



HAL
open science

Etude du transport incohérent de lumière en milieu anisotrope : application à l'étude des fluides complexes

Nadjim Moumini

► **To cite this version:**

Nadjim Moumini. Etude du transport incohérent de lumière en milieu anisotrope : application à l'étude des fluides complexes. Autre [cond-mat.other]. Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2010. Français. NNT : 2010NAN10035 . tel-01748216

HAL Id: tel-01748216

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748216v1>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

UFR Sciences et Techniques de la Matière et des Procédés

École Doctorale EMMA

Département de Mécanique et d'Énergétique

Etude du transport de lumière en milieu anisotrope : Application à l'étude des fluides complexes

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 16 Avril 2010

pour l'obtention du titre de

Docteur de l'université Henri Poincaré – Nancy 1

en Mécanique et Énergétique

par

Nadjim Moumini
(ingénieur E.N.S.E.M)

Composition du jury

Rapporteurs :	Christian Wagner	Professeur Université de Saarland, Saarbrücke
	Jérôme Crassous	Professeur Université de Rennes1, Rennes
Examineurs :	Christophe Baravian	Professeur Université Henri-Poincaré, Nancy
	Laurent Michot	Directeur de Recherche CNRS ENSG, Nancy
	Jean-Paul Decruppe	Professeur Université Paul Verlaine, Metz
	Michel Lebouché	Professeur Université Henri-Poincaré, Nancy
<i>Invité :</i>	Alan Parker	Docteur-Ingénieur de recherche, Firmenich S.S., Suisse

Mis en page avec la classe thloria.

Table des matières

Nomenclature	1
Remerciements	3
Introduction	5
Chapitre 1 Bibliographie sur le transport de lumière en milieu isotrope	9
1.1 Description d'une onde électromagnétique plane	10
1.2 Transport incohérent de lumière dans une collection de particules isotropes	15
1.2.1 Définitions des longueurs caractéristiques de dispersion et diffusion en milieu isotrope	15
1.2.2 Equation du transfert radiatif en milieu isotrope	16
1.2.3 Résolution analytique de l'équation de diffusion	18
1.3 Dispositif expérimental	22
1.4 Mesure de la variation radiale d'intensité et détermination de la longueur de transport à partir de l'élément M_{11}	24
1.4.1 Calcul du barycentre	25
1.4.2 Intégration angulaire	25
1.4.3 détermination de la longueur de transport	26
1.5 Mesure de la taille et de la concentration des particules à partir du transport de lumière polarisée	28
1.5.1 Comparaison avec les simulations de Monte Carlo	30
1.6 Transport incohérent de lumière non-polarisée en un milieu anisotrope . . .	32
1.7 Conclusion	32

Chapitre 2 Interaction entre une onde électromagnétique et un ellipsoïde 37

2.1	Interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule sphé- roïdale	37
2.1.1	Bibliographie sur les méthodes de résolution des équations de Max- well sur des particules de forme arbitraire	39
2.1.2	Description de la méthode T-matrix	43
2.2	Résultats du code T-matrix : Etude des fonctions de phase	48
2.2.1	Les grandeurs de dispersion	48
2.2.2	Incidence parallèle	50
2.2.3	Incidence normale	50
2.2.4	Etude de la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$	55
2.2.5	Etude de la section efficace de dispersion moyenne $\langle C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) \rangle$	57
2.3	Conclusion	58

**Chapitre 3 Transport incohérent de lumière dans une collection de parti-
cules anisotropes 61**

3.1	Bibliographie sur la diffusion de lumière en milieu anisotrope	62
3.2	Simulations de Monte Carlo	66
3.2.1	Conventions de repères	66
3.2.2	Algorithme de Monte Carlo	68
3.3	Transport d'intensité moyenne	78
3.3.1	Variation radiale d'intensité	78
3.3.2	Ajustement sur le modèle à double source	79
3.4	Etude de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion	81
3.4.1	Variation angulaire d'intensité	81
3.4.2	Variation radiale d'anisotropie	85
3.4.3	Ajustement exponentiel de la variation radiale d'anisotropie	87
3.5	Résultats des simulations de Monte Carlo	90
3.5.1	Analyse de l'anisotropie proche	92
3.5.2	Analyse de l'anisotropie lointaine	97
3.6	Inversion du facteur de forme	101
3.7	Conclusion	101

Chapitre 4 Applications	103
4.1 Etude de la déformabilité des émulsions	104
4.1.1 Bibliographie sur la déformations des gouttelettes	104
4.1.2 Système étudié : dispersion d'une solution de gomme de guar dans une huile silicone	107
4.1.3 Mesure de la déformabilité des gouttelettes d'une émulsion par dif- fusion de lumière	110
4.1.4 Comparaison avec le dispositif Parallel Band apparatus	120
4.2 Etude de la déformation des globules rouges	122
4.2.1 Généralités sur les globules rouges	122
4.2.2 Bibliographie sur les techniques de mesure de la déformabilité des globules rouges	123
4.2.3 Préparation des échantillons	129
4.2.4 Mesure du module de cisaillement d'un globule rouge par diffusion de lumière	130
4.2.5 Conclusion	137

Chapitre 5 Transport incohérent de lumière dans une collection de longs cylindres partiellement orientés	139
5.1 Préambule	140
5.1.1 Théorie de Mie sur un cylindre infini	140
5.1.2 Les grandeurs de dispersion	142
5.2 Normalisation des simulations de Monte Carlo	143
5.3 Simulation de Monte Carlo	144
5.3.1 Généralité sur les simulations de Monte Carlo	144
5.3.2 Algorithme de Monte Carlo	144
5.3.3 Descriptions qualitatives des images de rétrodiffusion	151
5.4 Etude de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion	152
5.4.1 Première étape de l'analyse d'image : variation radiale d'intensité .	152
5.4.2 Seconde étape de l'analyse d'image : variation angulaire d'intensité	153
5.4.3 Troisième étape de l'analyse d'image : variation radiale d'anisotropie	155
5.4.4 Résultats des simulations de Monte Carlo	156
5.5 Inversion du paramètre d'ordre	158
5.6 Conclusion	158

Chapitre 6 Caractérisation de l'orientation par diffusion de la lumière	161
6.1 Système étudié : les microtubes de lipides	162
6.1.1 Analyse par microscopie	162
6.1.2 Etude structurale par diffusion des rayons-X	163
6.1.3 Etude structurale par diffusion de lumière	168
6.2 Orientation sous cisaillement par diffusion de lumière	170
6.2.1 Résultats des expériences de diffusion de lumière	170
6.2.2 Analyse de la variation angulaire d'intensité	175
6.2.3 Analyse de la variation radiale d'anisotropie	175
6.2.4 Mesure de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion	176
6.3 Orientation sous cisaillement par diffusion des rayons-X aux petits angles .	178
6.3.1 Bibliographie sur la caractérisation de l'orientation d'objets anisotropes par diffusion des rayons-X	178
6.3.2 Description du dispositif de Rheo-SAXS de la ligne ID02	179
6.3.3 Images de diffusion aux rayons-X	180
6.3.4 Influence du cisaillement sur la dispersion aux rayons-X	181
6.3.5 Comparaison entre diffusion aux rayons-X et diffusion de lumière . .	182
6.4 Influence de la température sur le cisaillement	184
6.4.1 Influence de la température sur la dispersion aux rayons-X	184
6.4.2 Comparaison entre diffusion aux rayons-X et diffusion de lumière . .	185
6.5 Conclusion	186
<hr/>	
Conclusions et perspectives	189
Bibliographie	199

Nomenclature

r_v	Rayon de la sphère de volume équivalent	m
\vec{B}	Champ magnétique	T
Br	Bruit de la camera	Bits
d, r	Distance parcourue dans le milieu	m
c	Célérité de la lumière	$m.s^{-1}$
C_{scat}	Section efficace de dispersion	m^2
$\langle C_{scat} \rangle$	Section efficace de dispersion moyenne	m^2
\vec{E}	Champ électrique	V
F_l	Flux diffusif	m^{-2}
g	Facteur d'anisotropie optique	
I	Intensité lumineuse	m^{-2}
J_i	Coefficient de la matrice de Jones pour une particule	
k, \vec{k}	Nombre et vecteur d'onde	m^{-1}
k_B	Constante de Boltzmann	J/K
l_a	Longueur d'absorption	m
l_{dec}	Longueur de décorélation	m
l_s	Longueur de dispersion	m
l_{TR}	Longueur de transport	m
$\langle l_{TR} \rangle$	Longueur de transport moyenne	m
m	indice de réfraction relaiif	
M	Matrice de Mueller	
M_{ij}	Coefficient de la matrice de Mueller	
T	Matrice de transition ou T-matrix	
T_{ij}	Coefficient de la matrice de transition	
N_m	Indice de réfraction du milieu	
N_p	Indice de réfraction des particules	
ξ	angle d'orientaion de la particule	
$p^{\xi}(\theta, \phi)$	Fonction de phase	

P_2	Paramètre d'ordre de SAXS	
q	Vecteur d'onde	m^{-1}
C_a	Nombre capillaire	
γ	tension interfaciale	N/m
R_{laser}	Rayon du spot laser	m
\vec{s}	Direction de propagation d'une OEM	
S	Vecteur de Stokes	
S_i	Vecteur de Stokes incident	
S_s	Vecteur de Stokes de sortie	
S^i	Coefficient du vecteur de Stokes	
x	Paramètre de taille	
ϕ	Angle azimutale de dispersion	
φ_v	Fraction volumique	
$\dot{\gamma}$	Vitesse de cisaillement	$m.s^{-1}$
λ	Longueur d'onde de la lumière	m
η	Viscosité dynamique	$Pa.s$
μ	module de cisaillement	N/m
ω	Pulsation d'oscillation	
θ	Angle de dispersion	
ρ	Distance par rapport au centre de la tache de diffusion	m
σ	Contrainte de Cisaillement	Pa

Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui m'ont soutenue tout au long de cette thèse très enrichissante.

Tout d'abord, je remercie le Professeur Christophe Baravian et le Professeur Michel Lebouché pour m'avoir permis de réaliser ces travaux au sein du laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée. Je le remercie pour ses questions et ses idées pertinentes sans compter son investissement et son soutien pendant les difficiles moments de remise en question.

Un immense merci au Professeur Christophe Baravian qui m'a donné des outils intéressants et un environnement de travail privilégié au sein du LEMTA. Je le remercie pour les discussions enrichissantes sur le transport incohérent de lumière et de la confiance accordée à mon travail. Il a toujours prêté une oreille attentive à mes interrogations. Son efficacité et sa quiétude m'ont fait apprécier le travail réalisé à ses côtés.

Un grand merci à Nicolas Roland, Catherine Eng, Sylvain Chupin, Rudy Covis, Alexandre Gallic, Bader Boubaker, Ali Nowamooz, ces années de thèse auraient été difficiles sans vous. Je souhaite remercier ma famille et ma belle-famille : mes parents, mes beaux-parents, Aïchat, Noura, Azhar, Aziz, Tonton Hassan, Afif, Mirhame, Mohamed et Adam.

Enfin, je remercie celle qui m'a toujours soutenu et qui m'a aidé à surmonter les difficultés, ma très chère femme mounira, que j'aime tendrement ; je te dédie cette thèse.

Introduction

Le sujet de la thèse porte sur la caractérisation des dispersions concentrées par diffusion de lumière. On parle de dispersion lorsqu'il y a mélange d'une substance dans une autre substance non miscible. Ainsi, les émulsions sont des dispersions d'un liquide dans une autre substance liquide. Les mousses sont des dispersions d'un gaz dans un liquide. Les suspensions sont également à ranger dans la famille des dispersions car elles sont constituées de particules solides en suspension dans un liquide. De ce fait, des substances que nous rencontrons au quotidien sont des dispersions. L'industrie cosmétique, par exemple, utilise très largement les dispersions : les crèmes hydratantes, les crèmes solaires, les savons, les lotions, les mousses à raser, les adoucissants..., pour ne citer qu'eux. On trouve également des dispersions dans le secteur agroalimentaire avec la mayonnaise, le beurre, les laitages, les boissons, les crèmes, ... On trouve des dispersions également dans d'autres domaines industriels tels que la pharmacie, la pétrochimie, la chimie, le biomédical, ou le bâtiment par exemple. Les dispersions sont également très couramment rencontrées dans la nature : les argiles, les poussières, les nuages ou le brouillard sont également des dispersions. De même, le vivant est également constitué des dispersions telles que les fluides biologiques et notamment le sang par exemple.

Une partie importante de la caractérisation des dispersions consiste à déterminer le lien entre les propriétés microscopiques de ces milieux dispersés concentrés et leur comportement macroscopique. L'organisation structurale de ces milieux dépend notamment de la taille des objets qui les constituent, leur concentration et les éventuelles anisotropies liées par exemple à une déformation des particules, ou à une orientation de particules constitutives anisotropes (ou les deux à la fois). La difficulté majeure que pose la caractérisation des dispersions constituées de particules micrométriques est leur générale opacité à la lumière visible. En effet, les milieux dispersés sont la plupart du temps turbides (lait, brouillard, sang,...). Nous nous proposons de développer une méthode de caractérisation utilisant ces propriétés diffusives. Par ailleurs, la caractérisation microscopique que nous cherchons à réaliser se propose d'être non-invasive, dynamique (afin de mesurer ses propriétés mécaniques, telle que la viscosité notamment) pour une gamme de taille comprise

entre quelques dizaines de nanomètres et quelques dizaines de microns, typiquement.

Il existe des techniques permettant de caractériser les dispersions en tenant compte des contraintes énoncées précédemment. Parmi ces techniques, on peut citer les techniques basées sur la dispersion de la lumière visible, des rayons-X (Small Angle X-rays Scattering) ou des neutrons (Small Angle Neutrons Scattering) aux très petits angles. Lorsque la longueur d'onde (0.1 nm pour les rayons-X par exemple) est faible comparée à la taille des objets (du nanomètre à quelques centaines de nanomètres), le milieu concentré devient optiquement mince. En effet, une faible longueur d'onde par rapport à la taille des particules réduit considérablement l'interaction entre le rayonnement et la matière, ce qui fait tout l'intérêt de l'utilisation des rayons X ou des Neutrons pour caractériser la matière. Le problème majeur de ces techniques est qu'elles permettent de caractériser des tailles de particules typiquement inférieures à 100 nm . Il apparaît utile de disposer d'une technique qui permet de caractériser la morphologie et l'organisation d'objets dont la taille est de l'ordre ou supérieure à 100 nm .

Les techniques basées sur la diffusion de la lumière permettent de caractériser des milieux dispersifs dont la taille des particules est supérieure à quelques dizaines de nanomètres et en tenant compte des contraintes exposées précédemment. La technique consiste à éclairer un milieu dispersif, la lumière se propage et subit de multiples événements de dispersion : c'est le phénomène de diffusion. Ce phénomène est particulièrement efficace pour les milieux turbides. La difficulté rencontrée alors réside moins dans la mesure expérimentale de cette diffusion multiple que dans son interprétation. En effet, les particules sont de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde, ce qui nécessite la résolution exacte des équations de Maxwell pour décrire l'interaction entre une particule et le rayonnement. D'autre part, les événements de dispersions sont répétés de multiples fois à l'intérieur du milieu et il s'opère alors un véritable transfert radiatif des photons dans le milieu.

Des techniques basées sur la diffusion de la lumière ont été développées dans les thèses de Julien Mougel [65] et de Jérôme Dillet [24] et ont permis de mesurer la taille moyenne en volume et la concentration des particules connaissant les propriétés optiques du milieu dispersé. Mougel [65] utilise le **transport incohérent de lumière non-polarisée** pour mesurer la taille des objets connaissant la fraction volumique et les indices de réfraction. Dillet [24] propose une extension de la technique et montre que connaissant les indices de réfraction uniquement, il est possible de déterminer la taille et la concentration des particules grâce au **transport incohérent de lumière polarisée**. L'avantage de cette technique est qu'elle est tout à fait indiquée pour la caractérisation des milieux dont la

taille des particules est supérieure à 100 *nm*. Le principe de cette technique consiste à focaliser un laser à la surface d'un échantillon. La lumière va alors se propager dans le milieu et à l'aide d'une caméra C.C.D, on recueille la lumière rétrodiffusée, c'est-à-dire sortant du milieu dans le sens opposé à la direction de focalisation du faisceau. La taille moyenne en volume et la concentration sont obtenues à partir de l'image de rétrodiffusion isotrope.

Dans cette thèse, nous nous proposons donc d'étendre la technique actuelle en nous servant de la diffusion de la lumière pour caractériser l'anisotropie des milieux dispersés très turbides. On distingue deux types de milieu anisotrope : les milieux constitués de particules toutes orientées dans la même direction et capable de se déformer globalement comme les globules rouges sous cisaillement [7] et les milieux constitués de particules d'anisotropie finie (ou infinie) et ayant une orientation partielle ou totale comme les fibres musculaires ou la dentine. Lorsqu'on éclaire un milieu constitué d'une collection de particule. Cependant, contrairement à un milieu isotrope, dans un milieu anisotrope, l'orientation globale ou partielle des particules provoque l'anisotropie du transport de lumière. Concrètement, cela se traduit par une anisotropie de l'image de rétrodiffusion.

Par conséquent, dans cette thèse, nous apporterons les éléments théoriques nécessaires à la compréhension du transport incohérent de lumière non-polarisé dans un milieu anisotrope. Nous nous attacherons surtout à déterminer le lien existant entre l'anisotropie du transport de lumière et l'anisotropie du milieu telle que la déformation ou l'orientation de particules anisotropes.

Le mémoire de thèse s'organise ainsi en trois parties. La première partie est consacrée à l'état de l'art des techniques basées sur le **transport incohérent de lumière dans un milieu isotrope**. Nous rappellerons ainsi le principe de la technique ainsi que les résultats obtenus par Mougel [65] et Dillet [24].

La seconde partie est consacrée à l'étude du transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu constitué de particules toutes orientées suivant la même direction et déformables. A l'aide des simulations de Monte Carlo, nous modéliserons le transport de lumière dans un milieu constitué de particules de forme sphéroïdale allongées. A partir de l'analyse des simulations de Monte Carlo, nous déterminerons le lien entre l'anisotropie du transport de lumière et la déformation des particules. Nous appliquerons notre technique pour mesurer le module de cisaillement des globules rouges et pour mesurer la tension interfaciale d'une émulsion d'huile silicone dans une solution de gomme de guar.

Dans la troisième partie, nous nous intéresserons à l'étude du transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu constitué de particules très anisotropes ayant une orientation moyenne. Grâce aux simulations de Monte Carlo, nous modéliserons le transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu constitué de particules cylindriques infinies. A partir de l'analyse des simulations de Monte Carlo, nous déterminerons comme précédemment la relation entre l'anisotropie du transport de lumière et l'orientation moyenne des particules. Nous appliquerons enfin la technique à l'étude de l'orientation sous cisaillement des microtubes de lipides auto-assemblés.

Chapitre 1

Bibliographie sur le transport de lumière en milieu isotrope

Sommaire

1.1	Description d'une onde électromagnétique plane	10
1.2	Transport incohérent de lumière dans une collection de particules isotropes	15
1.3	Dispositif expérimental	22
1.4	Mesure de la variation radiale d'intensité et détermination de la longueur de transport à partir de l'élément M_{11}	24
1.5	Mesure de la taille et de la concentration des particules à partir du transport de lumière polarisée	28
1.6	Transport incohérent de lumière non-polarisée en un milieu anisotrope	32
1.7	Conclusion	32

Ce chapitre est un rappel bibliographique des travaux de Julien Mougel [65] et Jérôme Dillet [24] sur la diffusion multiple de lumière en milieu isotrope. Une onde électromagnétique plane, en traversant un milieu diffusant, subit de multiples événements de dispersion. La modélisation du transport incohérent de lumière dépend alors de la fraction volumique en particules φ_v , et de l'événement de dispersion obtenu en résolvant les équations de Maxwell.

