les particules

Lorsque les particules sont absorbantes, la théorie de Mie reste valide pour le calcul de la fonction de phase, du coefficient d'extinction et de l'albédo. La fonction de phase est de plus en plus piquée vers l'avant lorsque nous augmentons l'absorption car les modes de Debye internes à la particule sont tués et seul le mode 0 reste. Les trajectoires suivies par le photon sont donc plus rectilignes. De plus, le temps passé à l'intérieur de la particule diminue car le mode 0 est moins retardé. Ces deux effets entraînent une diminution globale du temps de vol des photons. Nous avons également modélisé une bande d'absorption de largeur variable dans la particule. Nous avons observé un effet temporel uniquement pour les bandes d'absorption d'une largeur du même ordre de grandeur que la largeur de l'impulsion femtoseconde. D'un point de vue angulaire, nous avons montré que la fonction de phase obtenue pour une largeur de bande donnée pouvait être ajustée à l'aide d'une valeur d'absorption effective constante. Nous avons montré que l'albédo passait de 1 à environ 0.5 et que le coefficient d'extinction était peu modifié excepté le phénomène d'« absorption edge ». Pour de plus fortes absorptions (particule quasi métallique), l'expulsion de l'énergie à l'extérieur des particules implique une augmentation de l'albédo. Quant à lui, le coefficient d'extinction reste à peu près constant. L'impact de ces deux coefficients sur le temps de vol des photons tend à privilégier les trajectoires de diffusion simple et donc à tuer les photons les plus retardés. Tout comme la fonction de phase, ces paramètres entraînent une diminution du temps de vol en présence d'absorption.

Notre étude des profils temporels s'est focalisée sur la détection des photons en diffusion avant, avec un très faible angle de collection. Nous avons confirmé une diminution du temps de vol des photons quel que soit le rayon des particules. Pour de grosses particules, nous avons observé la présence de deux lobes séparés temporellement. Le premier est directement lié aux événements du mode 0 alors que le deuxième plus retardé est lié à une combinaison d'évènement des modes 1 et 0. L'étude fine du poids relatif des deux lobes démontre une très grande sensibilité à l'absorption des particules. Nous avons comparé la dépendance avec les parties réelle et imaginaire de l'indice de la particule : une augmentation de ces parties diminue l'intensité relative du lobe retardé mais les retards moyens varient de manière opposée. Nous avons appliqué ce code de Monte-Carlo au cas concret d'un jet d'alumine dans l'air. Nous avons constaté que la sensibilité aux indices n'existe que dans des systèmes relativement compacts et denses.

Une première perspective serait de mener une étude pour savoir à partir de quelle distance et/ou concentration nous n'observons plus cette structuration de la signature temporelle en deux lobes séparés pour de grosses particules. Une deuxième perspective serait de pouvoir réaliser une étude expérimentale afin de valider nos modèles dans des suspensions calibrées. L'objectif est de pouvoir faire varier plus systématiquement la taille, la concentration, le coefficient d'absorption des particules ainsi que la longueur d'onde du laser incident. Une des difficultés de cette validation est la réalisation et la stabilité d'une suspension homogène dense de grosses particules. La sédimentation augmente en effet avec la taille des particules. Une autre difficulté apparaît lorsque nous voulons faire varier l'absorption des particules de manière contrôlée, sans pour autant modifier celle du liant. Afin de résoudre cette difficulté, une piste possible est l'utilisation de colorants mis en solution dans le milieu et qui viennent s'adsorber à la surface des particules. La modélisation de la diffusion temporelle nécessiterait l'adaptation du code à des particules traitées en surface [27]. La maîtrise de l'échantillon resterait néanmoins difficile car l'adsorption n'est que partielle et une part non négligeable du colorant reste dans le liant. Il est alors délicat de prédire les coefficients d'absorption respectifs. Une troisième et dernière perspective de cette partie est d'appliquer notre chaîne de simulation à d'autres milieux d'intérêt denses et compacts tels

que des sprays de particules en suspension dans l'air (sortie d'injecteur ou d'un moteur). Les signatures temporelles seraient obtenues dans des domaines spectraux où le constituant des gouttelettes devient absorbant.

3/ Absorption dans le liant

Lorsque le liant est absorbant, le calcul de la fonction de phase est toujours possible à l'aide de la théorie de Mie mais pas le calcul du coefficient d'extinction et de l'albédo. Les modes de Debye internes à la particule sont protégés en diffusion avant. Le mode 1 devient prédominant. La fonction de phase est plus piquée vers l'avant et les trajectoires sont donc plus rectilignes. A l'inverse, le temps passé à l'intérieur de la particule augmente. Nous ne pouvons pas prédire de tendance sur la variation du temps de vol des photons. En rétrodiffusion, les modes 0 et 2 demeurent. Donc le temps passé à l'intérieur de la particule diminue. De plus, comme les directions avant sont privilégiées, le temps de vol des photons est diminué. Le calcul du coefficient d'extinction et de l'albédo a nécessité l'introduction d'une nouvelle méthode. Cette méthode a été comparée avec d'autres issues de la littérature. Nous avons observé que tant que la décroissance de l'énergie lumineuse sur l'extension spatiale typique d'une particule est faible, l'ensemble des méthodes donnent des résultats équivalents. Nous avons étudié la variation du coefficient d'extinction et de l'albédo avec différents paramètres (rayon, concentration, absorption). L'extinction est rapidement dominée par l'absorption du liant. Ce terme est indépendant des caractéristiques des particules et de la concentration. L'albédo passe de 1 à 0 quand nous augmentons l'absorption et cette décroissance dépend fortement de tous les paramètres cités. Comme pour l'absorption des particules, la prise en compte de l'absorption dans le coefficient d'extinction et l'albédo tend à raccourcir les temps de vol.