Nous introduirons dans cette première partie du chapitre les longueurs caractéristiques du phénomène de dispersion d'une onde électromagnétique plane par des particules sphériques et les grandeurs de diffusion. La première longueur caractéristique est la longueur de dispersion l_s qui est la distance moyenne entre deux événements de dispersion. La se-

onde longueur est la longueur de transport l_{TR} qui correspond au libre parcours moyen des photons dans le milieu. Puis nous consacrerons le paragraphe suivant à la description du dispositif d'acquisition du transport de lumière. Nous verrons alors comment à partir de l'analyse de l'image de rétrodiffusion, on peut déterminer la fraction volumique des objets et la taille moyenne des particules.

1.1 Description d'une onde électromagnétique plane

Définition d'une onde électromagnétique plane

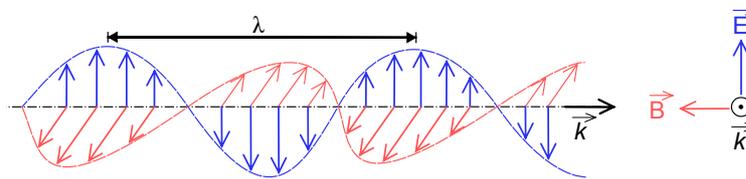


FIGURE 1.1 – Onde électromagnétique avec une polarisation linéaire rectiligne

Une onde électromagnétique plane est l'association d'un champ électrique \vec{E} et d'un champ magnétique \vec{B} . Les deux champs (électrique et magnétique) oscillent perpendiculairement dans le même plan perpendiculaire à la direction de propagation \vec{z} . On définit la longueur d'onde dans le vide λ à l'aide de la fréquence d'oscillation $\omega(\text{rad.s}^{-1})$ par la relation $\lambda = 2\pi c/\omega$ où $c = 3.10^8(\text{m.s}^{-1})$ correspond à la célérité de la lumière dans le vide. La relation 1.1 donne les expressions du champ électrique et du champ magnétique en fonction de la fréquence d'oscillation ω et du nombre d'onde $\vec{k} = 2\pi\lambda\vec{z}$.

$$\begin{pmatrix} \vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{z} - \omega t)} \\ \vec{B} = \vec{B}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{z} - \omega t)} \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

Où \vec{E}_0 et \vec{B}_0 correspondent aux amplitudes maximales respectivement des champs électrique et magnétique respectivement.

La polarisation de la lumière se définit comme étant le positionnement du champ électrique dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. La figure 1.1 représente la propagation d'une onde électromagnétique plane avec une polarisation linéaire verticale.

Formalisme de Jones

Le formalisme de Jones permet de décrire l'état de polarisation d'une onde électromagnétique plane lorsque celle-ci traverse un système quelconque. Dans ce formalisme, la lumière polarisée est représentée par un vecteur de Jones qui décrit son état de polarisation. Dans la figure 1.2, nous présentons les différents états de polarisation usuels de la lumière.

Dans le formalisme de Jones, on décompose le champ électrique en deux composantes dans le plan de vibration : une parallèle E_{\parallel} et une perpendiculaire E_{\perp} . La matrice de Jones est la matrice permettant de déterminer le champ électrique dispersée \vec{E}^s à une distance \vec{r} en fonction du champ électrique incident \vec{E}^{inc} :

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel}^s \\ E_{\perp}^s \end{pmatrix} = e^{-ik(\vec{r}-\vec{z})} \begin{pmatrix} J_2 & J_3 \\ J_4 & J_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel}^{inc} \\ E_{\perp}^{inc} \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

Où J_1, J_2, J_3 et J_4 sont des nombres complexes. Ce formalisme est utile lorsque la lumière est totalement polarisée. Dans le cas d'une lumière incohérente et partiellement polarisée, on lui préfère le formalisme de Stokes et l'utilisation de la matrice de Mueller dont toutes les composantes sont réelles.

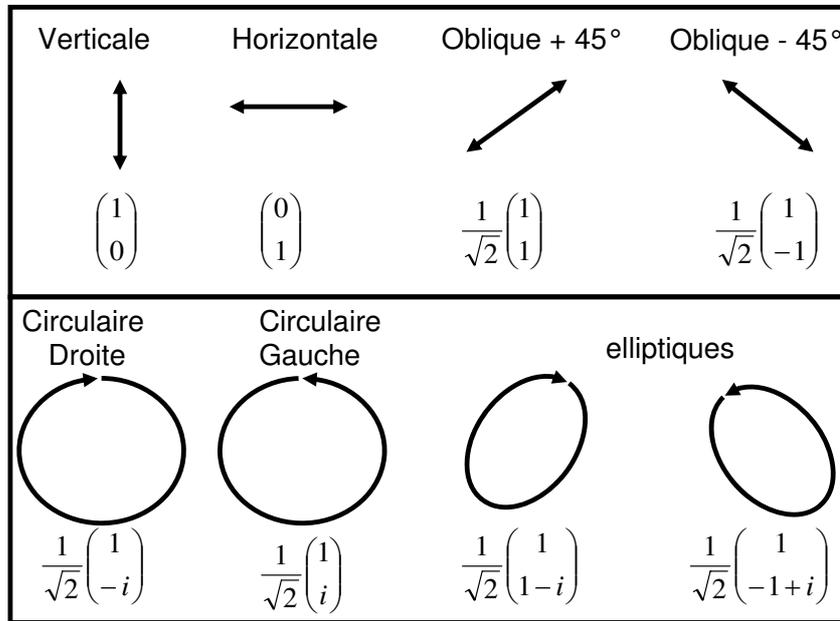


FIGURE 1.2 – Etat de polarisation d'une onde électromagnétique plane dans le formalisme de Jones

Formalisme de Stokes

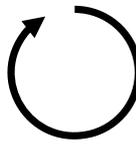
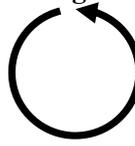
vertical 	horizontal 	+ 45° 	- 45° 	Circulaire droit 	Circulaire gauche 
$S = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$S = \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$S = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$S = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$S = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	$S = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$

FIGURE 1.3 – Les états de polarisation usuels de la lumière

Dans ce formalisme, on exprime le champ électrique à l'aide d'un vecteur \vec{S} dit de Stokes constitué de quatre éléments réels : $S^0 = \langle |E_{\parallel}|^2 + |E_{\perp}|^2 \rangle$ correspond à l'intensité du champ électrique, $S^1 = \langle |E_{\parallel}|^2 - |E_{\perp}|^2 \rangle$, $S^2 = \langle E_{\parallel}^* E_{\perp} + E_{\parallel} E_{\perp}^* \rangle$ et $S^3 = i \langle E_{\parallel}^* E_{\perp} - E_{\parallel} E_{\perp}^* \rangle$ du vecteur de Stokes correspondent à l'état de polarisation du champ électrique décomposée suivant la base réelle définie sur la figure 1.3 :

$$\begin{pmatrix} S_0^s \\ S_1^s \\ S_2^s \\ S_3^s \end{pmatrix} = \frac{1}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} & M_{14} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} & M_{24} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} & M_{34} \\ M_{41} & M_{42} & M_{43} & M_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_0^i \\ S_1^i \\ S_2^i \\ S_3^i \end{pmatrix} \quad (1.3)$$

La matrice de Mueller est la matrice de passage qui relie l'état de polarisation de l'onde incidente \vec{S}^i avec l'état de polarisation \vec{S}^s de l'onde dispersée (relation (1.3)). Cette matrice décrit l'interaction entre l'onde électromagnétique et la matière. Les éléments M_{ij} de la matrice de Mueller sont définis à partir des éléments J_i de la matrice de Jones (voir en annexe à la fin du chapitre). Il est possible de déterminer expérimentalement cette matrice de Mueller [24, 23]. Dans la figure 1.3, on récapitule les états de polarisation usuels de la lumière dans le formalisme de Stokes.

Dispersion d'une onde électromagnétique plane par une sphère

Avant de s'intéresser à la dispersion d'une onde électromagnétique plane par une particule de forme sphéroïdale, nous allons nous intéresser au cas de l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une sphère homogène. Cette interaction dépend de la

longueur d'onde λ , de l'état de polarisation de l'onde, des propriétés de la particule dispersante (à savoir le rayon de la particule a , l'indice de réfraction de la particule N_p) et des propriétés optiques du milieu environnant (indice de réfraction du milieu environnant N_m).

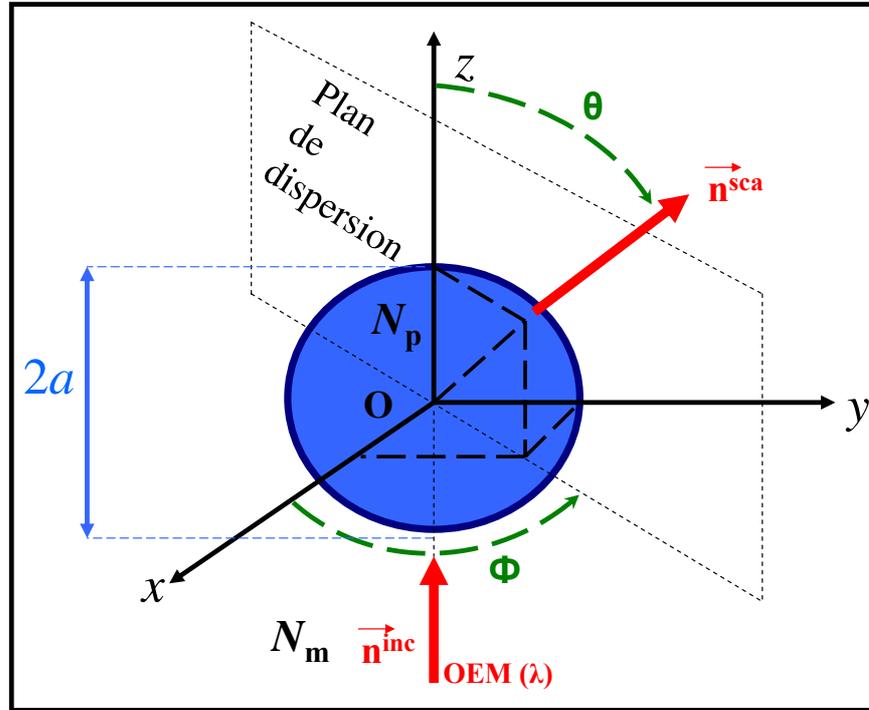


FIGURE 1.4 – Dispersion d'une onde électromagnétique plane (OEM) par une sphère

Sur la figure 1.4, on décrit schématiquement la dispersion d'une onde électromagnétique plane incidente dans la direction \vec{n}^{inc} par une particule sphérique centrée à l'origine du repère O. La particule disperse l'onde électromagnétique dans la direction \vec{n}^{sca} . Le plan constitué par les deux vecteurs constitue le plan de dispersion caractérisé par les deux angles ϕ et θ .

Paramètres de dispersion

Les travaux de Mie [55] ont permis de résoudre l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule sphérique homogène non-absorbante.

On montre que la dispersion d'une onde électromagnétique ne dépend que de deux paramètres adimensionnels :

- Le paramètre de taille $x = ka = 2\pi N_m a / \lambda$ où a est le rayon de la particule sphérique, N_m correspond à l'indice de réfraction du milieu environnant, et λ est la longueur d'onde électromagnétique plane dans le vide et λ / N_m correspond à la longueur d'onde dans le milieu.
- Le second paramètre adimensionnel est l'indice de réfraction relatif $m = N_p / N_m$ défini comme étant le rapport des indices de réfraction.

Connaissant ces deux paramètres, tous les éléments de la matrice de Jones peuvent être calculés et donc également ceux de la matrice de Mueller (voir en annexe à la fin du chapitre). Les ouvrages de Bohren et Huffman [15] et de Ishimaru [37], par exemple, présentent dans le détail le calcul des éléments de la matrice de Jones définis dans le paragraphe 1.1.

Les grandeurs de dispersion

A partir des paramètres de dispersion définis précédemment, on peut définir les grandeurs de dispersion. Trois grandeurs essentielles permettent de décrire le phénomène de dispersion d'une onde électromagnétique plane par une particule.

- Lorsqu'une particule interagit avec une onde électromagnétique plane, l'énergie transmise par la particule dans la direction incidente est plus faible que celle transmise en l'absence de la particule. On parle alors de phénomène d'extinction. La section efficace de dispersion $C_{scat}(x, m)(m^2)$ correspond au rapport entre la vitesse d'extinction de l'énergie à travers la particule et l'intensité incidente :

$$\begin{aligned} C_{scat}(x, m) &= \frac{\lambda^2}{4\pi N_m^2} \int_0^\pi (|J_1(x, m, \theta)|^2 + |J_2(x, m, \theta)|^2) \sin(\theta) d\theta \\ &= \frac{\lambda^2}{2\pi N_m^2} \int_0^\pi M_{11}(x, m, \theta) \sin(\theta) d\theta \end{aligned} \quad (1.4)$$

- La fonction de phase $p(x, m, \theta)$ représente la probabilité de dispersion normalisée de l'énergie de la particule dans la direction θ :

$$p(x, m, \theta) = \frac{|J_1(x, m, \theta)|^2 + |J_2(x, m, \theta)|^2}{\int_0^\pi (|J_1(x, m, \theta)|^2 + |J_2(x, m, \theta)|^2) \sin(\theta) d\theta} = \frac{M_{11}(x, m, \theta)}{\int_0^\pi M_{11}(x, m, \theta) \sin(\theta) d\theta} \quad (1.5)$$

- Le facteur d’anisotropie représente le cosinus moyen de l’angle de dispersion :

$$g(x, m) = \int_0^\pi p(x, m, \theta) \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (1.6)$$

1.2 Transport incohérent de lumière dans une collection de particules isotropes

1.2.1 Définitions des longueurs caractéristiques de dispersion et diffusion en milieu isotrope

Quand la lumière traverse un milieu constitué d’une collection de particules sphériques, les photons subissent de multiples événements de dispersion. Plusieurs paramètres permettent de décrire ce phénomène de diffusion de la lumière. La longueur de dispersion l_s est la distance moyenne entre deux événements de dispersion. On définit les grandeurs de diffusion à partir des grandeurs de dispersion définies dans le paragraphe 1.1. Ainsi, la longueur de dispersion l_s dépend du rayon a de la sphère, de la fraction volumique en particules φ_v et de la section efficace de dispersion C_{scat} :

$$l_s = \frac{4\pi a^3}{3\varphi_v C_{scat}} \quad (1.7)$$

Dans le cas d’une dispersion privilégiée vers l’avant ($g > 0$), deux événements de dispersion successifs sont corrélés. Cependant, au bout d’un certain nombre d’événements de dispersion égal en moyenne à $1/(1 - g)$, le photon perd l’information sur sa direction initiale. On appelle longueur de décorrélation l_{dec} , la distance moyenne parcourue par le photon avant que celui-ci perde l’information sur sa direction initiale. Cette grandeur de diffusion dépend de la longueur de dispersion l_s et du facteur d’anisotropie g de la fonction de phase :

$$l_{dec} = \frac{l_s}{1 - g} \quad (1.8)$$

La longueur d'absorption l_a est la distance moyenne parcourue par le photon avant d'être absorbé par le milieu. Un milieu totalement absorbant ("Noir") possède une longueur d'absorption nulle tandis qu'un milieu non-absorbant ("blanc") possède une longueur d'absorption infinie. Enfin, la dernière grandeur permettant de décrire le phénomène de diffusion est la longueur de transport l_{TR} qui est le libre parcours moyen des particules (c'est typiquement la distance à partir de laquelle, dans le brouillard par exemple, les objets ne sont plus localisables). La relation (1.9) permet de relier les trois paramètres que l'on vient de décrire :

$$\frac{1}{l_{TR}} = \frac{1}{l_{dec}} + \frac{1}{l_a} \quad (1.9)$$

1.2.2 Equation du transfert radiatif en milieu isotrope

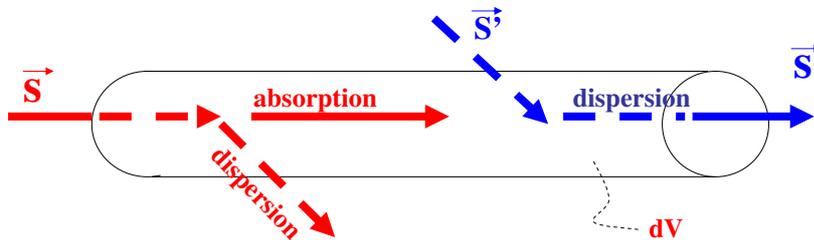


FIGURE 1.5 – Représentation de l'équation du transfert radiatif; Rouge : Le flux perdu dans la direction \vec{s} par dispersion et absorption, Bleu : Le flux reçu dans la direction \vec{s} par dispersion depuis la direction \vec{s}'

Lorsqu'un rayonnement électromagnétique traverse un milieu aléatoire, il se produit plusieurs phénomènes. Le rayonnement peut dans certains cas être absorbé par la matière (phénomène d'absorption). Il peut être également émis par la matière (phénomène d'émission). Et enfin, il peut dans certains cas être diffusé par la matière (phénomène de diffusion). On caractérise le rayonnement électromagnétique par son intensité spécifique ou radiance $L(\vec{r}, \vec{s})$ en $W.m^{-2}.sr^{-1}$. L'équation du transfert radiatif stationnaire est un bilan énergétique de la radiance à travers un élément de volume dV illustré sur la figure 1.5 [37] :

$$\vec{s} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{s}) = - \left(\frac{1}{l_s} + \frac{1}{l_a} \right) L(\vec{r}, \vec{s}) + \frac{1}{l_s} \int_{4\pi} p(\vec{s}, \vec{s}') L(\vec{r}, \vec{s}') d\Omega' + Q(\vec{r}, \vec{s}) \quad (1.10)$$

La variation de flux $\vec{s} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{s})$ est égale à la somme du flux perdu par dispersion $-\frac{1}{l_s} L(\vec{r}, \vec{s})$, du flux perdu par absorption $\frac{1}{l_a} L(\vec{r}, \vec{s})$ et du flux incident en provenance de la direction \vec{s}' et dispersé dans la direction \vec{s} à travers l'élément de volume dV . Le terme $p(\vec{s}, \vec{s}')$ désigne la fonction de phase, c'est-à-dire la probabilité qu'une onde incidente dans la direction \vec{s}' soit dispersée dans la direction \vec{s} et $Q(\vec{r}, \vec{s})$ représente la source interne.

L'équation du transport radiatif n'a pas de solution analytique mais en faisant l'approximation de diffusion (relation (1.11)), il est possible d'obtenir une solution analytique de l'équation du transfert radiatif (Haskell *et al.* [33], Ishimaru *et al.* [37]). L'approximation du transfert radiatif consiste à considérer la diffusion comme totalement isotrope dans le milieu après un certain nombre d'événements de dispersion. On exprime alors la radiance comme étant la somme de deux termes : un terme isotrope indépendant de la direction correspondant à la fluence et un terme anisotrope correspondant au flux de radiance.

$$\vec{L}(\vec{r}, \vec{s}) \approx \frac{1}{4\pi} \vec{\Phi}(\vec{r}) + \frac{3}{4\pi} \vec{F}(\vec{r}) \cdot \vec{s} \quad (1.11)$$

La relation (1.12) définit la fluence et la relation (1.13) définit le flux de radiance :

$$\Phi(\vec{r}) = \int_{4\pi} L(\vec{r}, \vec{s}) d\Omega \quad (1.12)$$

$$\vec{F}(\vec{r}, \vec{s}) = \int_{4\pi} \vec{L}(\vec{r}, \vec{s}') \cdot \vec{s} d\Omega \quad (1.13)$$

On obtient l'équation de diffusion (1.14) en introduisant l'approximation de diffusion dans l'équation du transport radiatif [4] :

$$\nabla^2 \Phi(\vec{r}) - \frac{3}{l_a l_{dec}} \Phi(\vec{r}) = \frac{3}{l_{dec}} S(\vec{r}) \quad (1.14)$$

Où $S(\vec{r})$ est la source diffuse de photons.

1.2.3 Résolution analytique de l'équation de diffusion

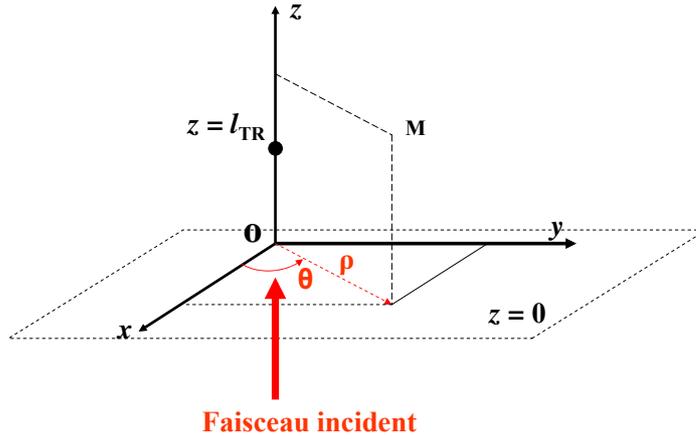


FIGURE 1.6 – Positionnement d'un point M dans l'espace ρ, θ, z et de la source de photons diffusives en ($\rho = 0, z = l_{TR}$)

La résolution analytique de l'équation de diffusion implique d'abord de choisir une géométrie d'étude et la grandeur physique qui sera mesurée. D'un point de vue expérimental, nous observons le phénomène de diffusion multiple de la lumière en considérant la géométrie de rétrodiffusion représentée par la figure (1.6). Le milieu est illuminé à incidence normale par une source de lumière focalisée à la surface de l'échantillon. Le milieu intérieur d'indice de réfraction N_{int} est séparé du milieu extérieur d'indice de réfraction N_{ext} par le plan $z = 0$. On définit sur ce plan le rayon polaire $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$. Le milieu intérieur est considéré comme semi-infini, c'est-à-dire que l'épaisseur du milieu intérieur est au moins dix fois supérieure à la longueur de transport l_{TR} . Enfin, la grandeur physique que l'on souhaite modéliser et qui sera mesurée expérimentalement est l'intensité rétrodiffusée $I_R(\rho)$. La relation (1.15) permet de calculer analytiquement $I_R(\rho, z)$ l'intensité rétrodiffusée à partir de la fluence $\phi(\rho, z)$:

$$I_R(\rho, z) = \int_{\Omega} \frac{1 - R_{Fresnel}}{4\pi} \left[\phi(\rho, z = 0) + 3D \frac{\partial \phi(\rho, z)}{\partial z} \cos(\theta) \right] \cos(\theta) d\Omega \quad (1.15)$$

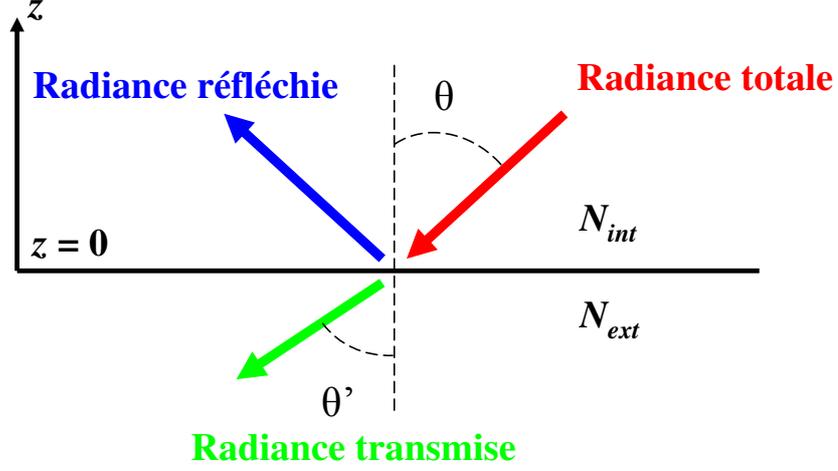


FIGURE 1.7 – Condition à l’interface entre deux milieux d’indices de réfraction différents

Où $R_{Fresnel}$ est le coefficient de Fresnel défini par la relation (1.16) et le coefficient $D = l_{TR}/3$. Le terme Ω représente l’angle solide de détection et en choisissant $\Omega = 2\pi$, on collecte tous les photons quelle que soit la direction de sortie dans le plan $z = 0$.

$$\begin{aligned}
 R_{Fresnel}(\theta) &= \frac{1}{2} \left(\frac{N_{int} \cos(\theta') - N_{ext} \cos(\theta)}{N_{int} \cos(\theta') + N_{ext} \cos(\theta)} \right)^2 \\
 &+ \frac{1}{2} \left(\frac{N_{int} \cos(\theta) - N_{ext} \cos(\theta')}{N_{int} \cos(\theta) + N_{ext} \cos(\theta')} \right)^2 \text{ pour } 0 < \theta < \theta_c \\
 &= 1 \text{ pour } \theta_c < \theta < \pi/2,
 \end{aligned} \tag{1.16}$$

Où θ est l’angle d’incidence, θ' est l’angle de réfraction ($N_{int} \sin(\theta) = N_{ext} \sin(\theta')$) et θ_c est l’angle critique au delà duquel la réflexion est totale ($N_{int} \sin(\theta_c) = N_{ext}$).

Modèle de Haskell sans absorption

Grâce aux travaux de Mougel [65], en considérant une source diffuse ponctuelle en $z = l_{TR}$ et en utilisant la condition à la frontière extrapolée [33, 65], on obtient la solution analytique à l’équation de diffusion (1.14) :

$$I(\rho) = \frac{1}{l_{TR}^2} \left[\frac{a}{\left(1 + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2}\right)^{\frac{3}{2}}} + \frac{d}{\left(c + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2}\right)^{\frac{3}{2}}} + \frac{b}{\left(1 + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2}\right)^{\frac{1}{2}}} - \frac{b}{\left(c + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2}\right)^{\frac{1}{2}}} \right] \tag{1.17}$$

avec $a = 0.0398$, $b = 0.0597$, $c = 5.4444$ et $d = 0.09284$ dans le cas d'une interface isoindice.

La relation (1.17) est appelée le **modèle de Haskell**. Le seul paramètre ajustable est la longueur de transport l_{TR} et la relation (1.17) est valable dans le cas d'un milieu non-absorbant ($l_a \rightarrow \infty$) [6].

Sur la figure 1.13, nous avons un exemple d'ajustement du modèle de Haskell (courbe en rouge) pour un milieu non-absorbant (relation (1.17)) sur la variation radiale d'intensité expérimentale (courbe noire). Le modèle est correcte sur un intervalle allant de $\rho = [l_{TR}; \infty[$.

Modèle de Haskell avec absorption

Dans le cas d'un milieu absorbant avec une longueur d'absorption $l_a = 3/(\mu_{eff} l_{TR}^2)$ [33], la relation 1.18 donne l'expression de l'intensité rétrodiffusée $I(\rho)$. Le coefficient $\mu_{eff}(m^{-1})$ correspond au coefficient d'absorption. Cette fois-ci, deux grandeurs ajustables interviennent dans l'expression de l'intensité rétrodiffusée : la longueur de transport l_{TR} et la longueur $1/\mu_{eff}$ liée à l'absorption :

$$I(\rho) = \frac{1}{l_{TR}^2} \left\{ \exp \left(-\mu_{eff} l_{TR} \left(1 + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right) \left[\frac{a}{\left(1 + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)} \left(\frac{1}{\left(1 + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)^{\frac{1}{2}} + \mu_{eff}} \right) + \frac{b}{\left(1 + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)^{\frac{1}{2}}} \right] \right\} \\ + \frac{1}{l_{TR}^2} \left\{ \exp \left(-\mu_{eff} l_{TR} \left(c + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right) \left[\frac{d}{\left(c + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)} \left(\frac{1}{\left(c + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)^{\frac{1}{2}} + \mu_{eff}} \right) - \frac{b}{\left(c + \frac{\rho^2}{l_{TR}^2} \right)^{\frac{1}{2}}} \right] \right\} \quad (1.18)$$

avec $a = 0.0398$, $b = 0.0597$, $c = 5.4444$ et $d = 0.09284$ dans le cas d'une interface isoindice. La relation (1.18) est valable pour $l_a \geq l_{dec}$.

Modèle double source

Dans ce modèle, on considère deux sources diffusives au lieu d'une source. Les photons ballistiques deviennent des photons diffusifs après un certain nombre d'événements de dispersion $n_e = 1/(1 - g)$, c'est la raison pour laquelle, la source diffuse est placée en $z = l_{TR}$. Cependant, il existe des photons dits "photons courts" qui reviennent dans la

direction opposée avant d'avoir atteint $z = l_{TR}$ et forment en $z = 0$ une seconde source diffusives (voir figure 1.8). Le paramètre α représente l'amplitude relative des sources.

$$S(\rho = 0, z) = \alpha\delta(z = 0) + (1 + \alpha)\delta(z = l_{TR}) \quad (1.19)$$

Quand $\alpha = 0$, il n'y a qu'une source diffusives et on retrouve le modèle de Haskell (relation (1.17)) tandis que lorsque $\alpha = 1$, il n'y a qu'une source en $z = 0$. Le modèle **double source** améliore de façon considérable la description de la source diffusives de photons [19].

Sur La figure 1.13, nous avons un exemple d'ajustement du modèle double sources (courbe en bleu) pour un milieu non-absorbant (relation (1.17)) sur la variation radiale d'intensité expérimentale (courbe noire). Le modèle est correct sur un intervalle allant de $\rho = [\text{rayon du laser}; \infty[$.

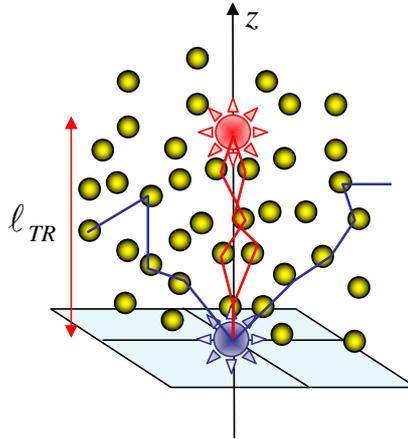


FIGURE 1.8 – Positionnement des sources de photons diffusives en $(\rho = 0, z = l_{TR})$ et $(\rho = 0, z = 0)$.

Mougel [65, 19] a donné un sens physique au paramètre α en montrant que ce paramètre est corrélé à la partie arrière de la fonction de phase $p(\pi)$ (voir la figure 1.9).

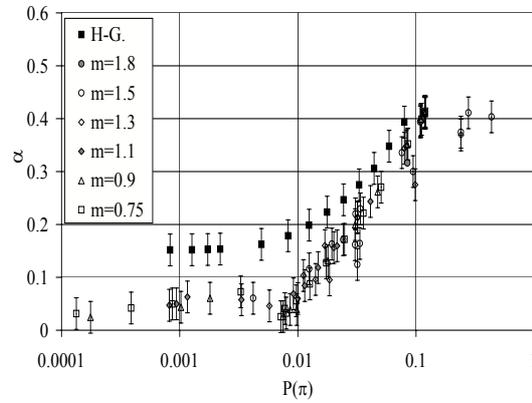


FIGURE 1.9 – Variation de α avec $p(\pi)$ pour différents m et différents x pour des suspensions monodisperses.

1.3 Dispositif expérimental

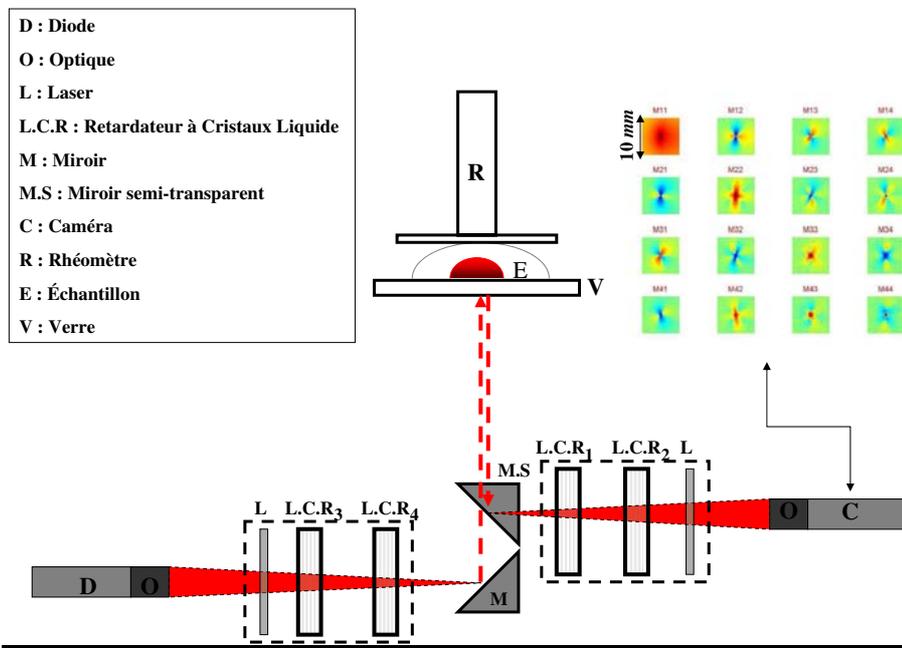


FIGURE 1.10 – Dispositif d'acquisition du transport incohérent de lumière polarisée

Le dispositif expérimental est constitué d'une source laser et d'une optique de focalisation. La diode laser possède une longueur d'onde $\lambda = 635 \text{ nm}$ et une puissance de 5 mW . Grâce au système de focalisation de la diode laser, la taille du faisceau laser fait environ $75 \mu\text{m}$ de rayon à une distance de 20 cm . On associe un polariseur linéaire à deux retardateurs à cristaux liquides (L.C.R) en entrée et en sortie du milieu diffusant afin de pouvoir générer ou analyser toutes les polarisations de la lumière. Ces retardateurs à cristaux liquides sont contrôlés électriquement. La juxtaposition des deux L.C.R et d'un polariseur linéaire permet, on le rappelle d'obtenir toutes les polarisations possibles. L'acquisition des images de rétrodiffusion s'obtient à l'aide d'une caméra C.C.D MX12P de résolution 1024×1024 en 12 bits de niveaux de gris. Ce système optique est placée à l'intérieur d'un rhéomètre Physica, ce qui permet d'effectuer les mesures de diffusion de lumière simultanément aux mesures des propriétés mécaniques des matériaux étudiés.

La mesure de la matrice de Mueller requière l'acquisition de seize images intensités $I^{i,j}$. Les indices i, j correspondent à l'indice de i de l'analyseur et l'indice j correspond à l'indice j du générateur. Chaque image est la moyenne sur 50 images. Cette procédure permet de réduire l'influence des speckles (ensemble de petites tâches fluctuantes qui apparaissent sur une image et qui lui donnent un aspect granuleux). La figure 1.11a) représente la matrice intensité obtenue pour une émulsion huile/eau. Chaque élément de la matrice correspond donc à une image intensité.

La matrice de Mueller se compose de seize images 2D (figure 1.11b)) et correspond à la totalité des interactions du milieu diffusant avec l'onde électromagnétique. Elle correspond à la matrice de passage qui permet de déterminer le champ électrique de sortie \vec{E}^s à partir du champ électrique incident \vec{E}^i dans tout le plan de rétrodiffusion.

A partir de cette matrice intensité, on calcule la matrice de Mueller par combinaisons linéaires des images I_{ij} de la matrice intensité (voir en annexe à la fin du chapitre). Les combinaisons sont effectuées pixel par pixel suivant la relation (??). La figure 1.11b) représente la matrice de Mueller dans le cas d'une émulsion huile/eau.

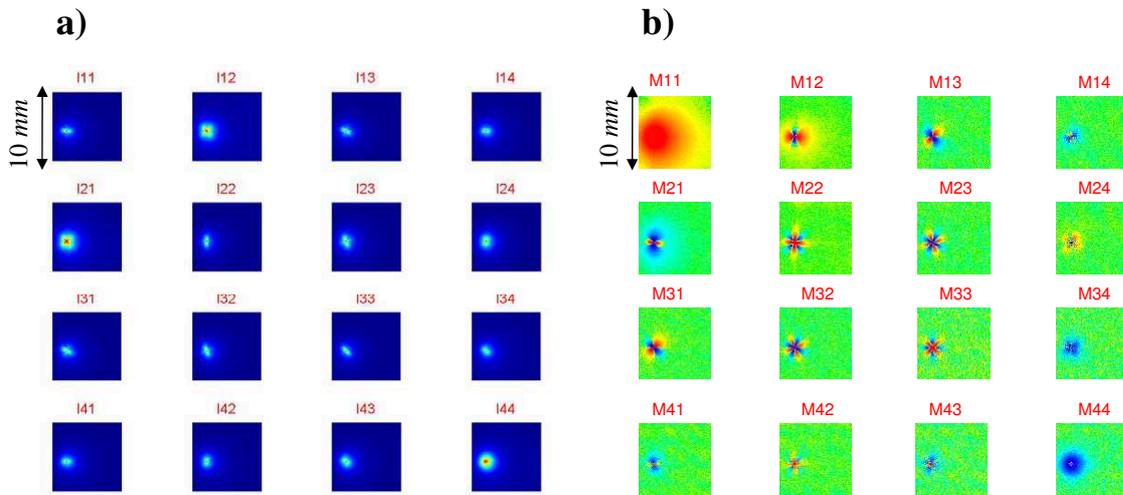


FIGURE 1.11 – a) Matrice intensité expérimentale d’une émulsion huile/eau de rayon moyen 222 nm , $l_{\text{TR}} = 0.668$ b) Matrice de Mueller expérimentale d’une émulsion huile/eau de rayon moyen 222 nm , $l_{\text{TR}} = 0.908 \text{ mm}$.

1.4 Mesure de la variation radiale d’intensité et détermination de la longueur de transport à partir de l’élément M_{11}

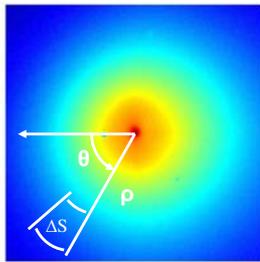


FIGURE 1.12 – Discrétisation d’une image de rétrodiffusion en coordonnées polaires (représentation en fausses couleurs)

A l’aide de la caméra C.C.D, on recueille en particulier une image de rétrodiffusion correspondant à l’élément M_{11} de la matrice de Mueller. Cette image de rétrodiffusion contient l’information sur la répartition spatiale d’intensité. A partir de cette image, la grandeur expérimentale que l’on va exploiter est l’intensité lumineuse mesurée $I_{\text{mesurée}}(\rho)$ par la caméra. Cette intensité lumineuse est en niveau de gris (unité arbitraire) donc en bits.