Lorsque nous traçons les profils temporels en diffusion avant, l'effet principal de l'absorption du liant est de baisser l'intensité globale diffusée, sans modifier notablement le profil temporel. Pour de grosses particules et des conditions extrêmes (fort taux de charge, forte absorption et court trajet optique), nous avons observé une très légère augmentation relative du lobe retardé. Cette augmentation illustre la disparition du mode 0 au profit du mode 1 (cas inverse de l'absorption des particules) mais reste négligeable par rapport à la baisse globale de l'intensité diffusée. C'est pourquoi, nous nous sommes focalisés sur les profils temporels en rétrodiffusion. Sans absorption, nous avons observé deux types de diffusion nommés lobe « retour direct » (très polarisé, dû à un événement unique de rétrodiffusion) et lobe retardé (fortement dépolarisé, dû à de multiples diffusions avant successives). Nous avons d'abord évalué l'impact sur le profil temporel de la modification de la fonction de phase. Cet impact n'est visible que pour de grosses particules et de fortes absorptions. Par la suite, nous avons supposé que la fonction de phase était calculée sans absorption. Le lobe retardé disparaît pour de fortes absorptions et seul le lobe « retour direct » reste. Ce lobe est alors indépendant du rayon et de l'albédo mais dépend fortement du coefficient d'extinction. Pour des milieux moins absorbants, le profil temporel est un mélange des deux lobes et dépend à la fois du rayon, de l'albédo et du coefficient d'extinction.

Pour finir, nous avons validé notre chaîne de modélisation pour un liant absorbant en rétrodiffusion en utilisant le laboratoire femtoseconde. Nous avons mesuré expérimentalement des signatures temporelles rétrodiffusées d'une suspension de particules de silice dans de l'eau. L'idée était de faire varier la longueur d'onde du laser dans l'infrarouge (1330, 1430 et 1930 *nm*) afin de faire varier l'absorption de l'eau. Nous avons aussi mesuré un profil temporel pour une longueur d'onde visible (600 *nm*). Ce dernier profil nous a permis d'ajuster la fraction volumique, le rayon des particules étant connu. Pour obtenir ces profils, nous avons réalisé un échantillonnage temporel basé sur une porte Kerr classique pour la mesure dans le visible et sur un mélange 4 ondes pour les mesures dans l'infrarouge. L'accord est

satisfaisant pour toutes les longueurs d'onde et les deux polarisations (parallèle et croisée). Ceci nous a permis de valider notre chaîne de simulation dans ces conditions. Nous avons confirmé expérimentalement la diminution du temps de vol des photons. Malheureusement, nous n'avons pas pu déterminer expérimentalement quelle méthode de calcul du coefficient d'extinction et d'albédo était la plus adaptée. En effet, notre dispositif expérimental actuel ne nous a pas permis de monter à des valeurs d'absorption de l'eau suffisantes pour observer des différences entre les méthodes. Nous avons terminé cette étude en discutant la possibilité d'une méthode de détermination de granulométrie en nous inspirant de cette démarche de validation expérimentale. Nous avons vérifié que l'utilisation de deux profils temporels (un dans le visible sans absorption et un dans l'infrarouge avec absorption dans le liant) semble suffisante pour déterminer simultanément le rayon et la concentration des particules.

Une des perspectives de cette partie est de réaliser de manière systématique d'autres mesures de signatures temporelles en rétrodiffusion. Pour cela, il s'agira d'étendre l'étude à d'autres rayons et concentrations (particules calibrées de silice ou de latex). L'utilisation d'un autre milieu Kerr (CaF_2 par exemple) pourrait permettre d'étendre la détection plus vers l'infrarouge lointain. L'objectif serait de pouvoir enfin déterminer la méthode de calcul du coefficient d'extinction et de l'albédo la plus adaptée. Il manque en effet de données expérimentales dans ce domaine. Ce procédé expérimental pourrait de plus être appliqué à l'étude de l'absorption due aux bandes de vibrations dans un diélectrique. Le liant serait alors le diélectrique et les « particules » des inclusions d'air (céramiques, milieux poreux). Cette étude permettrait ainsi d'étudier le cas d'un contraste d'indice inversé. L'indice de la particule d'air est effectivement inférieur à celui du liant diélectrique, contrairement à tous les cas de simulation de cette thèse.

4/ Perspectives globales

En plus des perspectives partielles pour le cas de l'absorption du liant et des particules, nous dégagons ici des pistes d'études plus générales. L'introduction de l'absorption n'est qu'une étape afin de pouvoir simuler les phénomènes se produisant dans des milieux plus complexes tels que les tissus biologiques ou l'atmosphère. La prochaine étape sera d'intégrer des distributions en taille allant du mono disperse au polydisperse et d'étudier par une étude de sensibilité leur impact sur les phénomènes de couplage diffusion/absorption mis en évidence dans ce mémoire. Il s'agira en particulier d'identifier la robustesse des signatures temporelles pour la détermination de la granulométrie. Une suite de ce travail serait de pouvoir intégrer les phénomènes de fluorescence afin de pouvoir prédire simultanément les signatures de l'intensité diffusée (fréquence fondamentale du laser) et celles décalées vers le rouge (réémises par fluorescence). La fluorescence temporelle est aussi un marqueur ou discriminant intéressant pour un certain nombre de milieux (aérosols, pollens, bio-contaminants, etc.). Les couplages diffusion/fluorescence à l'échelle femtoseconde restent mal connus. Pour l'étude de la diffusion et de la fluorescence, une analyse plus complète de l'ensemble des états de polarisation (quatre termes du vecteurs de Stokes, seize termes de la matrice de Mueller pour un milieu quelconque) serait plus riche. Il serait aussi intéressant d'évaluer d'autres techniques de simulation (Reverse Monte Carlo ou autres approches non stochastiques) afin de limiter les temps de calcul. La perspective finale de cette thèse serait d'étendre nos modèles de diffusion temporelle puis de Monte-Carlo à des milieux plus complexes que ceux étudiés dans ce mémoire et d'étudier les signatures temporelles obtenues expérimentalement et numériquement en rétrodiffusion pour ces milieux. Par milieux complexes, nous sous-entendons un certain nombre de cas. Tout d'abord nous pouvons nous intéresser au cas de particules de géométrie arbitraire, à structure complexe (agrégats, multicouche, ...), ou du moins dans un premier temps à des particules de formes canoniques

(ellipsoïdes, tétraèdres, ...). Citons comme exemple les particules contenues dans les chargements de peintures (MgO , TiO_2 , Carbone et autre diélectrique comme le SiC , ...) qui sont généralement non sphériques et souvent agrégées, les formes ovoïdales liées aux injecteurs, les cristaux de glaces ou certains aérosols dans l'atmosphère. Un autre cas concerne la diffusion dépendante, *i.e.* des concentrations plus élevées que celles utilisées dans la thèse (par exemple des peintures très concentrées et très denses). Pour les modèles de diffusion temporelle, une approche par *Finite Difference Time Domain (FDTD)* sera envisagée. Pour les codes de Monte-Carlo, il s'agira principalement de gérer la fonction de phase temporelle et les autres paramètres radiatifs en fonction d'une orientation relative photon incident/particule.

REFERENCES

- [1] P. Nuernberger, K.F. Lee, A. Bonvalet, L. Bouzahir-Sima, J.-C. Lambry, U. Liebl, M. Joffre, et M.H. Vos, « Strong ligand-protein interactions revealed by ultrafast infrared spectroscopy of CO in the heme pocket of the oxygen sensor FixL », *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 133, p. 17110–17113, 2011.
- [2] A.H. Zewail, *Ultrafast dynamics of the chemical bond Volume 1*, World Scientific, 1994.
- [3] R. Ernstorfer, M. Harb, C.T. Hebeisen, G. Sciaini, T. Dartigalongue, et R.J.D. Miller, « The Formation of Warm Dense Matter: Experimental Evidence for Electronic Bond Hardening in Gold », *Science*, vol. 323, n° 5917, p. 1033-1037, 2009.
- [4] D. Débarre, W. Supatto, A.-M. Pena, A. Fabre, T. Tordjmann, L. Combettes, M-C. Schanne-Klein, et E. Beaufrepaire, « Imaging lipid bodies in cells and tissues using third-harmonic generation microscopy », *Nature Methods*, vol. 3, n° 1, p. 47 – 53, 2006.
- [5] X. Liu, D. Du, et G. Mourou, « Laser ablation and micromachining with ultrashort laser pulses », *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 33, n° 10, p. 1706-1716, 1997.
- [6] S. IDLAHCEN, « Imagerie femtoseconde d'un spray Diesel haute pression en proche sortie d'injecteur », Université de Rouen, Rouen, 2011.
- [7] P. P. Ho, N.L. Yang, T. Jimbo, Q. Z. Wang, et R.R. Alfano, « Ultrafast resonant optical Kerr effect in 4-butoxycarbonylmethylurethane polydiacetylene », *JOSA B*, vol. 4, n° 6, p. 1025-1029, 1987.
- [8] M. Barthélémy, « Apport d'une source laser femtoseconde amplifiée pour la mesure de spectre d'extinction d'un milieu diffusant optiquement épais », université de Toulouse, Toulouse, 2009.
- [9] M. Barthélémy, N. Rivière, L. Hespel, et T. Dartigalongue, « Pump probe experiment for high scattering media diagnostics », in *SPIE Reflection, scattering, and diffraction from surfaces*, San Diego, 2008, vol. 7065, p. 70650Z.
- [10] N. Rivière, M. Barthélémy, T. Dartigalongue, et L. Hespel, « Modeling of femtosecond pulse propagation through dense scattering media », in *Proc. SPIE 7065*, 2008, vol. 70650X, p. 70650X-9.
- [11] M. Barthélémy, L. Hespel, N. Rivière, B. Chatel, et T. Dartigalongue, « Pump probe experiment for optical diagnosis of very thick scattering media », *Aerospace Lab Journal*, vol. 1, p. 155 - 200, 2009.
- [12] F.-X. d'Abzac, M. Kervella, L. Hespel, et T. Dartigalongue, « Experimental and numerical analysis of ballistic and scattered light using femtosecond optical Kerr gating: a way for the characterization of strongly scattering media », *Optics Express*, vol. 20, n° 9, p. 9604-9615, 2012.
- [13] C. Calba, « Interaction entre une impulsion lumineuse ultra-brève et un nuage dense de particules□: simulations numériques et expériences », Université de Rouen, Rouen, 2008.
- [14] X. Wang, L. Wang, C-W. Sun, et C-C. Yang, « Polarized light propagation through scattering media: time-resolved Monte Carlo simulations and experiments », *Journal of Biomedical Optic*, vol. 8, n° 4, p. 608 – 617, 2003.
- [15] D. Sedarsky, E. Berrocal, et M. Linne, « Quantitative image contrast enhancement in time-gated transillumination of scattering media », *Optics express*, vol. 19, n° 3, p. 1866 –1883, 2011.

- [16] L. Wang, X. Liang, P.A. Galland, P.P. Ho, et R.R. Alfano, « Detection of objects hidden in highly scattering media using time-gated imaging methods », in *Optical sensing, imaging, and manipulation for biological and biomedical applications*, 2000, vol. 4082.
- [17] Z. Guan, M. Lewender, R. Grönlund, H. Lundberg, et S. Svanberg, « LIDAR technique for Remote Gas Analysis in Solid Scattering Media », presented at the OSA / AOE, 2008.
- [18] S. Svanberg, « Optical Analysis of Trapped Gas—Gas in Scattering Media Absorption Spectroscopy 1 », *Laser Physics*, vol. 20, n^o. 1, p. 68-77, 2010.
- [19] M. Andersson, R. Grönlund, L. Persson, M. Sjöholm, K. Svanberg, et S. Svanberg, « Laser Spectroscopy of Gas in Scattering Media at Scales Ranging from Kilometers to Millimeters », *Laser Physics*, vol. 17, n^o. 7, p. 893–902, 2007.
- [20] T. Svensson, S. Andersson-Engels, M. Einarsdóttir, et K. Svanberg, « In vivo optical characterization of human prostate tissue using near-infrared time-resolved spectroscopy », *Journal of Biomedical Optics*, vol. 12, n^o. 1, p. 014022-1 014022-10, 2007.
- [21] J. Swartling, A. Pifferi, E. Giambattistelli, E. Chikoidze, A. Torricelli, P. Taroni, M. Andersson, A. Nilsson, et S. Andersson-Engels, « Rigorous characterization of time-resolved diffuse spectroscopy systems for measurements of absorption and scattering properties using solid phantoms », in *Photon Migration and Diffuse-Light Imaging*, 2003, vol. 5138, p. 80-87.
- [22] W.F. Long et D.H. Burns, « Particle sizing and optical constant measurement in granular samples using statistical descriptors of photon time-of-flight distributions », *Analytica Chimica Acta*, vol. 434, p. 113 – 123, 2001.
- [23] Q. Fu et W. Sun, « Mie theory for light scattering by a spherical particle in an absorbing medium », *Applied Optics*, vol. 40, n^o. 9, p. 1354-1361, 2001.
- [24] C.F. Bohren et D.R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*. Wiley interscience, 1983.
- [25] G. Fardella, « Modélisation de l'émission thermique de rayonnement infrarouge par les milieux inhomogènes », Université Pierre et Marie Curie, Paris, 1996.
- [26] P. Bruscaioni, A. Ismaelli, et G. Zaccanti, « A note on the definition of scattering cross sections and phase functions for spheres immersed in an absorbing medium », *Waves Random Media*, vol. 3, p. 147-156, 1993.
- [27] P. Yang, B-C. Gao, W.J. Wiscombe, M.I. Mishchenko, S.E. Platnick, H.-L. Huang, B.A. Baum, Y.X. Hu, D.M. Winker, S.-C. Tsay, et S.K. Park, « Inherent and apparent scattering properties of coated or uncoated spheres embedded in an absorbing host medium », *Applied Optics*, vol. 41, n^o. 15, p. 2740-2759, 2002.
- [28] Y. Kuga, F. T. Ulaby, T. F. Haddock, et R. D. DeRoo, « Millimeter-wave radar scattering from snow 1. Radiative transfer model », *Radio Sci.*, vol. 26, p. 329-341, 1991.
- [29] W.C. Mundy, J.A. Roux, et A.M. Smith, « Mie scattering by spheres in an absorbing medium », *JOSA*, vol. 64, n^o. 12, p. 1593 – 1597, 1974.
- [30] P. Chylek, « Light scattering by small particles in an absorbing medium », *JOSA*, vol. 67, n^o. 4, p. 561 – 563, 1977.
- [31] C.F. Bohren et D.P. Gilra, « Extinction by a spherical particle in an absorbing medium », *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 72, n^o. 2, p. 215 – 221, 1979.
- [32] M. Quinten et J. Rostalski, « Lorenz-Mie theory for spheres immersed in an absorbing host medium », *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 13, p. 89 – 96, 1996.
- [33] I.W. Sudiarta et P.Chylek, « Mie-scattering formalism for spherical particles embedded in an absorbing medium », *JOSA A*, vol. 18, n^o. 6, p. 1275-1278, 2001.