1.4.1 Calcul du barycentre

L'image va subir un premier traitement consistant à déterminer le barycentre de l'image de l'élément M_{11} . La relation (1.20) est appliquée aux pixels dont l'intensité est supérieure à $I_{max}/2$. Les indices i, j correspondent à l'indice de ligne et à l'indice de colonne d'un pixel sur le capteur C.C.D.

$$\begin{aligned} x_B &= \sum_j \left(j \sum_i I_{i,j} \right) / \sum_{i,j} I_{i,j} \\ y_B &= \sum_i \left(i \sum_j I_{i,j} \right) / \sum_{i,j} I_{i,j} \end{aligned} \quad (1.20)$$

1.4.2 Intégration angulaire

L'image est discrétisée en éléments de surface polaire avec ρ la distance au barycentre de l'image et θ l'angle par rapport à l'axe horizontal selon la convention définie sur la figure 1.12. On définit un élément de surface à l'aide de la relation $\Delta S = \rho \Delta \theta \Delta \rho$ où $\Delta \rho = 1$ pixel et $\Delta \theta = 10^\circ$. Les intensités de chaque pixel ΔS sont alors moyennées et stockées dans un tableau : la matrice intensité \mathbf{I} où chaque élément $I_{I,J}$ (avec $I, J \in [1; 1024]$) correspond à l'intensité en bit pour chaque distance radiale ρ en pixel et pour chaque angle θ . L'intensité lumineuse mesurée $I_{mesurée}(\rho)$ est obtenue en faisant la moyenne sur tous les angles θ pour chaque distance radiale ρ .

On corrige cette grandeur en ôtant le bruit Br en bits de la caméra puis on la normalise avec le flux total F_l ($bits.m^2$) reçu par la caméra pour obtenir l'intensité lumineuse ou variation radiale d'intensité $I(\rho)$ en m^{-2} :

$$I(\rho) = \frac{I_{mesurée}(\rho) - Br}{F_l} \quad (1.21)$$

avec :

$$F_l = \int_0^\infty [I_{mesurée}(\rho) - Br] 2\pi\rho d\rho \quad (1.22)$$

Une fois que l'on a mesuré l'intensité radiale expérimentale, on la compare au modèle de Haskell (relation (1.18)) et grâce à une méthode d'optimisation (méthode des moindres-carrées), on peut obtenir la longueur de transport moyenne l_{TR} et la longueur d'absorption l_a .

1.4.3 détermination de la longueur de transport

La figure 1.13 donne un exemple de variation radiale d'intensité obtenue sur une émulsion huile/eau non-absorbante. On ajuste la variation radiale d'intensité expérimentale sur le modèle de Haskell pour un milieu non-absorbant (relation (1.17)). On s'aperçoit que le modèle est correct sur un intervalle allant de $\rho = [l_{\text{TR}}; \infty[$. Sur cet intervalle, les deux courbes se superposent. Pour modéliser entièrement la courbe de variation radiale d'intensité, il est nécessaire d'utiliser le modèle à double source. En effet, le modèle double source permet de modéliser la courbe sur l'intervalle $\rho = [\text{rayon du spot laser}; \infty[$. Les travaux de Julien Mougel [65] ont permis de montrer qu'on mesure la longueur de transport avec une précision d'environ 10%.

En prenant l'exemple d'une émulsion huile/eau, nous allons voir les différentes étapes permettant de mesurer la taille moyenne des gouttelettes formant la phase dispersée de l'émulsion ainsi que la fraction volumique en particules. L'indice de réfraction relatif dans le cas d'une émulsion d'huile/eau est égale à $m = 1.46/1.33 \approx 1.1$.

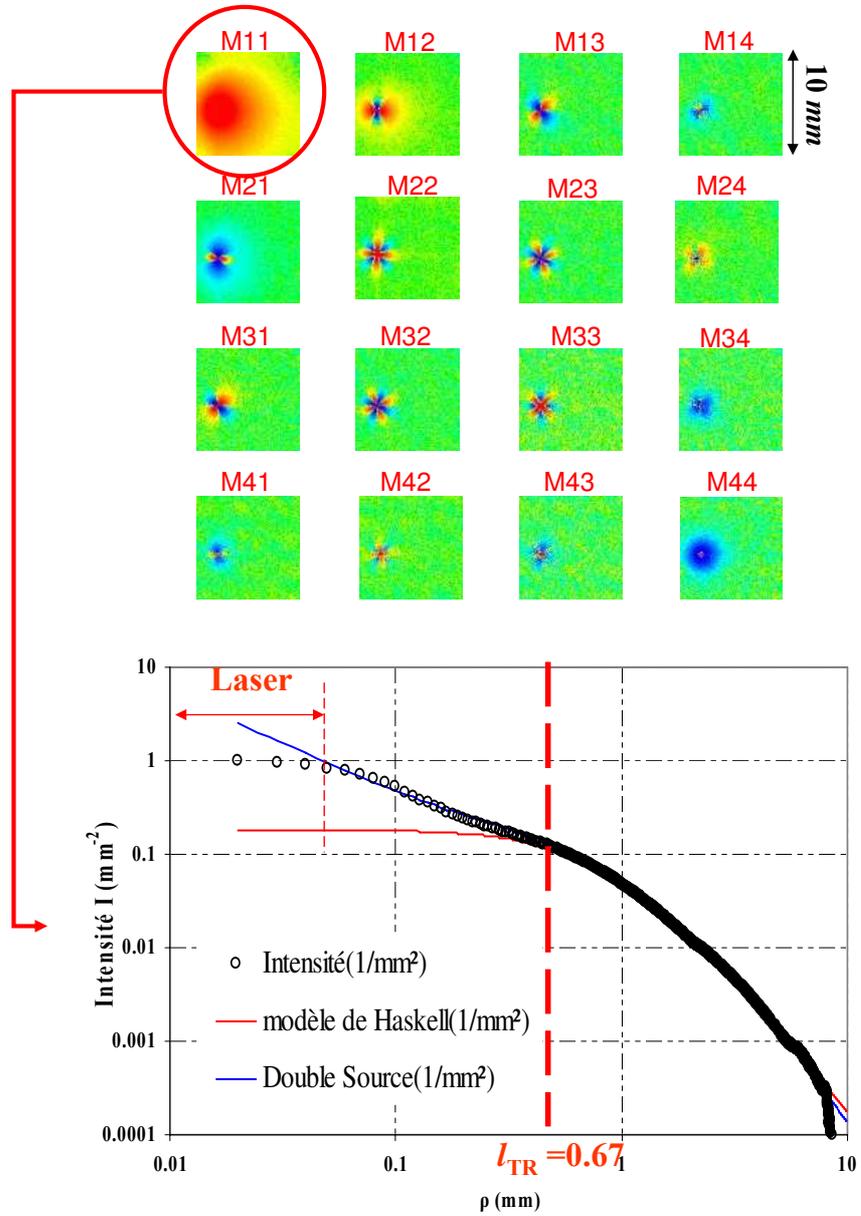


FIGURE 1.13 – Modélisation de la variation radiale d'intensité d'une émulsion huile/eau.
 ○ : Données Expérimentales. Rouge : Modèle de Haskell avec $l_{TR} = 0.668$ mm. Bleu :
 Modèle double source avec $l_{TR} = 0.668$ mm et $\alpha = 0.1449$

1.5 Mesure de la taille et de la concentration des particules à partir du transport de lumière polarisée

La première étape du traitement des matrices consiste à partir de l'élément M_{11} de la matrice de Mueller à mesurer la longueur de transport par ajustement de la variation radiale d'intensité sur le modèle de Haskell (voir paragraphe 1.4). Une fois cette étape effectuée, la phase suivante consiste alors à étudier les effets de polarisation. L'étude des effets de polarisation permet connaissant l'indice de réfraction relatif $m = 1.1$ de déterminer la taille moyenne et la concentration en particules de la phase dispersée [24, 23]. La mesure des effets de polarisation permet de déduire une taille moyenne des objets indépendamment de la fraction volumique φ_v .

La mesure des effets de polarisation consiste à récupérer sur la matrice de Mueller les variations angulaires d'intensité sur une couronne de rayon $l_{TR} \pm l_{TR}/10$. Les variations radiales d'intensité sont ensuite normalisées en multipliant les intensités par l_{TR}^2 . Sur la figure 1.15, on a représenté les variations angulaires d'intensité normalisées à partir desquelles on mesure les effets de polarisation dans le cas d'une émulsion huile/eau.

L'amplitude de polarisation est la moyenne des quatre amplitudes de polarisation des éléments M_{12} , M_{13} , M_{21} et M_{31} . La moyenne de polarisation est la moyenne de ces amplitudes des éléments M_{22} et M_{33} .

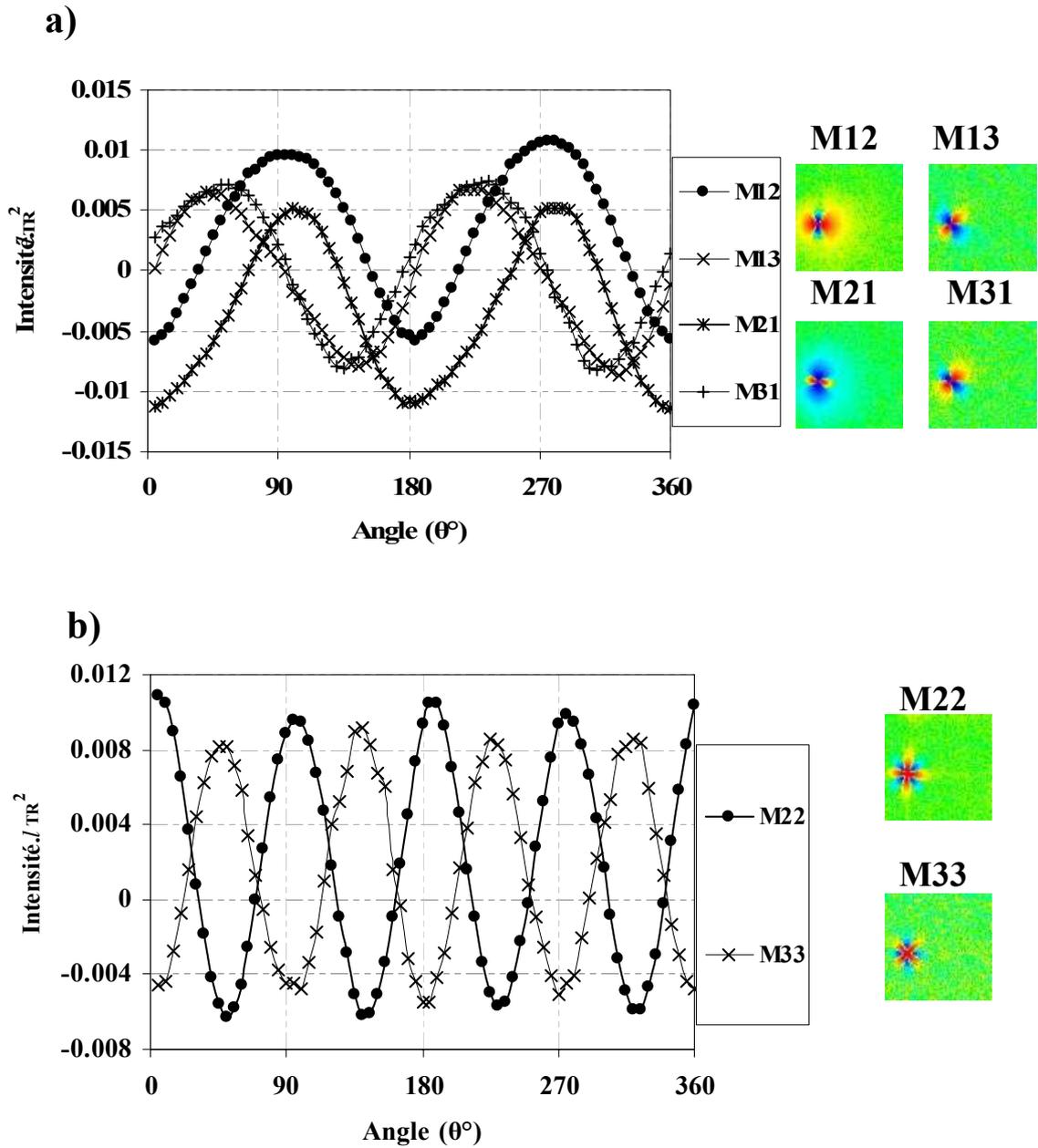


FIGURE 1.14 – Variations angulaires d'intensité des éléments M_{ij} de la matrice de Mueller en l_{TR} pour l'émulsion huile/eau (concentration 2 %, rayon moyen 220 nm)

1.5.1 Comparaison avec les simulations de Monte Carlo

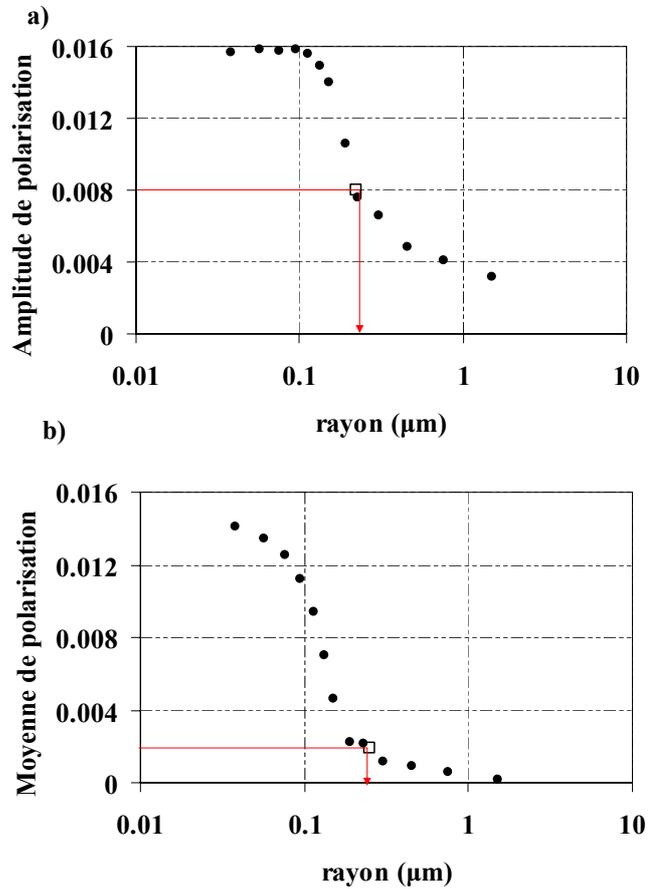


FIGURE 1.15 – Mesure de la taille par analyse des effets de polarisation pour l'émulsion huile/eau a) Amplitude de polarisation b) Moyenne de polarisation (● Simulation de Monte Carlo ; □ Émulsion huile/eau)

La dernière étape du traitement consiste à comparer l'amplitude de polarisation et la valeur moyenne des effets de polarisation aux simulations de Monte Carlo afin de déterminer la taille moyenne des particules connaissant l'indice de réfraction relatif m du milieu. La base de données réalisée grâce aux simulations de Monte Carlo par Jérôme Dillet donne les effets de polarisation d'un milieu d'indice de réfraction relative $m = 1.1$ pour des tailles de particules de quelques dizaines de nm à plusieurs μm . Sur la figure 1.15, on a inséré les mesures expérimentales des effets de polarisation obtenus pour l'émulsion huile/eau sur les simulations de Monte Carlo. Ainsi, grâce à l'amplitude de polarisation, on trouve un rayon moyen des gouttelettes de 222 nm et grâce à la moyenne de polarisation, on trouve une rayon moyen de 251 nm . Cette différence est due à la précision de mesure de

la moyenne. Il suffit d'augmenter légèrement la valeur de la moyenne pour avoir un rayon moyen identique à celui obtenu à l'aide de la polarisation, soit un rayon moyen de 251 nm.

Connaissant la taille moyenne des particules ($a = 251 \text{ nm}$) déterminée par le transport diffusif de polarisation ainsi que l'indice de réfraction relatif $m = 1.1$, on obtient la fraction volumique en particules en utilisant les relations (5.6), (1.8), et (1.9).

$$\Phi_v = \frac{4/3\pi a^3}{l_{\text{TR}} C_{\text{scat}}(a, m)(1 - g(a, m))} \quad (1.23)$$

Les paramètres $C_{\text{scat}}(a, m)$ et g peuvent être calculés grâce à la théorie de Mie (le détail des calculs est disponible en annexe à la fin du chapitre). Cependant, cette relation n'est pas valable en milieu concentré; il faut tenir compte du phénomène de diffusion dépendante. La diffusion dépendante intervient lorsque la distance interparticulaire est proche de la longueur d'onde. La prise en compte de la diffusion dépendante se traduit par l'ajout d'un terme correctif, le facteur de structure $S(\theta, x)$ dans les calculs théoriques. Ce facteur de structure tend vers 1 lorsque la fraction volumique tend vers 0. En régime de diffusion dépendante, la section efficace de dispersion, le facteur d'anisotropie et la fonction de phase sont définis de la manière suivante :

$$\begin{aligned} C_{\text{scat}}(x, m) &= \frac{\lambda^2}{4\pi N_m^2} \int_0^\pi (|J_1(x, m, \theta)|^2 + |J_2(x, m, \theta)|^2) S(\theta, x) \sin(\theta) d\theta \\ &= \frac{\lambda^2}{2\pi N_m^2} \int_0^\pi M_{11}(x, m, \theta) S(\theta, x) \sin(\theta) d\theta \end{aligned} \quad (1.24)$$

$$p(x, m, \theta) = (|J_1(x, m, \theta)|^2 + |J_2(x, m, \theta)|^2) S(\theta, x) F_{\text{norm}} \quad (1.25)$$

$$F_{\text{norm}} = \frac{C_{\text{scat}}}{\frac{\lambda^2}{4\pi^2 N_m^2}} \quad (1.26)$$

$$g(x, m) = \frac{1}{C_{\text{scat}}(x, m)} \frac{\lambda^2}{4\pi^2 N_m^2} \int_0^\pi (|J_1(x, m, \theta)|^2 + |J_2(x, m, \theta)|^2) S(\theta, x) \cos(\theta) d\theta \quad (1.27)$$

Le facteur de structure peut être calculé pour des particules sphériques en utilisant, par exemple, l'approximation de Percus-Yevick [19, 87].

1.6 Transport incohérent de lumière non-polarisée en un milieu anisotrope

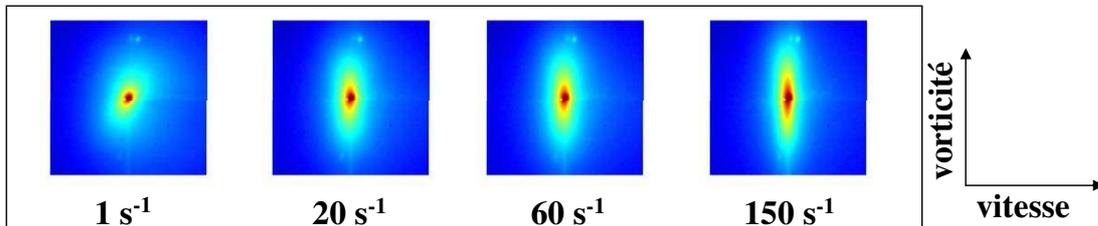


FIGURE 1.16 – Images de rétrodiffusion anisotrope d'un échantillon de microtubes de lipides à 50 mg/ml pour différents cisaillements

La figure 1.16 représente l'élément M_{11} de la matrice de Mueller obtenu lorsqu'on cisaille un milieu constitué de microtubes de lipides qui sont des particules anisotropes de forme tubulaire. Les milieux dispersés concentrés en particules anisotropes ou en particules déformables lorsqu'ils sont soumis à un écoulement de cisaillement provoquent une orientation partielle ou globale des particules anisotropes ou une déformation des particules sous cisaillement. Cette anisotropie du milieu entraîne alors une anisotropie du transport incohérent de lumière non-polarisée. Concrètement, on observe une déformation ou anisotropie de l'image de rétrodiffusion comme on peut le voir sur la figure 1.16. Au centre de l'image, on observe une anisotropie perpendiculaire à la direction d'écoulement des particules et loin du centre de l'image, on observe une seconde anisotropie de l'élément M_{11} dans le sens d'écoulement des particules anisotropes.