- [34] L. Whang, S. L. Jacques, et L. Zheng, « MCML-Monte Carlo modeling of light transport in multi-layered tissues », *Comput. Methods Programs Biomed.*, vol. 47, p. 131-146, 1995.
- [35] J. C. Ramella-Roman, S. A. Prahl, et S. L. Jacques, « Three Monte-Carlo programs of polarized light transport into scattering media: part 1 », *Optics Express*, vol. 13, p. 4420-4438, 2005.
- [36] J.C. Ramella-Roman, S.A. Prahl, et S.L. Jacques, « Three Monte Carlo programs of polarized light transport into scattering media: part II », *Optics Express*, vol. 13, n°. 25, p. 10392 – 10405, 2005.
- [37] A. Ambirajan et D.C. Look, « A backward Monte Carlo study of the multiple scattering of a polarized laser beam », *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, vol. 58, n°. 2, p. 171 - 192, 1997.
- [38] X. D. Lu et P. F. Hsu, « Reverse Monte Carlo method for transient radiative transfer in participating media », *J. Heat Transfer*, vol. 126, n°. 4, p. 621-627, 2004.
- [39] X. D. Lu et P. F. Hsu, « Reverse Monte Carlo simulations of light pulse propagation in nonhomogeneous media », *JQSRT*, vol. 93, n°. 1-3, p. 349-367, 2005.
- [40] Z. X. Guo et S. Kumar, « Discrete-ordinates solution of short-pulsed laser transport in two-dimensional turbid media », *Applied Optics*, vol. 40, n°. 19, p. 3156-3163, 2001.
- [41] Z. X. Guo et K. Kim, « Ultrafast-laser-radiation transfer in heterogeneous tissues with the discrete-ordinates method », *Applied Optics*, vol. 42, n°. 16, p. 2897-2905, 2003.
- [42] C. Y. Wu, « Propagation of scattered radiation in a participating planar medium with pulse irradiation », *JQSRT*, vol. 64, n°. 5, p. 537-548, 2000.
- [43] S. C. Mishra, P. Chugh, P. Kumar, et K. Mitra, « Development and comparison of the DTM, the DOM and the FVM formulations for the short-pulse laser transport through a participating medium », *Int. J. Heat Mass Transfer*, vol. 49, n°. 11-12, p. 1820-1832, 2006.
- [44] L. Méès, G. Grehan, et G. Gouesbet, « Time-resolved scattering diagram for a sphere illuminated by plane wave and focused short pulses », *Optics Communications*, vol. 194, p. 59 – 65, 2001.
- [45] C. Rozé, T. Girasole, L. Méès, G. Grehan, L. Hespel, et A. Delfour, « Interaction between ultra short pulses and a dense scattering medium by Monte Carlo simulation: consideration of particle size effect », *Optics Communications*, vol. 220, n°. 4-6, p. 237 – 245, 2003.
- [46] C. Calba, C. Rozé, T. Girasole, et L. Méès, « Monte Carlo simulation of the interaction between an ultra short pulse and a strongly scattering medium: the case of large particles », *Optics Communications*, vol. 265, p. 373 – 382, 2006.
- [47] J.A. Lock, « Cooperative effects among partial waves in Mie scattering », *JOSA A*, vol. 5, n°. 12, p. 2032 – 2044, 1988.
- [48] A.E. Hovenac et J.A. Lock, « Assessing the contributions of surface waves and complex rays to far-field Mie scattering by use of the Debye series », *JOSA A*, vol. 9, n°. 5, p. 781-795, 1992.
- [49] G. Gouesbet, « Debye series formulation for generalized Lorenz-Mie theory with the Bromwich method », *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 20, n°. 6, p. 382 – 386, 2003.
- [50] P. Laven, « Simulation of rainbows, coronas and glories using Mie theory and the Debye series », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 89, p. 257 – 269, 2004.
- [51] M. Daimon et A. Masumura, « Measurement of the refractive index of distilled water from the near-infrared region to the ultraviolet region », *Applied Optics*, vol. 46, n°. 18, p. 3811-3820, 2007.

- [52] I.H. Malitson, « Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica », *JOSA*, vol. 55, n° 10, p. 1205-1209, 1965.
- [53] « Optical Glass ». Data Sheet of Schott.
- [54] J. Shen et H. Wang, « Calculation of Debye series expansion of light scattering », *Applied Optics*, vol. 49, n° 13, p. 2422 – 2428, 2010.
- [55] D. Segelstein, « The complex refractive index of water », Université du Missouri, Kansas City, 1981.
- [56] F. J. Duarte, *Tunable laser optics*. ACADEMIC PRESS, 2003.
- [57] P.F. Moulton, « Spectroscopic and laser characteristics of Ti:A1203 », *JOSA B*, vol. 3, n° 1, p. 125 – 133, 1986.
- [58] L. S. Rothman and al., « The Hitran 2008 molecular spectroscopic database », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 110, p. 533-572, 2009.
- [59] J.M. Wallace et P.V. Hobbs, *Atmospheric science: an introduction survey*. Orlando: Academic Press, 1977.
- [60] P. Chylek et J. Zhan, « Interference structure of the Mie extinction cross section », *JOSA A*, vol. 6, n° 12, p. 1846-1851, 1989.
- [61] P. Chylek et J. Zhan, « Absorption and scattering of light by small particles: the interference structure », *Applied Optics*, vol. 29, p. 3984, 1990.
- [62] I.W. Sudiarta et P.Chylek, « Mie scattering by a spherical particle in an absorbing medium », *Applied Optics*, vol. 41, n° 18, p. 3545 – 3546, 2002.
- [63] L. Hespel, « Etude expérimentale et théorique du transfert radiatif dans les milieux diffusants. Détermination expérimentale des propriétés radiatives aux forts taux de charge », Ecole centrale, Paris, 1999.
- [64] N. Rivière, « Contribution de la polarisation à l'étude de milieux diffusants peu denses ou optiquement épais », université de Rouen, Toulouse, 2006.
- [65] E. Tinet, S. Avrillier, et J.M. Tualle, « Fast semianalytical monte carlo simulation for time resolved light propagation in turbid media », *JOSA A*, vol. 13, n° 9, p. 1903-1915, 1996.
- [66] L.R. Poole, D.D. Venable, et J.W. Campbell, « Semianalytic Monte Carlo radiative transfert model for oceanographic lidar systems », *Applied Optics*, vol. 20, n° 20, p. 3653 – 3656, 1981.
- [67] M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics* □: *Electromagnetic Theory Of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge university press, 1999.
- [68] M. Kervella, F.-X. d'Abzac, F. Hache, L. Hespel, et T. Dartigalongue, « Picosecond time scale modification of forward scattered light induced by absorption inside particles », *Optics Express*, vol. 20, n° 1, p. 32-41, 2012.
- [69] K.M. Yoo et R.R. Alfano, « Time-resolved coherent and incoherent components of forward light scattering in random media », *Optics Letters*, vol. 15, n° 6, p. 320 – 322, 1990.
- [70] M.E. Zevallos L., S.K. Gayen, M. Alrubaiee, et R.R. Alfano, « Time-gated backscattered ballistic light imaging of objects in turbid water », *Applied Physics Letters*, vol. 86, p. 011115, 2005.
- [71] N. Pfeiffer et G. H. Chapman, « Monte Carlo simulations of the growth and decay of quasi-ballistic photon fractions with depth in an isotropic medium », in *Optical interactions with tissue and cells XVI*, 2005, vol. 5695, p. 136-147.
- [72] J.S. Toll, « Causality and the dispersion relation: logical foundations », *Physical Review*, vol. 104, n° 6, p. 1760 – 1770, 1956.
- [73] R. de L. Kronig, « On the theory of dispersion of X-rays », *JOSA and Review of scientific instruments*, vol. 12, n° 6, p. 547 – 557, 1926.

- [74] S. Gossé, « Caractérisations morphologiques et radiatives des alumines issues de la combustion de propergol. Application au transfert radiatif dans les jets. », Université d'Orléans, 2004.
- [75] P. Gossart, S. Gossé, L. Hespel, et A. Delfour, « Morphological characterization and particle sizing of alumina particles in solid rocket motor », *Journal of propulsion and power*, vol. 22, p. 127-135, 2006.
- [76] L. Hespel et A. Delfour, « Mie light scattering granulometer with adaptative numerical filtering. I. Theory », *Applied Optics*, vol. 39, n° 36, p. 6897 – 6917, 2000.
- [77] L. Hespel, A. Delfour, et B. Guillame, « Mie light scattering granulometer with adaptative numerical filtering. II. Experiments », *Applied Optics*, vol. 40, n° 6, p. 974 – 985, 2001.
- [78] L. Dombrovsky, « Possibility of determining the dispersed composition of a two-phase flow from small angle light scattering », *High temperature (Teplofiz. Vys. Temp.)*, vol. 20, p. 472-479, 1982.
- [79] D.L. Parry et M.Q. Brewster, « Optical constants and size of propellant combustion aluminum oxide (Al₂O₃) smoke », presented at the 24th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint propulsion conference, Boston, Ma, 1988.
- [80] Y.A. Plastinin, G.F. Karabadjak, B.A. Khmelinin, G. Baula, et A. Rodionov, « Ultraviolet, visible and infrared spectra modeling for solid and liquid-fuel rocket exhausts », presented at the 39th Aerospace sciences meeting and exhibit, Reno-NV, USA, 2001.
- [81] N.A. Anfimov, G.F. Karabadjak, B.A. Khmelinin, Y. A. Plastinin, et A. V. Rodionov, « Analysis of mechanisms and nature of radiation from aluminum oxide in different phase states in rocket exhaust plumes », presented at the AIAA 28th Thermophysics conference, Orlando, FL, 1993.
- [82] Y. R. Shen, *The principles of nonlinear optics*. Wiley-Interscience, 2003.
- [83] R. Hellwarth, J. Cherlow, et T. Yang, « origin and frequency dependence of nonlinear susceptibilities of glasses », *Phys. Rev. B*, vol. 11, n° 2, p. 964-967, 1975.
- [84] N.G. Stanley-Wood et R.W. Lines, *Particle size analysis*. Royal society of chemistry, 1992.
- [85] M. Kerker, *The scattering of light and other electromagnetic radiation*. Academic press, 1969.