Dans la suite, nous allons nous intéresser à ce phénomène afin de relier l'anisotropie de l'élément M_{11} à l'anisotropie du milieu (soit la déformation des particules, soit l'orientation des particules anisotropes).

1.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons effectué un état de l'art des techniques basées sur le transport incohérent de lumière dans un milieu isotrope. Nous avons ainsi vu que lors de l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule sphérique, l'onde électromagnétique est dispersée, on parle alors d'événement de dispersion. La théorie de Mie montre que l'énergie dispersée autour de la particule sphérique est caractérisée par trois grandeurs : la probabilité de dispersion ou fonction de phase $p(x, m, \theta)$, la section

efficace de dispersion $C_{scat}(x, m, \theta)$ et le facteur d'anisotropie g . Ces grandeurs dépendent du paramètre de taille $x = 2\pi N_m a / \lambda$ et de l'indice de réfraction relatif $m = N_p / N_m$ où a est le rayon de la particule, λ est la longueur d'onde, N_p est l'indice de réfraction de la particule et N_m est l'indice de réfraction du milieu environnant.

Nous avons ensuite rappelé que l'étude du transport incohérent de lumière non-polarisée permet de déterminer la longueur de transport l_{TR} qui est une grandeur diffusive. Puis, nous avons également rappelé que l'étude du transport incohérent de lumière polarisée permettait à partir de la longueur de transport et des effets de polarisation de déterminer la taille des particules ainsi que la concentration des particules φ_v connaissant l'indice de réfraction relatif m .

Enfin, nous avons montré que l'orientation des particules déformables ou l'orientation partielle ou globale de particules anisotropes provoquaient une anisotropie du transport de lumière. Nous allons donc voir dans la suite comment déterminer l'anisotropie des particules (soit la déformation, soit l'orientation) à partir de l'anisotropie du transport de lumière.

Annexe : Calcul des fonctions d'amplitude par la théorie de Mie et facteur de structure

Voici les différentes étapes de calcul permettant d'obtenir les coefficients de Jones ($J_1(x, m, \theta)$ et $J_2(x, m, \theta)$) [15] pour une sphère homogène, connaissant $x = 2\pi a N_m / \lambda$ et $m = N_p / N_m$.

– Nous utilisons les fonctions de Bessel modifiées $j(x)$ (1.28) et $y(x)$ (1.29) :

$$\begin{cases} j_0(x) = \frac{\sin(x)}{x} \\ j_1(x) = \frac{\sin(x)}{x^2} - \frac{\cos(x)}{x} \\ j_n(x) = \frac{2n-1}{x} j_{n-1}(x) - j_{n-2}(x) \quad n \geq 2 \end{cases} \quad (1.28)$$

$$\begin{cases} y_0(x) = -\frac{\cos(x)}{x} \\ y_1(x) = -\frac{\cos(x)}{x^2} - \frac{\sin(x)}{x} \\ y_n(x) = \frac{2n-1}{x} y_{n-1}(x) - y_{n-2}(x) \quad n \geq 2 \end{cases} \quad (1.29)$$

– Puis nous définissons les fonctions $\psi(x)$ (1.30), $\zeta(x)$ (1.31) et $D(x, m)$ (1.32) :

$$\psi_n(x) = x j_n(x) \quad n \geq 2 \quad (1.30)$$

$$\zeta_n(x) = \psi_n(x) + i x y_n(x) \quad n \geq 2 \quad (1.31)$$

$$\begin{cases} D_0(x, m) = -\frac{1}{\tan(mx)} \\ D_n(x, m) = \frac{1}{\frac{n}{mx} - D_{n-1}(x)} - \frac{n}{mx} \quad n \geq 1 \end{cases} \quad (1.32)$$

– Nous calculons les fonctions $a_n(x, m)$ (1.33) et $b_n(x, m)$ (1.34) :

$$a_n(x, m) = \frac{\left(\frac{D_n(x, m)}{m} + \frac{n}{x}\right) \psi_n(x) - \psi_{n-1}(x)}{\left(\frac{D_n(x, m)}{m} + \frac{n}{x}\right) \zeta_n(x) - \zeta_{n-1}(x)} \quad n \geq 1 \quad (1.33)$$

$$b_n(x, m) = \frac{\left(m D_n(x, m) + \frac{n}{x}\right) \psi_n(x) - \psi_{n-1}(x)}{\left(m D_n(x, m) + \frac{n}{x}\right) \zeta_n(x) - \zeta_{n-1}(x)} \quad n \geq 1 \quad (1.34)$$

– Nous utilisons également les fonctions $\pi(\theta)$ (1.35) et $\tau(\theta)$ (1.36) :

$$\begin{cases} \pi_0(\theta) = 0 \\ \pi_1(\theta) = 1 \\ \pi_n(\theta) = \frac{2n-1}{n-1} \cos(\theta) \pi_{n-1}(\theta) - \frac{n}{n-1} \pi_{n-2}(\theta) \quad n \geq 2 \end{cases} \quad (1.35)$$

$$\begin{cases} \tau_1(\theta) = \cos(\theta) \\ \tau_n(\theta) = n \cos(\theta) \pi_n(\theta) - (n+1) \pi_{n-1}(\theta) \quad n \geq 2 \end{cases} \quad (1.36)$$

- Nous pouvons alors calculer les amplitudes complexes de dispersion $J_1(x, m, \theta)$ (1.37) et $J_2(x, m, \theta)$ (1.38) utilisées dans le formalisme de Jones. Le critère de convergence est choisi sur les fonctions $a_n(x, m)$ (1.33) et $b_n(x, m)$ (1.34). Ces fonctions tendent vers 0 quand n augmente. Nous avons choisi la valeur de 10^{-10} sur les modules des deux fonctions comme critère d'arrêt.

$$J_1(x, m, \theta) = \sum_{n=1}^{nb} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n(x, m)) \pi_n(\theta) + b_n(x, m) \tau_n(\theta) \quad (1.37)$$

$$J_2(x, m, \theta) = \sum_{n=1}^{nb} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n(x, m)) \tau_n(\theta) + b_n(x, m) \pi_n(\theta) \quad (1.38)$$

Chapitre 2

Interaction entre une onde électromagnétique et un ellipsoïde

Sommaire

2.1	Interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule sphéroïdale	37
2.2	Résultats du code T-matrix : Etude des fonctions de phase .	48
2.3	Conclusion	58

Pour décrire le transport incohérent de lumière dans un milieu anisotrope, il est nécessaire de connaître l'événement local de dispersion car l'objectif est de décrire le transport de lumière en partant de l'événement local de dispersion. Par conséquent, nous introduiront les différents paramètres qui permettent de décrire l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule de forme sphéroïdale.

Dans la première partie du chapitre, nous ferons l'état de l'art des méthodes de résolution des équations de Maxwell dans le cas d'une interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule sphéroïdale. Et dans la seconde partie, nous nous intéresserons à la fonction de phase d'une particule sphéroïdale et nous introduirons les grandeurs de dispersion.

2.1 Interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule sphéroïdale

On considère ici que les particules ont une forme sphéroïdale (prolate) de demi-grand axe b et de demi-petit axe a . Le rapport a/b représente ainsi l'anisotropie de l'objet ou

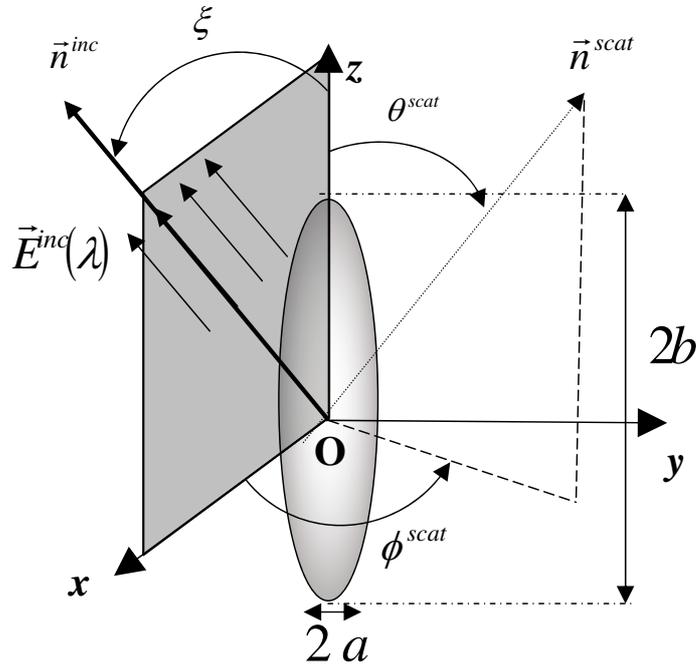


FIGURE 2.1 – Événement de dispersion : interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule de forme sphéroïdale

facteur de forme compris entre 0 (particule infiniment allongée) et 1 (sphère). La caractérisation de la dispersion d'une onde électromagnétique plane par une particule nécessite de connaître trois paramètres adimensionnels :

- Le paramètre de taille $x = kr_v = 2\pi N_m r_v / \lambda$ où $r_v = (a^2 b)^{1/2}$ est le rayon de la sphère de volume équivalent et λ est la longueur d'onde de l'onde électromagnétique plane et N_m est l'indice de réfraction du milieu environnant.
- Le second paramètre adimensionnel est l'indice de réfraction relatif $m = N_p / N_m$ avec N_p l'indice de réfraction optique de la particule et N_m est l'indice de réfraction du milieu environnant.
- Le troisième paramètre est le facteur de forme $\varepsilon = \frac{a}{b}$, où a étant la longueur du demi-petit axe et b étant la longueur du demi-grand axe (voir figure 2.1).

Par comparaison à une particule sphérique, dans le cas d'une particule sphéroïdale, en plus de l'indice de réfraction relatif m et du paramètre de taille x , nous devons donc tenir compte d'un troisième paramètre qui est l'anisotropie de la particule $\varepsilon = a/b$. En outre, pour une particule sphérique, du fait de sa symétrie, les grandeurs de dispersion telle que la fonction de phase ne dépendent que de l'angle θ . Dans le cas d'une particule

sphéroïdale, il en sera autrement, les grandeurs de dispersion sont dépendantes cette fois des angles θ , ϕ et de l'angle ξ entre la direction incidente de l'onde électromagnétique et l'axe d'orientation de la particule (figure 2.1). Nous voyons ainsi que la perte de symétrie sphérique rend le calcul de l'interaction entre une onde et un sphéroïde bien plus complexe.

2.1.1 Bibliographie sur les méthodes de résolution des équations de Maxwell sur des particules de forme arbitraire

Il existe un grand nombre de techniques développées depuis un certain nombre d'année permettant de résoudre le problème de l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule non-sphérique [2, 3, 28, 36, 58, 60]. Toutes ces techniques permettent de résoudre les équations de Maxwell (relation (2.1)) en considérant l'interaction entre une particule sphéroïdale.

$$\begin{aligned} \text{rot} \vec{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \\ \text{rot} \vec{H} &= \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \end{aligned} \tag{2.1}$$

En sachant que μ_0 est la perméabilité magnétique, \mathbf{H} est le champ magnétique, ε_0 est la permittivité et \mathbf{E} est le champ électrique.

Parmi les différentes méthodes de résolution, on peut citer :

- La méthode des Séparations des Variables (Separation Variable Method) est l'une des méthodes les plus citées dans la littérature. Cette méthode consiste à résoudre l'équation des ondes (équation de Helmholtz) par la méthode de séparation des variables usuellement utilisée pour résoudre les équations aux dérivées partielles. Cette méthode a permis à Mie [55] de résoudre les équations de Maxwell sur une sphère homogène et à Asano *et al.* [2],[3] de résoudre ces équations sur une particule sphéroïdale.
- L'Approximation des Dipôles Discrets (the Discrete Dipole Approximation) proposée par DeVoe *et al.* [21], et revue par Draine *et al.* [28] est une autre méthode permettant de résoudre les équations de Maxwell sur une particule de forme quelconque. Le principe de base de la méthode a été introduit par DeVoe *et al.* [21] pour étudier les propriétés optiques d'aggrégats moléculaires. Draine *et al.* [28] ont rendu cette méthode populaire en développant un code basé sur cette méthode : le code

DDSCAT. Le principe de base de la méthode consiste à discrétiser la particule en plusieurs volumes élémentaires V_j ($j = 1 \dots N$, N volumes élémentaires). Chaque volume élémentaire en réponse au champ électrique incident \vec{E}^{inc} acquière un moment dipolaire \vec{p}_j . Les dipôles interagissent entre eux via leurs champs électriques. On obtient alors un système d'équations linéaires permettant de calculer tous les moments dipolaires \vec{p}_j et l'on détermine ainsi le champ électrique dispersé par chaque dipôle j puis le champ électrique dispersé \vec{E}^{scat} par l'ensemble des dipôles. Le détail de la méthode est disponible dans la référence [28].

- La méthode des différences finies consiste à discrétiser le temps $t = n\Delta t$ et l'espace $x = i\Delta x, y = j\Delta y, z = k\Delta z$ avec $i, j, k, n \in \mathbb{N}$ et à résoudre les équations de Maxwell à l'aide des discrétisations des dérivées temporelles et spatiales. Cette méthode a été introduite par Yee [101]. On résout directement la forme différentielle des équations de Maxwell (relations (2.2) et (2.3)) dans le cas où $\Delta x = \Delta y = \Delta z$.

$$\begin{aligned}
 \mathbf{H}(i, j+1/2, k+1/2)_x^{n+1/2} &= \mathbf{H}(i, j+1/2, k+1/2)_x^{n-1/2} \\
 &+ \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left(\mathbf{E}(i, j+1/2, k+1)_y^n - \mathbf{E}(i, j+1/2, k)_y^n \right) \\
 &+ \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left(\mathbf{E}(i, j, k+1/2)_z^n - \mathbf{E}(i, j+1, k+1/2)_z^n \right) \\
 \mathbf{H}(i+1/2, j, k+1/2)_y^{n+1/2} &= \mathbf{H}(i+1/2, j, k+1/2)_y^{n-1/2} \\
 &+ \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left(\mathbf{E}(i, j, k+1/2)_z^n - \mathbf{E}(i, j, k+1/2)_z^n \right) \\
 &+ \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left(\mathbf{E}(i+1/2, j, k)_x^n - \mathbf{E}(i, j+1, k+1/2)_x^n \right) \\
 \mathbf{H}(i+1/2, j+1/2, k)_z^{n+1/2} &= \mathbf{H}(i+1/2, j+1/2, k)_z^{n-1/2} \\
 &+ \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left(\mathbf{E}(i+1/2, j+1/2, k)_x^n - \mathbf{E}(i+1/2, j, k)_x^n \right) \\
 &+ \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left(\mathbf{E}(i, j+1/2, k)_y^n - \mathbf{E}(i+1, j+1/2, k)_y^n \right)
 \end{aligned} \tag{2.2}$$

En sachant que μ_0 est la perméabilité magnétique, \mathbf{H} est le champ magnétique et \mathbf{E} est le champ électrique.

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}, \mathbf{k})_x^{n+1} &= \mathbf{E}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}, \mathbf{k})_x^n \\
&+ \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z} \left(\mathbf{H}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k})_z^{n+1/2} - \mathbf{H}(\mathbf{i}, \mathbf{j}-1/2, \mathbf{k})_z^{n+1/2} \right) \\
&+ \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z} \left(\mathbf{H}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}, \mathbf{k}-1/2)_y^{n+1/2} - \mathbf{H}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}, \mathbf{k}+1/2)_y^{n+1/2} \right) \\
\mathbf{E}(\mathbf{i}, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k})_y^{n+1} &= \mathbf{E}(\mathbf{i}, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k})_y^n \\
&+ \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z} \left(\mathbf{H}(\mathbf{i}, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k}+1/2)_x^{n+1/2} - \mathbf{H}(\mathbf{i}, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k}-1/2)_x^{n+1/2} \right) \\
&+ \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z} \left(\mathbf{H}(\mathbf{i}-1/2, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k})_z^{n+1/2} - \mathbf{H}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k})_z^{n+1/2} \right) \\
\mathbf{E}(\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k}+1/2)_z^{n+1} &= \mathbf{E}(\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k}+1/2)_z^n \\
&+ \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z} \left(\mathbf{H}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}, \mathbf{k}+1/2)_y^{n+1/2} - \mathbf{H}(\mathbf{i}-1/2, \mathbf{j}, \mathbf{k}+1/2)_y^{n+1/2} \right) \\
&+ \frac{\Delta t}{\varepsilon_0 \Delta z} \left(\mathbf{H}(\mathbf{i}, \mathbf{j}-1/2, \mathbf{k}+1/2)_x^{n+1/2} - \mathbf{H}(\mathbf{i}+1/2, \mathbf{j}+1/2, \mathbf{k}+1/2)_x^{n+1/2} \right)
\end{aligned} \tag{2.3}$$

Où ε_0 est la permittivité, \mathbf{H} est le champ magnétique et \mathbf{E} est le champ électrique.

- La méthode T-matrix utilisée dans notre étude a été développée par Mischenko [58, 59, 60, 61, 63, 64] dans le but de calculer l'interaction entre une particule non-sphérique et une onde électromagnétique. La méthode est basée sur la méthode Extended Boundary Condition Method ou Null Field Method par [95] et réactualisée par Mischenko *et al.* [58, 59, 60, 61, 63, 64]. Le détail de la méthode sera exposé dans le paragraphe 2.1.2.

Plusieurs études ont été réalisées afin de comparer les performances de chacune des méthodes existantes [36, 41, 93, 96, 99]. Ces études ont montré que la précision du calcul et l'espace mémoire requis ainsi que le temps de calculs dépendaient généralement des trois paramètres initiaux : le paramètre de taille $x = 2\pi N_m r_v / \lambda$, l'indice de réfraction relatif m et le facteur de forme de la particule $\varepsilon = a/b$. Hovenier *et al.* [36] a comparé les matrices de dispersion obtenues à l'aide de trois méthodes différentes : l'Approximation des dipôles discrets (Discret Dipole Approximation method), la méthode EBCM (Extended Boundary Condition method), plus connue sous le nom de méthode T-matrix, et la méthode de Séparation des Variables (Separate Variable Method) pour des prolates et des oblates et également pour des cylindres de dimensions finies ayant un paramètre de taille $x = 5$

et un indice de réfraction relatif de $m = 1,5 + 0.1i$. Les résultats de l'étude montrent une bonne correspondance entre la méthode EBCM (Extended Boundary Condition method) et la méthode de Séparation des Variables (SVM). Voshchinnikov *et al.* [93] comparent la méthode de Séparation des Variables et la méthode T-matrix afin de calculer les propriétés optiques d'un sphéroïde homogène dont l'indice de réfraction relatif varie entre 1,3 et $3 + 4i$ et un paramètre de taille supérieures à 30. Ils concluent dans cette étude que la méthode SVM est une méthode extrêmement précise numériquement. Cependant, pour des tailles de paramètres très élevés et des indices de réfraction très élevés, le système d'équations linéaires nécessitant d'être résolu pour calculer les propriétés optiques de la particule devient trop grand et des problèmes de convergence apparaissent. Wriedt *et al.* [99] calculent les propriétés optiques d'un cube d'indice de réfraction relatif $m = 1.5$ et d'un cube d'indice de réfraction $m = 1.334$. Ils calculent ces propriétés à l'aide de trois méthodes : la méthode EBCM, la méthode DDA et une troisième méthode, la méthode Finite Difference Time Domain (FDTD). Ils comparent les performances de ces trois méthodes et observent que la méthode FDTD requière énormément d'espace mémoire comparée aux deux autres méthodes et que le temps de calcul est également très élevé. La méthode DDA est utile pour calculer les propriétés optiques d'une particule de forme quelconque, inhomogène et anisotrope. Cependant, cette technique nécessite de répéter le même calcul pour chaque nouvel angle d'incidence du champ électrique extérieure.