ANNEXE A : CALCUL DES FONCTIONS DE PHASE

1/ Définition de la fonction de phase d'après la théorie de Mie [24]

Considérons des particules sphériques, de rayon R et d'indice n_{pa} , homogènes dans un liant, d'indice n_{li} . La première étape nécessite l'introduction de la matrice des amplitudes de diffusion S reliant le champ électrique de diffusion \vec{E}_s au champ électrique incident \vec{E}_i par la relation suivante.

$$\vec{E}_s = \begin{pmatrix} S_1 & S_4 \\ S_3 & S_2 \end{pmatrix} \vec{E}_i$$

Le formalisme de la théorie de Lorenz-Mie permet le calcul des différents coefficients de la matrice S . Pour une particule sphérique, les différentes composantes s'écrivent :

$$\begin{aligned} S_1 &= \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\tau_n^1 a_n - \tau_n^2 b_n) \\ S_2 &= \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\tau_n^2 a_n - \tau_n^1 b_n) \\ S_3 &= S_4 = 0 \end{aligned}$$

La dépendance de S_1 et S_2 avec les différents paramètres (θ , n_{pa} , n_{li} , R et λ) est complexe. En effet, les coefficients τ_n^1 et τ_n^2 ne dépendent que de l'angle de diffusion θ , alors que a_n et b_n dépendent de tous les autres paramètres. Les coefficients τ_n^1 et τ_n^2 sont calculés par récurrence [24]. L'expression des coefficients de diffusion externe a_n et b_n est donnée aux références [24][85].

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{m \psi_n(mx) \psi_n'(x) - \psi_n(x) \psi_n'(mx)}{m \xi_n'(x) \psi_n(mx) - \xi_n(x) \psi_n'(mx)} \\ b_n &= \frac{\psi_n(mx) \psi_n'(x) - m \psi_n(x) \psi_n'(mx)}{\xi_n'(x) \psi_n(mx) - m \xi_n(x) \psi_n'(mx)} \end{aligned} \tag{A.1}$$

où $\psi_n(x) = x j_n(x)$ et $\xi_n(x) = x j_n(x) + i x y_n(x)$ sont les fonctions de Ricatti-Bessel, $\psi_n'(x)$ et $\xi_n'(x)$ leurs dérivées respectives, $x = \frac{2\pi R}{\lambda} n_{li}$ le paramètre de taille et $m = n_{pa}/n_{li}$ le contraste d'indice. Les coefficients a_n et b_n peuvent aussi s'écrire de la manière suivante [8][10][48][49] :

$$\begin{aligned}
a_n &= \frac{1}{2} \left(1 - R_{n,a}^{li} - \sum_{p=1}^{\infty} T_{n,a}^{pa} (R_{n,a}^{pa})^{p-1} T_{n,a}^{li} \right) = \frac{1}{2} \left(1 - R_{n,a}^{li} - \frac{T_{n,a}^{pa} T_{n,a}^{li}}{1 - R_{n,a}^{pa}} \right) \\
b_n &= \frac{1}{2} \left(1 - R_{n,b}^{li} - \sum_{p=1}^{\infty} T_{n,b}^{pa} (R_{n,b}^{pa})^{p-1} T_{n,b}^{li} \right) = \frac{1}{2} \left(1 - R_{n,b}^{li} - \frac{T_{n,b}^{pa} T_{n,b}^{li}}{1 - R_{n,b}^{pa}} \right)
\end{aligned} \tag{A.2}$$

où nous avons introduit les coefficients de réflexion et de transmission à l'interface entre le liant et la particule (FIG. 69). Ces coefficients se calculent en fonction des formules de Riccati-Bessel [49]. Les indices n, a et n, b font référence aux coefficients a_n et b_n .

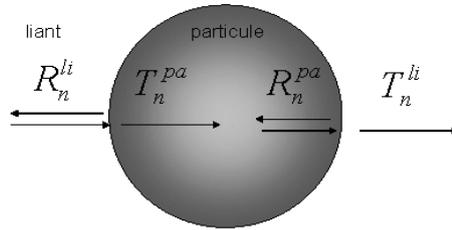


FIG. 69 : Coefficients de transmission et de réflexion nécessaires pour le calcul des modes de Debye.

Pour le mode 0 de Debye, les coefficients a_n et b_n sont égaux à $1 - R_n^{li}$. Ceux-ci correspondent à un mode de réflexion. La lumière ne pénètre pas dans la particule. Pour le mode 1, les coefficients a_n et b_n sont égaux à $T_n^{li} T_n^{pa}$, ce qui correspond à une transmission de la lumière à travers l'intérieur de la particule. Pour le mode 2, a_n et b_n sont égaux à $T_n^{li} R_n^{pa} T_n^{pa}$. La lumière est transmise dans la particule et elle subit une réflexion interne vers l'arrière. Pour le mode 3, a_n et b_n sont égaux à $T_n^{li} (R_n^{pa})^2 T_n^{pa}$. La lumière est transmise dans la particule et elle subit deux réflexions internes.

Une fois la matrice des amplitudes définie, nous pouvons donc déterminer les différents termes non nuls de la matrice de Mueller.

$$\begin{aligned}
M_{11} &= I/2(|S_1|^2 + |S_2|^2) \\
M_{12} &= I/2(|S_1|^2 - |S_2|^2) \\
M_{33} &= 2.Re(S_1 S_2^*) \\
M_{34} &= -2.Im(S_1 S_2^*)
\end{aligned} \tag{A.3}$$

Nous pouvons en déduire la formulation du vecteur de Stokes diffusé $S_d(I, Q, U, V)$ à l'aide de la matrice de Mueller M , des matrices de rotation R et du vecteur de Stokes incident S_i .

$$S_d = R(\sigma_d).M.R(\sigma_i).S_i$$

où σ_i est l'angle entre le plan du vecteur incident et le plan de diffusion et σ_d est l'angle entre le plan de diffusion et le plan du vecteur diffusé. La formulation de la matrice de rotation est la suivante :

$$R(\sigma) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(2\sigma) & \sin(2\sigma) & 0 \\ 0 & -\sin(2\sigma) & \cos(2\sigma) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Le formalisme complet a été développé, décrit et détaillé dans deux précédentes thèses [8][64]. La fonction de phase angulaire s'obtient à partir de $M_{11}(\theta)$ que nous normalisons sur tout l'espace.

2/ Définition de la fonction de phase temporelle

Dans le chapitre 1, nous définissons une fonction de phase temporelle $M_{11}(t, \theta)$. Pour la calculer, la première étape est de déterminer les coefficients S_1 et S_2 de la matrice des amplitudes pour chacune des composantes spectrales de l'impulsion laser femtoseconde incidente.

$$\begin{aligned} S_1(\omega, \theta) &= \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\tau_n^1(\theta) a_n(\omega, \theta) - \tau_n^2(\theta) b_n(\omega, \theta)) \\ S_2(\omega, \theta) &= \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\tau_n^2(\theta) a_n(\omega, \theta) - \tau_n^1(\theta) b_n(\omega, \theta)) \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Les éléments temporels s'obtiennent par la transformée de Fourier suivante :

$$S_{1,2}(t, \theta) = \int S_{1,2}(\omega, \theta) E(\omega) \exp(i(\phi(\omega) + (\omega - \omega_0)t)) d\omega \quad (\text{A.5})$$

où $E(\omega)$ et $\phi(\omega)$ sont respectivement le module et l'argument de l'impulsion incidente et ω_0 est la pulsation de la porteuse. $E(\omega)$ est généralement une gaussienne de largeur à mi-hauteur, notée *FWHM*. Pour l'ensemble du manuscrit, $\phi(\omega)$ est nul sauf dans la section relative aux effets de la dispersion et plus précisément du *chirp*. $S_{1,2}(\omega, \theta)$ est à priori un nombre complexe de module $s_{1,2}$ et d'argument $\phi_{s_{1,2}}$. Chacune des composantes spectrales est donc modulée en amplitude et décalée temporellement. Cette modulation est à l'origine de l'apparition de divers lobes temporels de la fonction de phase temporelle. Comme pour la théorie de Mie, $M_{11}(t, \theta)$ est directement proportionnel à $|S_1(t, \theta)|^2 + |S_2(t, \theta)|^2$.

3/ Impact d'une bande d'absorption sur le module et l'argument

Afin d'étudier les effets d'une bande d'absorption, nous souhaitons déterminer l'impact relatif du module $s_{1,2}$ et de l'argument $\phi_{s_{1,2}}$ de $S_{1,2}(\omega, \theta)$. Nous remplaçons, dans l'équation (A.5), $S_{1,2}(\omega, \theta)$ par les quantités suivantes :

$$s_{1,2} \exp(i\phi_{s_{1,2}}^b)$$

$$s_{1,2}^b \exp(i\phi_{s_{1,2}})$$

où l'exposant b correspond à l'introduction d'une bande d'absorption dans le calcul de la réponse de Mie.

ANNEXE B : DEFINITION DU « CHIRP »

Nous décrivons ici les étapes nécessaires à la détermination du *chirp* ϕ_2 et de la durée de l'impulsion après propagation $\tau(z)$. Il s'agit de calculer le *chirp* afin de savoir si nous devons le prendre en compte lors du calcul de la fonction de phase angulaire et temporelle. D'abord, nous devons définir l'indice du liant (l'eau dans notre cas) en fonction de ω . Puis, nous devons déterminer l'ensemble des dérivées afin d'obtenir les valeurs de ϕ_2 et de $\tau(z)$, données dans le chapitre 1.

$$\phi_2 = \frac{z}{c} \left[2 \frac{dn_{li}}{d\omega} \Big|_{\omega=\omega_0} + \omega_0 \frac{d^2 n_{li}}{d\omega^2} \Big|_{\omega=\omega_0} \right]$$

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + \phi_2^2 / \tau_0^4}$$

Où τ_0 (=100 fs) est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion initiale limitée par transformée de Fourier et z la longueur de propagation dans le liant.

1/ Détermination de l'indice en fonction de ω

Nous commençons par rappeler la définition de l'indice de réfraction d'après l'équation de dispersion. Dans notre cas, l'indice utilisé est celui de l'eau.

$$n_{li}^2 = 1 + \frac{0.5684027565\lambda^2}{\lambda^2 - 0.005101829712} + \frac{0.1726177391\lambda^2}{\lambda^2 - 0.01821153936} + \frac{0.02086189578\lambda^2}{\lambda^2 - 0.02625439472} + \frac{0.1130748688\lambda^2}{\lambda^2 - 10.69792721}$$

$$n_{li} = \sqrt{1 + \frac{A_1\lambda^2}{\lambda^2 - A_2} + \frac{B_1\lambda^2}{\lambda^2 - B_2} + \frac{C_1\lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{D_1\lambda^2}{\lambda^2 - D_2}}$$

$$n_{li} = \sqrt{1 + \frac{(2\pi c)^2 A_1}{(2\pi c)^2 - A_2 \omega^2} + \frac{(2\pi c)^2 B_1}{(2\pi c)^2 - B_2 \omega^2} + \frac{(2\pi c)^2 C_1}{(2\pi c)^2 - C_2 \omega^2} + \frac{(2\pi c)^2 D_1}{(2\pi c)^2 - D_2 \omega^2}} \quad \text{où } \omega = 2\pi c / \lambda$$

2/ Détermination des dérivées

Nous nous intéressons d'abord à la dérivée première de n_{li} par rapport à ω .

$$\frac{dn_{li}}{d\omega} = \frac{1}{2} u^{-1/2} u'$$

$$\text{Où } u = 1 + \frac{(2\pi c)^2 A_1}{(2\pi c)^2 - A_2 \omega^2} + \frac{(2\pi c)^2 B_1}{(2\pi c)^2 - B_2 \omega^2} + \frac{(2\pi c)^2 C_1}{(2\pi c)^2 - C_2 \omega^2} + \frac{(2\pi c)^2 D_1}{(2\pi c)^2 - D_2 \omega^2} \quad \text{est sans unité.}$$

Après calcul, u est égal à 1.7652. Nous déterminons maintenant la dérivée de u . Après calcul, u' est égal à $1.561 \cdot 10^{-17} \text{ s}$.

$$u' = \frac{2(2\pi c)^2 A_1 A_2 \omega}{((2\pi c)^2 - A_2 \omega^2)^2} + \frac{2(2\pi c)^2 B_1 B_2 \omega}{((2\pi c)^2 - B_2 \omega^2)^2} + \frac{2(2\pi c)^2 C_1 C_2 \omega}{((2\pi c)^2 - C_2 \omega^2)^2} + \frac{2(2\pi c)^2 D_1 D_2 \omega}{((2\pi c)^2 - D_2 \omega^2)^2}$$

Nous pouvons en déduire la valeur de la dérivée première. Elle est égale à $1.037 \cdot 10^{-17}$ s. Ensuite, nous nous intéressons à la dérivée seconde de n par rapport à ω .

$$\frac{d^2 n_{li}}{d\omega^2} = \frac{1}{2} \frac{d}{d\omega} (u^{-1/2} u') = \frac{1}{2} \left[-\frac{1}{2} u^{-3/2} (u')^2 + u^{-1/2} u'' \right]$$

Afin de pouvoir calculer la dérivée seconde, il reste uniquement à déterminer la dérivée seconde du terme u . Après calcul, u'' est égal à $-4.774 \cdot 10^{-33} \text{ s}^2$. Nous pouvons donc en déduire la valeur de la dérivée seconde. Elle est égale à $-1.823 \cdot 10^{-33} \text{ s}^2$.