Finalement, le tableau 2.1 compare les quatre méthodes que nous venons de citer en terme de performance en montrant les avantages et les inconvénients de chaque méthode. La méthode T-matrix est de loin la meilleure méthode de calcul des propriétés optiques d'une particule non-sphérique car elle possède un avantage sur les autres techniques ; les calculs n'ont pas besoin d'être répétés pour chaque nouvel angle incident contrairement aux autres techniques. C'est ce qui rend le calcul extrêmement rapide comparativement.

Méthode	paramètre de taille	avantages	inconvénients
Discrete Dipole Approximation	$x < 1$	utile pour des particules de forme arbitraire (anisotrope et inhomogène)	temps de calcul long, converge uniquement pour les petites particules
Separation Variable Method	$x < 30$	rapide et précis pour des géométries simples	ne converge pas si x , m et l'absorption sont importants
T-matrix	$x < 100$	rapide et précis	difficile à implémenter
Finite Differences Time Domain	$x < 100$	facile à implémenter	temps de calculs long pour $x \geq 1$

TABLE 2.1 – comparaison des différentes techniques de résolution des équations de Maxwell sur une particule non-sphérique

2.1.2 Description de la méthode T-matrix

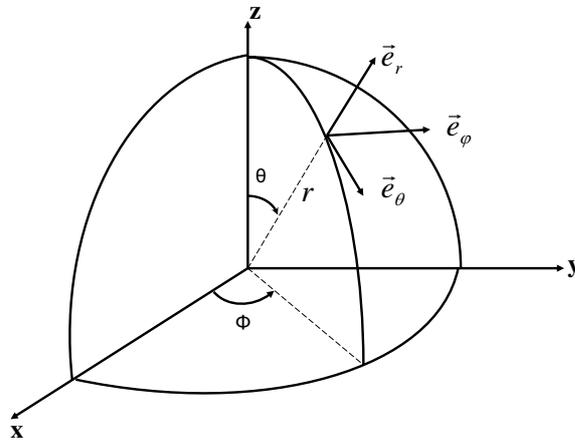


FIGURE 2.2 – Repère global du laboratoire

Expression de la matrice de Jones à partir de la T-matrix

Pour pouvoir calculer les grandeurs de dispersion d'une particule sphéroïdale, il est nécessaire de calculer la matrice de Jones définie par la relation (1.2). La méthode T-matrix introduite par Waterman [95] permet de résoudre le problème de la dispersion d'une onde électromagnétique plane par une particule homogène, de forme quelconque et

permet ainsi de calculer la matrice de Jones. On reprend dans ce paragraphe les grandes lignes des références [58, 64] dans lesquelles Mischenko détaille cette méthode et l'applique au cas particulier des particules sphéroïdales dont l'axe d'orientation est confondu avec l'axe Oz du repère de la particule (voir figure 2.1). Dans cette configuration, l'angle de la direction incidente est l'axe d'orientation de la particule $\xi = \theta_{inc}$.

Dans le repère du laboratoire, on exprime le champ électrique incident $\mathbf{E}^{inc}(\mathbf{r})$ à partir de la relation (2.4) :

$$\mathbf{E}^{inc}(\mathbf{r}) = E_{\theta}^{inc} \vec{e}_{\theta} + E_{\phi}^{inc} \vec{e}_{\phi} \quad (2.4)$$

Dans le formalisme de Jones, on exprime le champ électrique dispersé $\mathbf{E}^{sca}(\mathbf{r})$ en fonction du champ électrique incident $\mathbf{E}^{inc}(\mathbf{r})$ et de la matrice d'amplitude J telle que :

$$\mathbf{E}^{sca}(\mathbf{r}) = \frac{e^{ikr}}{r} \begin{pmatrix} J_2 & J_3 \\ J_4 & J_1 \end{pmatrix} \mathbf{E}^{inc}(\mathbf{r}) \quad (2.5)$$

Où $k = 2\pi N_m / \lambda$ est le nombre d'onde dans le vide. Dans le repère de la particule, les relations suivantes permettent de calculer les coefficients J_i ($i = \{1, 2, 3, 4\}$) de la matrice d'amplitude (relation 1.2) à partir des coefficients T^{ij} ($\{i, j\} = \{1, 2, 3, 4\}$) de la matrice de transition T-matrix dans le repère de la particule (relation (2.14)) .

$$\begin{aligned} J_2 = & \frac{1}{k} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{n'=1}^{\infty} \sum_{m=\min(n,n')}^{\min(n,n')} \\ & \times \alpha_{mnn'} [T_{mnm'n'}^{11}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc}) \\ & + T_{mnm'n'}^{21}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc}) \\ & + T_{mnm'n'}^{12}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc}) \\ & + T_{mnm'n'}^{22}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc})] \end{aligned} \quad (2.6)$$

$$\begin{aligned} J_3 = & \frac{-i}{k} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{n'=1}^{\infty} \sum_{m=\min(n,n')}^{\min(n,n')} \\ & \times \alpha_{mnn'} [T_{mnm'n'}^{11}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc}) \\ & + T_{mnm'n'}^{21}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc}) \\ & + T_{mnm'n'}^{12}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc}) \\ & + T_{mnm'n'}^{22}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc})] \end{aligned} \quad (2.7)$$

$$\begin{aligned}
 J_4 &= \frac{i}{k} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{n'=1}^{\infty} \sum_{m=\min(n,n')}^{\min(n,n')} \\
 &\times \alpha_{mnn'} [\mathbb{T}_{mnm'n'}^{11}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc}) \\
 &+ \mathbb{T}_{mnm'n'}^{21}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc}) \\
 &+ \mathbb{T}_{mnm'n'}^{12}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc}) \\
 &+ \mathbb{T}_{mnm'n'}^{22}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc})]
 \end{aligned} \tag{2.8}$$

$$\begin{aligned}
 J_1 &= \frac{1}{k} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{n'=1}^{\infty} \sum_{m=\min(n,n')}^{\min(n,n')} \\
 &\times \alpha_{mnn'} [\mathbb{T}_{mnm'n'}^{11}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc}) \\
 &+ \mathbb{T}_{mnm'n'}^{21}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \tau_{mn'}(\theta^{inc}) \\
 &+ \mathbb{T}_{mnm'n'}^{12}(kr, \theta, \phi) \tau_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc}) \\
 &+ \mathbb{T}_{mnm'n'}^{22}(kr, \theta, \phi) \pi_{mn}(\theta^{sca}) \pi_{mn'}(\theta^{inc})]
 \end{aligned} \tag{2.9}$$

En sachant que :

$$\begin{aligned}
 \alpha_{mnn'} &= i^{n'-n-1} \left[\frac{(2n+1)(2n'+1)}{n(n+1)n'(n'+1)} \right] \\
 &\times \exp[im(\phi^{sca} - \phi^{inc})]
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

avec $i^2 = -1$.

$$\pi_{mn}(\theta) = \frac{m d_{0m}^n(\theta)}{\sin(\theta)} \tag{2.11}$$

$$\tau_{mn}(\theta) = \frac{d d_{0m}^n(\theta)}{d(\theta)} \tag{2.12}$$

La relation (2.13) donne l'expression des fonctions de Wigner $d_{mm'}^n(\theta)$ en fonction des polynômes de Legendre $P_{mm'}^n(\cos(\theta))$:

$$P_n^m(\cos(\theta)) = (-1)^m \left[\frac{(n+m)!}{(n-m)!} \right]^{1/2} d_{0m}^n(\theta) \tag{2.13}$$

Expression de la T-matrix

On obtient alors la T-matrix grâce à la relation suivante :

$$\mathbf{T} = -(\mathbf{R}g\mathbf{Q})\mathbf{Q}^{-1} \quad (2.14)$$

Les éléments de la matrice \mathbf{Q} s'obtiennent grâce aux relations (2.15-2.18) :

$$Q_{mnm'n'}^{11} = -ik_0k J_{mnm'n'}^{21} - ik^2 J_{mnm'n'}^{12} \quad (2.15)$$

$$Q_{mnm'n'}^{12} = -ik_0k J_{mnm'n'}^{11} - ik^2 J_{mnm'n'}^{22} \quad (2.16)$$

$$Q_{mnm'n'}^{21} = -ik_0k J_{mnm'n'}^{22} - ik^2 J_{mnm'n'}^{11} \quad (2.17)$$

$$Q_{mnm'n'}^{22} = -ik_0k J_{mnm'n'}^{12} - ik^2 J_{mnm'n'}^{21} \quad (2.18)$$

avec :

$$\begin{pmatrix} J_{mnm'n'}^{11} \\ J_{mnm'n'}^{12} \\ J_{mnm'n'}^{21} \\ J_{mnm'n'}^{22} \end{pmatrix} = (-1)^m \int dS \cdot \mathbf{n} \cdot \begin{pmatrix} \mathbf{R}g\mathbf{M}_{m'n'}(k_0r, \theta, \phi) \times \mathbf{M}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \\ \mathbf{R}g\mathbf{M}_{m'n'}(k_0r, \theta, \phi) \times \mathbf{N}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \\ \mathbf{R}g\mathbf{N}_{m'n'}(k_0r, \theta, \phi) \times \mathbf{M}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \\ \mathbf{R}g\mathbf{N}_{m'n'}(k_0r, \theta, \phi) \times \mathbf{N}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

Où $k_0 = 2\pi N_p/\lambda$ est le nombre d'onde à l'intérieur de la particule et dS correspond à l'élément de surface et \mathbf{n} à la normale à la surface S de la particule. Les fonctions d'ondes sphériques \mathbf{M}_{mn} et \mathbf{N}_{mn} sont définies par les relations (2.20)-(2.25) :

$$\mathbf{M}_{mn}(k\mathbf{r}) = (-1)^m d_n h_n^{(1)}(kr) \mathbf{C}_{mn}(\theta) \exp(im\phi), \quad (2.20)$$

$$\mathbf{N}_{mn}(k\mathbf{r}) = (-1)^m d_n \left\{ \frac{n(n+1)}{kr} h_n^{(1)}(kr) \mathbf{P}_{mn}(\theta) + \frac{1}{kr} (kr h_n^{(1)}(kr))' \mathbf{B}_{mn}(\theta) \right\}, \quad (2.21)$$

$$\mathbf{B}_{mn}(\theta) = \vec{e}_\theta \frac{d}{d\theta} d_{0m}^n(\theta) + \vec{e}_\phi \frac{im}{\sin(\theta)} d_{0m}^n(\theta), \quad (2.22)$$

$$\mathbf{C}_{mn}(\theta) = \vec{e}_\theta \frac{im}{\sin(\theta)} d_{0m}^n(\theta) - \vec{e}_\phi \frac{d}{d\theta} d_{0m}^n(\theta), \quad (2.23)$$

$$\mathbf{P}_{mn}(\theta) = \vec{e}_r d_{0m}^n(\theta), \quad (2.24)$$

$$d_n = \left[\frac{2n+1}{4\pi n(n+1)} \right]^{1/2}, \quad (2.25)$$

Les fonctions $h_n^{(1)}$ correspondent aux fonctions de Hankel sphérique du premier ordre. La relation (2.26) donne l'expression des fonctions de Wigner $d_{mm'}^n(\theta)$ en fonction des polynômes de Legendre $P_{mm'}^n(\cos(\theta))$:

$$d_{mm'}^n(\theta) = i^{m'-m} P_{mm'}^n(\cos(\theta)). \quad (2.26)$$

Enfin, pour obtenir les expressions des fonctions RgM_{mn} et RgN_{mn} , on remplace dans les relations (2.20) et (2.21) les fonctions de Hankel sphérique du premier ordre $h_n^{(1)}$ par les fonctions de Bessel sphérique du premier ordre j_n .

Les éléments de la matrice RgQ s'obtiennent grâce aux relations (2.27)-(2.30) :

$$\text{RgQ}_{mnm'n'}^{11} = -ik_0 k \text{RgJ}_{mnm'n'}^{21} - ik^2 \text{RgJ}_{mnm'n'}^{12} \quad (2.27)$$

$$\text{RgQ}_{mnm'n'}^{12} = -ik_0 k \text{RgJ}_{mnm'n'}^{11} - ik^2 \text{RgJ}_{mnm'n'}^{22} \quad (2.28)$$

$$\text{RgQ}_{mnm'n'}^{21} = -ik_0 k \text{RgJ}_{mnm'n'}^{22} - ik^2 \text{RgJ}_{mnm'n'}^{11} \quad (2.29)$$

$$\text{RgQ}_{mnm'n'}^{22} = -ik_0 k \text{RgJ}_{mnm'n'}^{12} - ik^2 \text{RgJ}_{mnm'n'}^{21} \quad (2.30)$$

avec :

$$\begin{pmatrix} \text{RgJ}_{mnm'n'}^{11} \\ \text{RgJ}_{mnm'n'}^{12} \\ \text{RgJ}_{mnm'n'}^{21} \\ \text{RgJ}_{mnm'n'}^{22} \end{pmatrix} = (-1)^m \int d\mathbf{Sn}. \begin{pmatrix} \text{RgM}_{m'n'}(k_0 r, \theta, \phi) \times \text{RgM}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \\ \text{RgM}_{m'n'}(k_0 r, \theta, \phi) \times \text{RgN}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \\ \text{RgN}_{m'n'}(k_0 r, \theta, \phi) \times \text{RgM}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \\ \text{RgN}_{m'n'}(k_0 r, \theta, \phi) \times \text{RgN}_{-mn}(kr, \theta, \phi) \end{pmatrix} \quad (2.31)$$

En sachant que $d\mathbf{S}$ correspond à l'élément de surface et \mathbf{n} à la normale à la surface S de la particule.

Nous avons choisi dans le cadre de cette thèse d'utiliser la version développée par Mishchenko[58, 59, 60, 61, 63, 64] et accessible en ligne [62].

2.2 Résultats du code T-matrix : Etude des fonctions de phase

2.2.1 Les grandeurs de dispersion

La section efficace de dispersion différentielle

Grâce au code de calcul de Mischenko [62], nous pouvons déterminer la matrice de Mueller d'une particule sphéroïdale connaissant le paramètre de taille x , l'indice de réfraction relatif m , et le facteur de forme de la particule ε . Tous les éléments de la matrice de Mueller sont accessibles connaissant la direction de l'onde incidente $(\theta^{inc}, \phi^{inc})$ dans le repère de la particule et l'orientation ξ entre la direction de l'onde incidente et l'axe d'orientation de la particule (voir figure 2.1).

Contrairement à une particule sphérique, les grandeurs de dispersion dépendent cette fois-ci de l'angle azimutal ϕ , mais également du facteur de forme ε de la particule et de l'angle ξ .

La section efficace de dispersion différentielle $dC_{scat}/d\Omega(m^2)$ [64] correspond à la distribution angulaire de l'énergie dispersée autour de la particule. Il s'agit en clair de la puissance dispersée par la particule à l'intérieur d'un angle solide $d\Omega = \sin(\theta)d\theta d\phi$ dans une direction par unité d'intensité. La section efficace de dispersion différentielle définie par la relation (2.32) dépend des éléments $M_{1j}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) (j = 1, \dots, 4)$ de la matrice de Mueller, mais également de l'état de polarisation $\vec{S} = (S_0^{inc}, S_1^{inc}, S_2^{inc}, S_3^{inc})$ de l'onde électromagnétique incidente :

$$\frac{dC_{scat}}{d\Omega} = \frac{M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi)S_0^{inc} + M_{12}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi)S_1^{inc} + M_{13}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi)S_2^{inc} + M_{14}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi)S_3^{inc}}{S_0^{inc}} \quad (2.32)$$

Dans notre cas, seul le transport de lumière non-polarisée nous intéresse. Or, pour une onde non-polarisée, le vecteur de Stokes \vec{S} moyenné dans le temps est $(1, 0, 0, 0)$. Par conséquent, la relation (2.33) donne la section efficace de dispersion différentielle dans le cas d'une onde incidente non-polarisée :

$$\frac{dC_{scat}}{d\Omega} = M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \quad (2.33)$$

Définitions des grandeurs de dispersion

Lorsqu'on illumine une particule par une onde électromagnétique plane, l'énergie transmise par la particule à un détecteur placé derrière la particule est plus faible que celle transmise au détecteur en l'absence de particule : c'est le phénomène d'extinction.

La section efficace d'extinction C_{ext} (de dispersion C_{scat} ou d'absorption) est le rapport entre la vitesse d'extinction (de dispersion ou d'absorption C_{abs}) à travers une particule et l'intensité incidente. La relation (2.34) donne la relation entre les différentes sections efficaces de dispersion C_{scat} , d'absorption C_{abs} et d'extinction C_{ext} :

$$C_{ext} = C_{scat} + C_{abs}. \quad (2.34)$$

Pour une particule non-absorbante : $C_{ext} = C_{scat}$. On rappelle également la définition de la section projetée $G(\xi)$ d'une particule (2.35) de forme spheroidale (prolate) :

$$G(\xi) = \pi a (b^2 \sin^2(\xi) + a^2 \cos^2(\xi))^{1/2} \quad (2.35)$$

On définit alors la section efficace de dispersion adimensionnée comme étant le rapport entre la section efficace de dispersion et la section projetée (2.36) :

$$Q_{scat}(\xi) = \frac{C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)}{G(\xi)} \quad (2.36)$$

Soit : pour $\xi = 0^\circ$; $Q_{scat} = C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(0)/(\pi a^2)$ et $\xi = 90^\circ$; $Q_{scat} = C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\pi/2)/(\pi ab)$.

- La section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$ correspond au rapport entre la vitesse d'extinction de l'énergie à travers la particule et l'intensité incidente. Elle est définie par la relation 2.38 :

$$C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) = \int_{4\pi} \frac{dC_{scat}}{d\Omega} = \int_{4\pi} M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) d\Omega \quad (2.37)$$

Soit :

$$C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \sin(\theta) d\theta d\phi \quad (2.38)$$

- La fonction de phase correspond à la probabilité de présence des photons incidents dans la direction (θ, ϕ) . Elle est, après avoir rencontrée la particule, définie par la relation (2.39) :

$$p^{x,m,\varepsilon}(\vec{n}^{inc}, \vec{n}^{sca}) = p^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) = \frac{4\pi}{C_{scat}(\xi)} \frac{dC_{C_{scat}}}{d\Omega} = \frac{4\pi}{C_{scat}(\xi)} M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \quad (2.39)$$

en sachant que la fonction de phase vérifie la relation de normalisation $\int_{4\pi} p d\Omega = 4\pi$.