$$u'' = \frac{2(2\pi c)^2 A_1 A_2 \left[((2\pi c)^2 - A_2 \omega^2)^2 + 4(2\pi c)^2 A_2 \omega^2 - 4A_2^2 \omega^4 \right]}{((2\pi c)^2 - A_2 \omega^2)^4} +$$

$$\frac{2(2\pi c)^2 B_1 B_2 \left[((2\pi c)^2 - B_2 \omega^2)^2 + 4(2\pi c)^2 B_2 \omega^2 - 4B_2^2 \omega^4 \right]}{((2\pi c)^2 - B_2 \omega^2)^4} +$$

$$\frac{2(2\pi c)^2 C_1 C_2 \left[((2\pi c)^2 - C_2 \omega^2)^2 + 4(2\pi c)^2 C_2 \omega^2 - 4C_2^2 \omega^4 \right]}{((2\pi c)^2 - C_2 \omega^2)^4} +$$

$$\frac{2(2\pi c)^2 D_1 D_2 \left[((2\pi c)^2 - D_2 \omega^2)^2 + 4(2\pi c)^2 D_2 \omega^2 - 4D_2^2 \omega^4 \right]}{((2\pi c)^2 - D_2 \omega^2)^4}$$

3/ Détermination du *chirp*

Nous souhaitons avoir une durée de l'impulsion après propagation de 120 fs. Pour cela, nous commençons par inverser l'équation de $\tau(z)$ afin d'en déduire le *chirp* ($\phi_2 = \sqrt{\tau_0^4 ((\tau(z)/\tau_0)^2 - 1)}$). Nous obtenons un *chirp* de 6633 fs^2 . A l'aide de la définition du *chirp* et du calcul des différentes dérivées, nous pouvons en déduire la distance de propagation dans le milieu de 12.1 cm.

ANNEXE C : LISTE DES PUBLICATIONS

François-Xavier d'Abzac, Myriam Kervella, Laurent Hespel et Thibault Dartigalongue, “Experimental and numerical analysis of ballistic and scattered light using femtosecond optical Kerr gating: a way for the characterization of strongly scattering media”, *Optics Express*, Vol. 20, n°9, pp. 9604–9615, 2012.

Myriam Kervella, François-Xavier d'Abzac, François Hache, Laurent Hespel et Thibault Dartigalongue, “Picosecond time scale modification of forward scattered light induced by absorption inside particles”, *Optics Express*, Vol. 20, n°1, pp. 32–41, 2012.

Myriam Kervella, François-Xavier d'Abzac, François Hache, Laurent Hespel et Thibault Dartigalongue, “Influence of absorption on the time of flight of the light going through a complex medium”, *AAPP|Physical, Mathematical, and Natural Sciences*, Vol. 89, Suppl. No.1, C1V89S1P048, 2011.

Modélisation du temps de vol des photons dans un milieu diffusant et absorbant à l'échelle femtoseconde

Les milieux diffusants épais et absorbant sont présents dans un grand nombre de domaines : peintures, jets, crèmes et produits cosmétiques, tissus biologiques, etc. L'étude *in situ* et non invasive de tels milieux est de la plus haute importance car l'enjeu est de pouvoir mesurer les propriétés physiques à l'intérieur même du système sans le perturber. L'utilisation d'un laser femtoseconde permet de sonder ces milieux en profondeur tout en effectuant des mesures de temps de vol des photons. L'objectif de cette thèse est de modéliser l'interaction entre une impulsion femtoseconde et un milieu à la fois diffusant et absorbant. L'effet principal des processus d'absorption est d'accélérer le temps de vol des photons. En effet, plus un photon reste longtemps dans le milieu, plus il aura de chance d'être absorbé. Les processus d'absorption ont en effet la propriété de « tuer » les trajectoires les plus longues, qui correspondent aux retards les plus conséquents. Une étude fine des signatures temporelles peut donc renseigner quant à la taille des particules, au coefficient d'absorption du liant, des particules ou d'autres paramètres microphysiques du milieu. Une partie conséquente du travail de thèse a consisté à étendre les modèles de diffusion temporelle au cas d'un milieu absorbant. Nous avons enfin réalisé plusieurs applications numériques à l'aide d'un code de Monte-Carlo modélisant la diffusion multiple temporelle dans un milieu absorbant. Deux cas particuliers exhibant une modification des signatures temporelles très sensibles à l'absorption ont été étudiés et illustrés de cas concrets. Tout d'abord, nous montrons qu'une très faible absorption dans de grosses particules se répercute sur la signature temporelle en diffusion avant. Une application pour la détermination de la température d'alumine dans un jet de propulseur est envisagée. Ensuite, l'absorption du liant réduit les temps de vol en rétrodiffusion. Une mise en évidence expérimentale de ce phénomène ainsi qu'une comparaison avec nos modèles sont présentées.

Mots clés : laser femtoseconde, diffusion de la lumière, absorption

Modelling of the time of flight of photons through a scattering and absorbing medium at femtosecond time scale

Thick scattering and absorbing media are present in a great variety of domains such as paints, jets, cosmetics, biological tissues, etc. *In situ* and non invasive studies of such media are very important because the issue is to measure physical properties inside the medium without perturbations. The use of a femtosecond laser can both probe these media in depth and make photons time of flight measurement. The aim of this thesis is to model interaction between a femtosecond pulse and a scattering and absorbing medium. The main effect of absorption is to increase the time of flight of photons. Indeed, the absorption processes have the property to “kill” the longer trajectory, which corresponds to more important delays. An extended study of temporal profiles can give information about the size of the particles, the absorption coefficients of the surrounding medium and of particles or other microphysical properties of the medium. A substantial part of the thesis consists in extension of temporal scattering models to the case of absorbing medium. We have finally realized several numerical applications with the help of a Monte-Carlo code, which simulates temporal multiple scattering processes in an absorbing medium. Two particular cases exhibit a neat modification of the temporal profile with absorption. We have studied and illustrated them with practical cases. First, we show that small absorption in large particles modifies the temporal profile in forward scattering. Application such as temperature determination of alumina particles in a rocket jet is considered. Then, absorption in the surrounding medium decreases the time of flight of backscattering temporal profile. An experimental illustration of this phenomenon and a comparison with our models are presented.

Keywords: femtosecond laser, scattering of the light, absorption