- On définit le facteur d'anisotropie qui est le cosinus moyen de l'angle de dispersion par la relation (2.41) :

$$g^{x,m,\varepsilon}(\xi) = \frac{1}{C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)} \int_{4\pi} \frac{dC_{scat}}{d\Omega} \cos(\theta) d\Omega = \frac{1}{C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)} \int_{4\pi} M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \cos(\theta) d\Omega \quad (2.40)$$

Soit :

$$g^{x,m,\varepsilon}(\xi) = \frac{\int_0^\pi \int_0^{2\pi} M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \sin(\theta) \cos(\theta) d\theta d\phi}{\int_0^\pi \int_0^{2\pi} M_{11}^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \sin(\theta) d\theta d\phi} \quad (2.41)$$

2.2.2 Incidence parallèle

La figure 2.3 représente la fonction de phase $p^\xi(\theta, \phi)$ d'une particule de forme sphéroïdale (prolate) de paramètre de taille $x = 1$ (à gauche) et d'une particule de paramètre de taille $x = 5$ (à droite). L'indice de réfraction relatif des deux particules est identique pour les deux particules $m = 0.66$. On se place dans le repère de la particule et la particule est orientée suivant l'axe Oz du repère de la particule. L'onde électromagnétique plane se déplace suivant l'axe Oz . La fonction de phase est représentée en échelle logarithmique. On fait varier dans les deux cas le facteur de forme des particules de $\varepsilon = 1$ à $\varepsilon = 0.1$. En clair, on déforme la particule et celle-ci passe d'une particule parfaitement sphérique à une particule allongée.

Il n'y a pas de dépendance de la fonction de phase par rapport à l'angle azimutal ϕ en raison de l'axisymétrie de la particule par rapport à l'onde incidente. Ensuite, la dispersion se produit de manière privilégiée vers l'avant de la particule quelque soit le facteur de forme ε de la particule, comme ce serait le cas pour une particule sphérique. Quand le facteur de forme augmente, c'est-à-dire qu'on déforme de plus en plus la particule, la dispersion vers l'avant augmente quelque soit le paramètre de taille x .

2.2.3 Incidence normale

La figure 2.4 représente la fonction de phase $p^\xi(\theta, \phi)$ d'une particule de forme sphéroïdale (prolate) de paramètre de taille $x = 1$ (à gauche) et d'une particule de paramètre

de taille $x = 5$ (à droite). L'indice de réfraction relatif des deux particules est identique pour les deux particules et vaut $m = 0.66$. On se place dans le repère de la particule et la particule est orientée suivant l'axe Ox du repère du laboratoire. L'onde électromagnétique plane incidente se déplace toujours suivant l'axe Oz . La fonction de phase est représentée en échelle logarithmique. Comme précédemment, nous faisons varier dans les deux cas le facteur de forme des particules de $\epsilon = 1$ à $\epsilon = 0.1$, on passe d'une particule parfaitement sphérique à une particule extrêmement allongée.

On constate qu'à incidence normale, la dispersion se fait de manière privilégiée vers l'avant et mais cette fois-ci dans la direction perpendiculaire à l'axe d'orientation de la particule. La figure 2.5 qui représente les fonctions de phase de la figure 2.4 projetées dans le plan Oxy rend encore mieux compte de cet effet. Comme précédemment, la dispersion vers l'avant augmente avec lorsque l'anisotropie de la particule augmente, c'est-à-dire lorsque le facteur de forme diminue. Pour les particules dont le paramètre de taille $x \geq 5$, la totalité de la dispersion se produit vers l'avant.

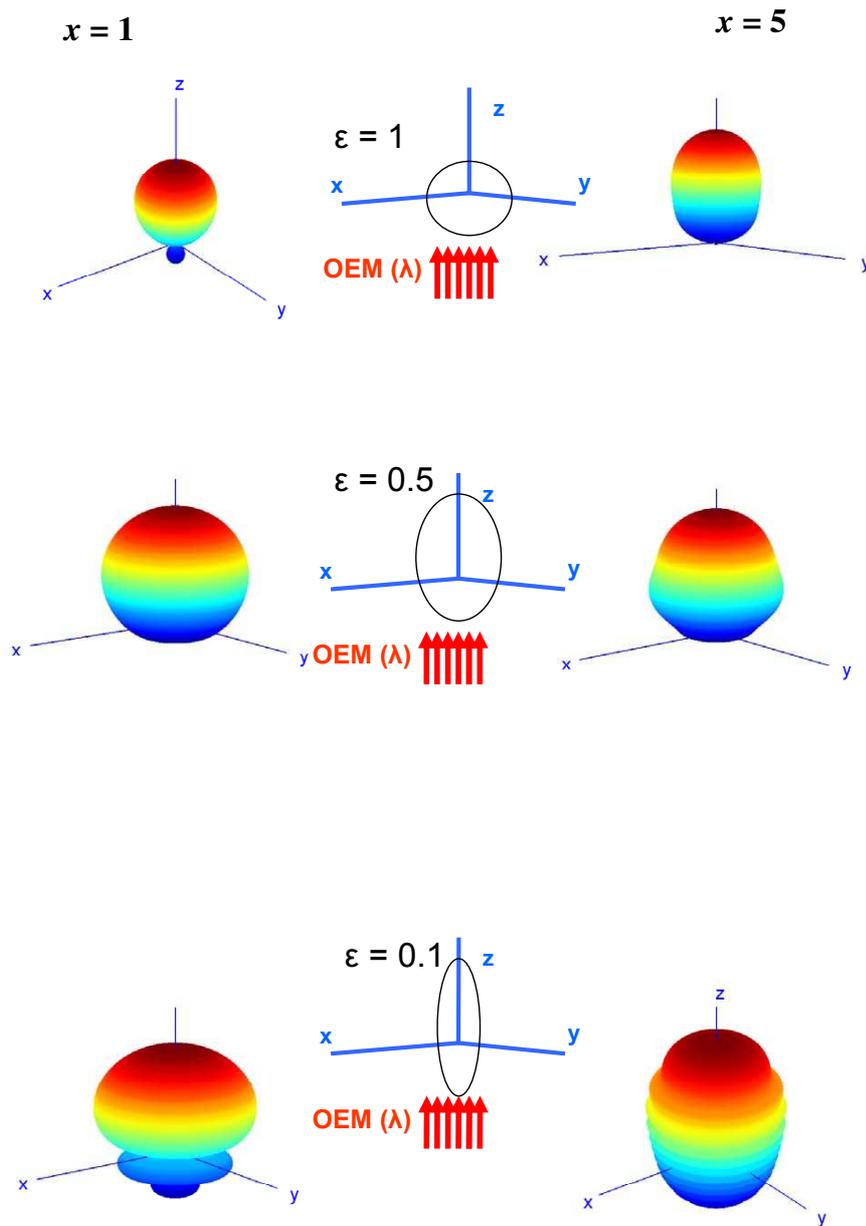


FIGURE 2.3 – Influence du facteur de forme sur la fonction de phase d’une particule de forme sphéroïdale (prolate) d’indice de réfraction $m = 0.66$, de paramètre de taille $x = 1$ (gauche) et $x = 5$ (droite) à incidence parallèle.

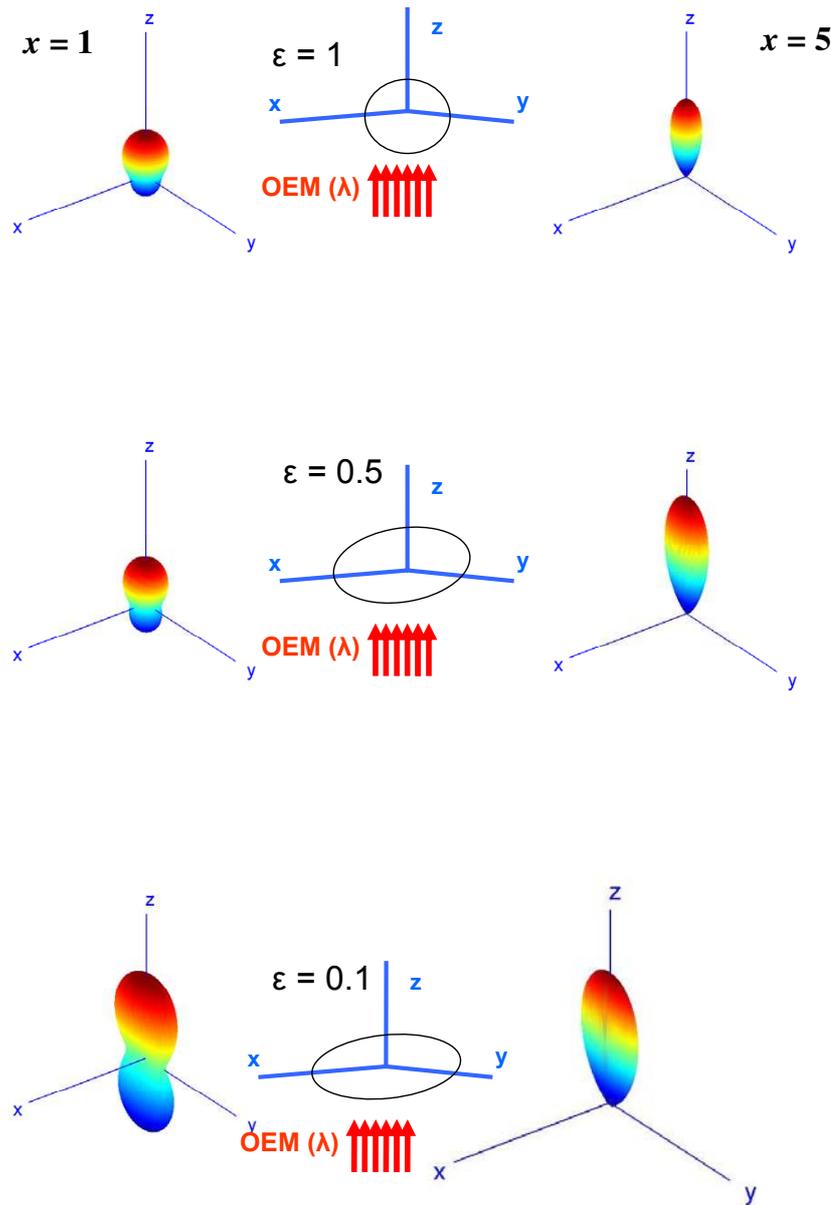


FIGURE 2.4 – Influence du facteur de forme sur la fonction de phase d’une particule de forme sphéroïdale (prolate) d’indice de réfraction $m = 0.66$, de paramètre de taille $x = 1$ (gauche) et $x = 5$ (droite) à incidence normale.

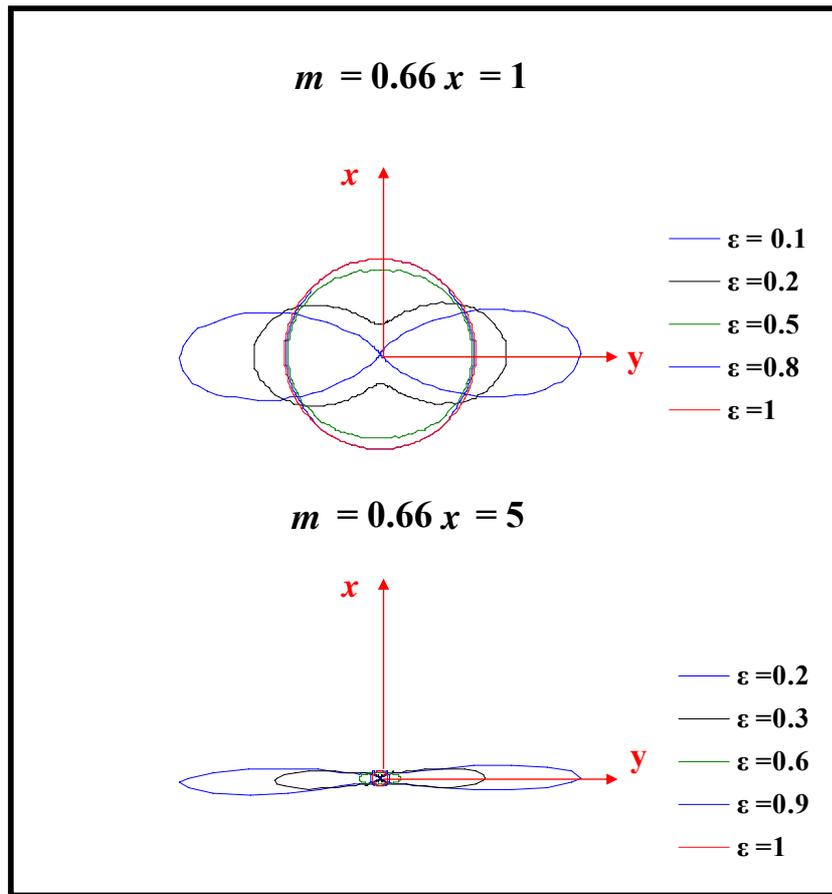


FIGURE 2.5 – Fonctions de phase de la figure 2.4 dans le plan Oxy pour différents paramètres de taille

Les temps de calculs observés varie en fonction de l'indice de réfraction relatif m , du facteur de forme ϵ et du paramètre de taille x . Globalement, les temps de calculs sont de l'ordre de la minute pour les faibles paramètres de taille ($x < 1$) quelque soit le facteur de forme ϵ . Pour les paramètres de taille plus élevés, les temps de calculs dépendent du facteur de forme. Typiquement, le temps de calcul est de quelques heures pour des facteurs de forme $\epsilon < 0.5$ et il peut atteindre une journée entière pour des facteurs de forme $\epsilon > 0.5$. Il est à noter que lorsque l'indice de réfraction relatif $m \geq 1$, on observe des problèmes de convergence du code de calcul. Pour y remédier, il est nécessaire de réduire les critères de convergence. Enfin, on peut ajouter que le temps de calcul s'allonge nettement lorsque l'indice de réfraction relatif $m \geq 1$.

2.2.4 Etude de la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$

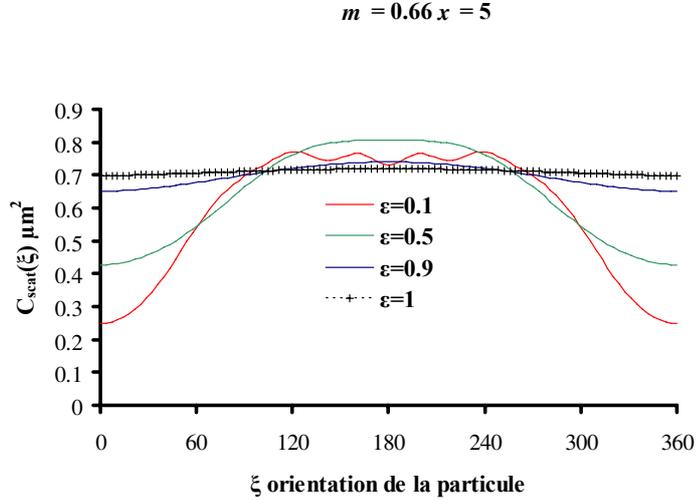


FIGURE 2.6 – Evolution de la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$ en fonction de l'orientation ξ de la particule pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$ et un paramètre de $x = 1$ a) et $x = 5$ b).

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons aux propriétés de la section efficace de dispersion en fonction des paramètres adimensionnels : x paramètre de taille de la particule, ε facteur de forme et ξ orientation de la particule dans le repère de la particule sur la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$.

La figure 2.6 représente la variation de la section efficace de dispersion en fonction de l'orientation de la particule ξ pour $m = 0.66$, $x = 1$ et $x = 5$. On fait varier le facteur de forme ($\varepsilon = 0.1, \dots, 1$). On observe dans les deux cas que la section efficace de dispersion possède deux extrêmes : un minimum en $\xi = 0$ et $\xi = 180^\circ$ et un maximum en $\xi = 90^\circ$. Cela signifie que la particule disperse un maximum d'énergie à incidence normale. La section efficace de dispersion tend vers une constante lorsque le facteur de forme ε tend vers 1. Lorsque la particule est sphérique, la section efficace de dispersion est la même en raison de la symétrie sphérique quelque soit l'orientation de la particule. La section efficace dépend ainsi des propriétés du milieu x paramètre de taille des particules, m indice de réfraction relatif, et ε facteur de forme des particules mais également de l'orientation ξ de la particule (voir figure 2.6).

Nous décidons d'étudier dans un deuxième temps la section efficace adimensionnée pour une orientation ξ donnée par la section projetée $G(\xi)$. Le but recherché est de s'abs-

traire de l'influence de l'orientation ξ .

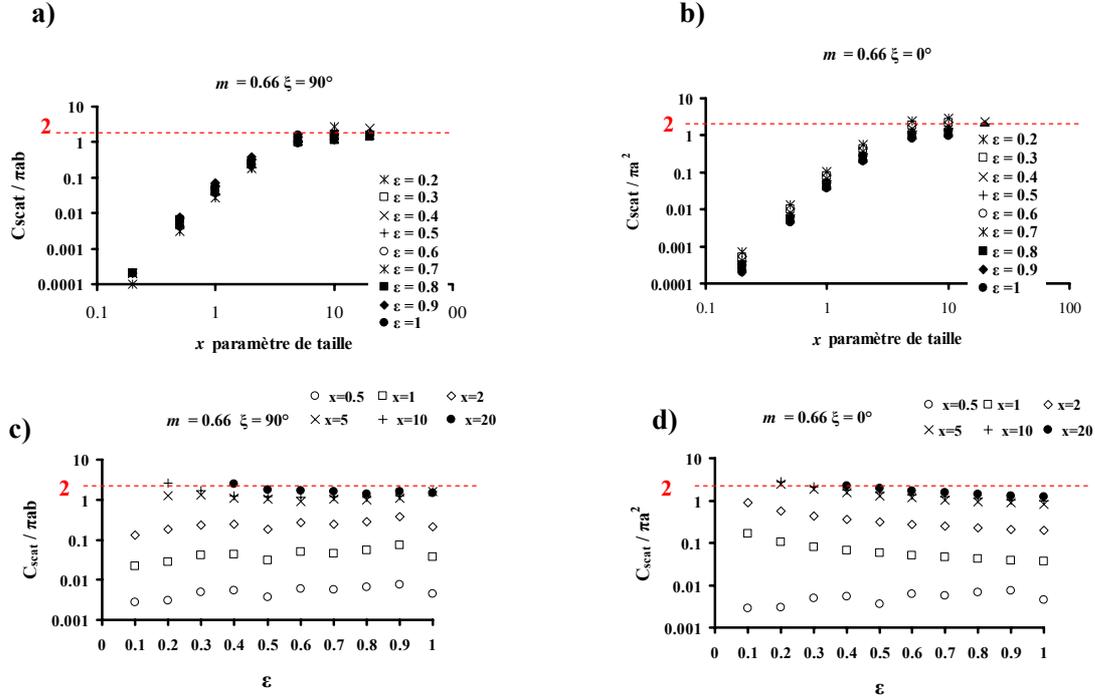


FIGURE 2.7 – a) Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du paramètre de taille x à incidence normale $\xi = 90^\circ$, b) Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du paramètre de taille x à incidence oblique $\xi = 0^\circ$, c) Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du facteur de forme ϵ à incidence normale $\xi = 90^\circ$, d) Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du facteur de forme. ϵ à incidence oblique

La figure 2.7a) représente l'évolution de la section efficace adimensionnée pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$ à incidence normale $\xi = 90^\circ$, pour différents facteurs de forme en fonction du paramètre de taille x . On constate que la section efficace augmente lorsque le paramètre de taille augmente. Il en est de même en incidence parallèle sur la figure 2.7b). Vers les grandes tailles, on observe sur ces deux figures que la section efficace adimensionnée oscille et tend à se stabiliser vers la valeur 2. Cette observation a déjà été faite par Asano [2], c'est ce qu'on appelle le paradoxe d'extinction. Van de Hulst [89] démontre que dans la limite de l'optique géométrique, c'est-à-dire lorsque la taille des particules est très grande par rapport à la longueur d'onde, la section efficace d'extinction C_{ext} est égale à 2 fois la section projetée dans la direction de l'onde incidente. Il est à noter que cette limite de l'optique géométrique est atteinte pour des paramètres de taille

$x \geq 10$, c'est-à-dire des particules 2 fois supérieure à la longueur d'onde environ.

Les figures 2.7c) et d) représente l'évolution de la section efficace adimensionnée pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$ à incidence parallèle $\xi = 0^\circ$, pour différents paramètres de taille x en fonction du facteur de forme. La section efficace adimensionnée reste constante quelque soit le facteur de forme ε : la déformation à volume constant conserve donc l'énergie dispersée par la particule. Lorsque le paramètre de taille x de la particule augmente la section efficace de dispersion adimensionnée augmente : les particules les plus grandes dispersent plus d'énergie que les particules de petite taille. Cependant, sur ces figures, nous observons tout de même une dépendance en ξ de la section efficace C_{scat} adimensionnée (on est en échelle logarithmique). Par conséquent, nous décidons de nous intéresser à la section efficace moyennée sur tous les angles ξ .

2.2.5 Etude de la section efficace de dispersion moyenne $\langle C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) \rangle$

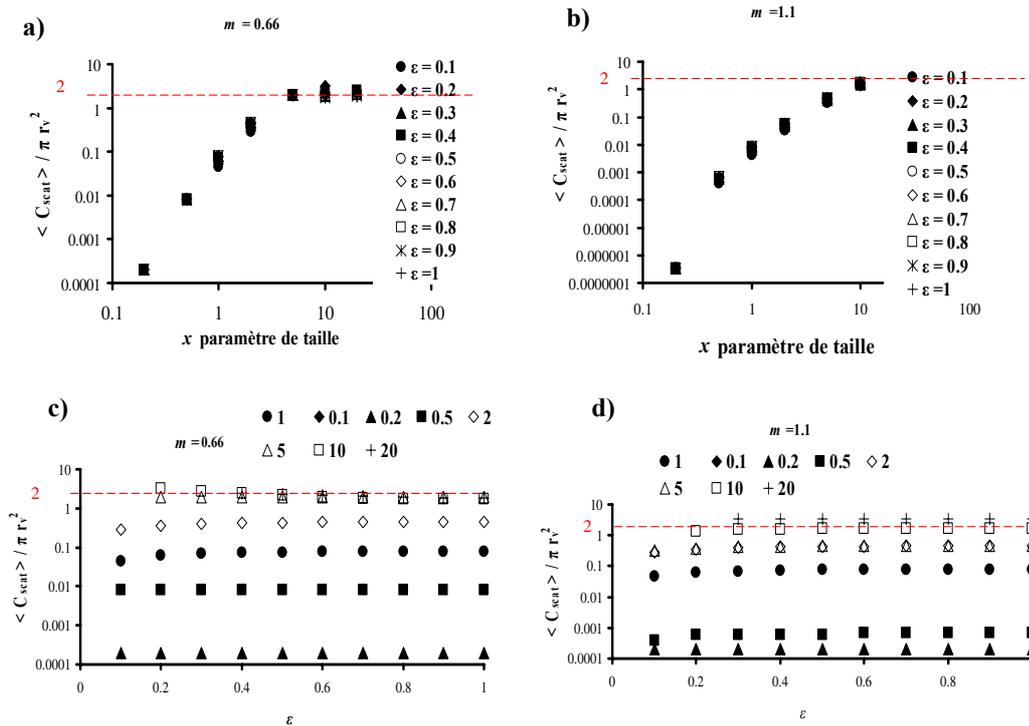


FIGURE 2.8 – a) Evolution de la section efficace de dispersion moyenne adimensionnée en fonction du paramètre de taille x pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$, b) Evolution de la section efficace de dispersion moyenne adimensionnée en fonction du paramètre de taille x pour une particule d'indice de réfraction $m = 1.1$.

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser à présent à la section efficace moyennée dans l'espace et définie par la relation (2.42) :

$$\langle C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) \rangle = \frac{1}{2} \int_0^\pi C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) \sin(\xi) d\xi \quad (2.42)$$

On normalise cette fois-ci la section efficace de dispersion moyennée sur tous les angles ξ avec le rayon de la sphère de volume équivalent r_v .

$$\langle Q_{scat}(\xi) \rangle = \frac{\langle C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi) \rangle}{\pi r_v^2} \quad (2.43)$$

Les figures 2.8a) et b) représentent l'évolution de la section efficace adimensionnée moyenne pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$ et pour une particule d'indice de réfraction $m = 1.1$ pour différents facteurs de forme en fonction du paramètre de taille x . On constate que la section efficace adimensionnée moyenne augmente lorsque le paramètre de taille augmente. Vers les grandes tailles, on observe sur ces deux figures que la section efficace adimensionnée tend à se stabiliser vers la valeur 2 comme précédemment. Cependant, contrairement, à ce que nous avons observé sur les figures 2.7a) et b), il n'y a plus de dépendance vis-à-vis de l'angle ξ . La moyenne sur tous les angles, nous permet d'obtenir la section efficace moyenne du milieu isotrope équivalent dans lequel toutes les particules sont orientées aléatoirement.

Les figures 2.8c) et d) représentent l'évolution de la section efficace adimensionnée en fonction du facteur de forme ε pour différents paramètres de taille x . On observe que la section efficace adimensionnée reste constante quelque soit le facteur de forme ε . On observe également que la section efficace augmente comme sur les figures 2.7a) et b) lorsque le paramètre de taille x la particule augmente. Les conclusions sont donc les mêmes que précédemment, les particules les plus grandes dispersent plus d'énergie que les particules de petites tailles et la déformation d'une particule à volume constant permet de conserver l'énergie dispersée par la particule.

2.3 Conclusion

Ce chapitre concerne l'étude de l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule anisotrope seule. Les particules considérées sont des ellipsoïdes axisymétriques, allongées et non-absorbantes.

Lorsqu'une onde électromagnétique rencontre une particule, il y a dispersion de l'énergie autour de la particule. La distribution d'énergie dans l'espace est caractérisée par la

probabilité de dispersion $p^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi)$, la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$ et le facteur d'anisotropie $g(\xi)$. Ces grandeurs dépendent des paramètres adimensionnés : x le paramètre de taille, m l'indice de réfraction relatif, ε le facteur de forme de la particule et de l'orientation ξ de la particule par rapport à la direction de l'onde incidente.

Nous avons fait un état de l'art des méthodes existantes à l'heure actuelle permettant de résoudre l'interaction entre une onde électromagnétique plane et nous avons choisi d'utiliser la méthode la plus précise et la plus rapide à savoir la méthode T-matrix. Enfin, nous avons terminé ce chapitre en étudiant l'influence de l'orientation de la particule sur la fonction de phase et sur la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}$. Nous avons observé que la section efficace de dispersion, comme toutes les grandeurs de dispersion, dépendait de l'orientation de la particule contrairement à ce que l'on trouve dans la littérature. La moyenne sur tous les angles permet d'obtenir les grandeurs de dispersion du milieu isotrope équivalent dans lequel toutes les particules sont orientées aléatoirement.

A présent, nous allons nous intéresser à l'influence de la forme, de la taille et du rapport d'indice de réfraction sur l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une collection de particules sphéroïdales toutes orientées dans la même direction.

Chapitre 3

Transport incohérent de lumière dans une collection de particules anisotropes

Sommaire

3.1	Bibliographie sur la diffusion de lumière en milieu anisotrope	62
3.2	Simulations de Monte Carlo	66
3.3	Transport d'intensité moyenne	78
3.4	Etude de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion	81
3.5	Résultats des simulations de Monte Carlo	90
3.6	Inversion du facteur de forme	101
3.7	Conclusion	101

Lorsqu'on éclaire un milieu constitué d'une collection de particules, la lumière se propage dans le milieu et on parle alors du phénomène de diffusion de lumière. Ce phénomène est particulièrement efficace lorsque le milieu est turbide. Par ailleurs, dans un milieu turbide, l'orientation partielle ou globale d'une collection de particules anisotropes (fibres, globules sous cisaillement, émulsions,...) provoque une anisotropie du transport de lumière [1, 7, 43, 45]. L'objectif étant de se servir de cette propriété pour caractériser l'orientation et/ou la déformation des particules anisotropes, il est donc nécessaire d'étudier ce phénomène de diffusion et de trouver le lien qui relie l'anisotropie du transport de lumière à l'anisotropie et l'orientation des objets.

Dans ce chapitre, nous allons à présent nous intéresser au transport incohérent de lumière dans une collection de particules anisotropes en nous plaçant dans le cas où les particules sont toutes orientées (afin de s'abstraire dans un premier temps de l'influence de l'orientation sur le transport de lumière). L'application concerne par exemple des particules qui auront la possibilité de se déformer sous cisaillement. En se déformant, nous

supposerons que les particules prennent la forme d'un sphéroïde allongé (prolate).

La deuxième partie du chapitre sera consacrée à la résolution de l'équation du transfert radiatif dans une collection de particules anisotropes à l'aide des simulations de Monte Carlo. Nous introduirons pour ce faire une nouvelle grandeur qui est la longueur de transport moyenne et qui correspond à la longueur de transport du milieu isotrope équivalent dans lequel toutes les particules sont orientées aléatoirement.

La dernière partie de ce chapitre sera dédiée à l'analyse des simulations de Monte Carlo. Nous verrons de quelle façon il est possible de relier l'anisotropie du transport incohérent de lumière à l'anisotropie des objets.

3.1 Bibliographie sur la diffusion de lumière en milieu anisotrope

Depuis un certain nombre d'années, l'intérêt pour le phénomène de diffusion multiple de lumière dans un milieu anisotrope n'a cessé de croître. Le problème de la résolution de l'équation du transfert radiatif régissant ce phénomène s'est alors tout naturellement posé. Il existe deux approches principales permettant d'aborder le transfert radiatif dans un tel milieu.

La première approche consiste à considérer une solution approchée sous la forme d'une équation de diffusion. Nous avons en effet montré qu'une telle approximation est excellente en milieu isotrope. Pour prendre en compte l'anisotropie du milieu, le coefficient de diffusion D n'est plus une constante mais un tenseur de diffusion \overleftrightarrow{D} (relation (3.1)) :

$$(\nabla \cdot \overleftrightarrow{D}) \cdot \nabla \phi(\vec{r}) - \frac{1}{l_a} \phi(\vec{r}) = S(\vec{r}) \quad (3.1)$$

Le tenseur de diffusion \overleftrightarrow{D} est défini par la relation (3.2) :

$$\overleftrightarrow{D} = \begin{pmatrix} D_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & D_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & D_{zz} \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

Où les coefficients du tenseur \overleftrightarrow{D} sont les coefficients de diffusion suivant les directions principales.

Pour un milieu anisotrope ayant un axe de symétrie (l'axe principal d'anisotropie) deux coefficients de diffusion sont nécessaires (un coefficient suivant chaque direction principale) : D_{\parallel} coefficient de diffusion parallèle à l'axe de symétrie du milieu et D_{\perp} coefficient de diffusion perpendiculaire à l'axe de symétrie du milieu. Wiersma *et al.* [97] choisit cette approche pour étudier le phénomène de diffusion multiple anisotrope dans un milieu constitué de cristaux liquides nématiques. On retrouve également cette approche dans les travaux de Kao *et al.* [42] également sur les cristaux liquides nématiques. Enfin Johnson *et al.* [39] se servent de cette méthode pour étudier la diffusion de lumière anisotrope et mesurer les coefficients de diffusion dans un milieu constitué de phosphide gallium macroporeux faiblement absorbant et dans un autre milieu constitué de fibres plastiques parfaitement orientées [40]. Johnson *et al.* résolvent l'équation de diffusion (relation 3.1) et obtiennent une solution analytique de la fluence $\phi(\vec{r})$. Ensuite, ils mesurent la fluence et la comparent au modèle analytique pour déterminer les coefficients de diffusion D_{xx} , D_{yy} et D_{zz} .

Ces études s'inspirent fortement des travaux menés par Sapienza *et al.* [77] et Van Tiggelen *et al.* [90] sur le cône cohérent de lumière rétrodiffusée. En effet, on observe une anisotropie du transport cohérent de lumière dans le cas des milieux anisotropes comme les cristaux liquides nématiques. Dans ces études [77, 90], on introduit les longueurs de transport parallèle l_{\parallel} et perpendiculaire l_{\perp} pour expliquer l'anisotropie du cône cohérent de lumière sachant que $D_{\parallel} = 1/3v_{\parallel}l_{\parallel}$ et $D_{\perp} = 1/3v_{\perp}l_{\perp}$. Les paramètres v_{\parallel} et v_{\perp} correspondent aux vitesses de propagation parallèle et perpendiculaire.

La seconde approche est celle développée par Heino *et al.* [34] qui propose une approximation de diffusion anisotrope pour résoudre l'équation du transport radiatif dans un milieu constitué d'un mélange de particules sphériques et de cylindres de dimension infinie tous orientés dans la même direction. Il résout cette équation à l'aide de deux méthodes : la première est basée sur les simulations de Monte Carlo et la seconde est une méthode combinant la méthode des éléments finis et la méthode de l'élément de frontière (Boundary Element Method). Il s'avère alors que les deux méthodes donnent des résultats similaires.

Kienle *et al.* [44] propose une étude comparative entre la première approche et deux approches basées sur des simulations de Monte Carlo. Ainsi, il résout l'équation de diffusion anisotrope (relation (3.1)) avec un tenseur de diffusion anisotrope. La seconde technique consiste à effectuer des simulations de Monte Carlo du transport incohérent de

lumière dans un milieu constitué d'un mélange de particules cylindriques et de particules sphériques. L'anisotropie du transport provient dans leurs travaux de l'anisotropie de la section efficace de dispersion. La troisième technique consiste à réaliser des simulations de Monte Carlo du transport incohérent de lumière dans un milieu constitué de cylindres infinis tous orientés dans la même direction et de particules sphériques. L'interaction entre les photons et les cylindres est décrite par la résolution des équations de Maxwell. Kienle *et al.* [44] comparent alors les trois méthodes et observent que les résultats des simulations de Monte Carlo diffèrent de ceux obtenus avec la résolution de l'équation de diffusion anisotrope. Ces différences s'accroissent d'autant plus que le milieu est anisotrope. Berdnik *et al.* [11] s'intéressent au phénomène de diffusion de lumière dans un milieu constitué de particules sphéroïdales toutes orientées suivant la même direction dans le cas où le faisceau incident fait un angle θ_0 avec la surface (voir figure 3.1). Ils résolvent l'équation du transport radiatif et calculent la luminance aux frontières du milieu. Les grandeurs de dispersion sont calculées à l'aide de l'approximation de Rayleigh-Gans et dépendent toutes de l'orientation ξ de la particule.

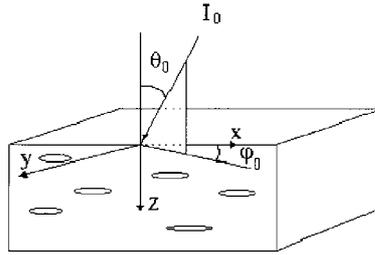


FIGURE 3.1 – Milieu constitué de particules sphéroïdales orientées suivant la même direction Berdnik *et al.* [11]

Toutes les études qui ont été citées jusqu'à présent considéraient la longueur de dispersion l_s comme constante, à l'exception de Kienle *et al.* [44] et de Berdnik *et al.* [11]. Or comme nous l'avons démontré précédemment dans le chapitre 1 dans un milieu constitué de particules anisotropes, les grandeurs de dispersion dépendent de l'angle ξ entre l'axe d'orientation de la particule et la direction du photon incident. Ainsi, la relation (3.3) est l'équation considérée du transfert radiatif pour un milieu constitué de particules anisotropes :

$$\vec{s} \cdot \vec{\nabla} L(\vec{r}, \vec{s}) = - \left(\frac{1}{l_s(\xi)} + \frac{1}{l_a} \right) L(\vec{r}, \vec{s}) + \frac{1}{l_s(\xi)} \int_{4\pi} p(\vec{s}, \vec{s}') L(\vec{r}, \vec{s}') d\Omega' + Q(\vec{r}, \vec{s}) \quad (3.3)$$

Le terme $p(\vec{s}, \vec{s}')$ désigne la fonction de phase, c'est-à-dire la probabilité qu'une onde incidente dans la direction \vec{s}' soit dispersée dans la direction \vec{s} et $Q(\vec{r}, \vec{s})$ représente la source interne (les photons entrant dans le milieu). Le terme $l_s(\xi)$ correspond à la longueur de dispersion qui est la distance moyenne entre deux événements de dispersion. La longueur d'absorption l_a désigne la distance moyenne parcourue par un photon avant qu'il ne soit absorbé par le milieu et elle est considérée comme isotrope en moyenne. Cette formulation (3.3) de l'équation du transfert radiatif se retrouve dans la référence [11]. Dans cette étude, nous choisissons de résoudre l'équation du transfert radiatif au moyen de simulations de Monte Carlo dans le cas d'un milieu constitué particules qui se déforment progressivement sous l'influence d'un champ extérieur (prennant ainsi la forme d'un prolate) toutes orientées dans la même direction.

Contrairement à Berdnik *et al.* [11], nous allons chercher la limite diffusive de l'équation du transfert radiatif en résolvant numériquement l'équation (3.3) et en utilisant les équations de Maxwell pour calculer la fonction de phase $p(\vec{s}, \vec{s}')$. Nous proposons ainsi une approche, la plus rigoureuse possible afin d'étudier dans cette première partie uniquement l'influence du facteur de forme $\varepsilon = a/b$ (a est la longueur demi-petit axe et b est la longueur demi-grand axe) sur la limite diffusive du transport incohérent de lumière. On rappelle que l'objectif est de déterminer le lien entre l'anisotropie des objets (en l'occurrence dans ce cas précis le facteur de forme) et l'anisotropie du transport incohérent de lumière. Nous nous intéresserons également à l'influence de l'indice de réfraction relatif m et du paramètre de taille x .

Cependant, l'utilisation de la méthode de Monte Carlo nécessite l'utilisation d'une longueur caractéristique permettant de normaliser toutes les distances. Cette normalisation validée dans les travaux de Mougel [65] et Dillet [24, 23] permet de s'abstraire de l'influence de la fraction volumique en particules φ_v . Or, dans un milieu anisotrope, toutes les grandeurs dépendent de l'orientation de la particule par rapport à la direction de propagation du photon. Par conséquent, la grandeur caractéristique qui va nous permettre de normaliser les distances dans nos simulations de Monte Carlo est la longueur de transport moyenne définie par la relation 3.4. Il s'agit de la longueur de transport du milieu isotrope équivalent. Ce milieu isotrope équivalent est un milieu dans lequel toutes les particules sont orientées aléatoirement.

$$\begin{aligned} \langle l_{\text{TR}}^{x,m,\varepsilon,\varphi_v} \rangle &= \left\langle \frac{l_s^{x,m,\varepsilon,\varphi_v}(\xi)}{1 - g^{x,m,\varepsilon}(\xi)} \right\rangle = \frac{4\pi r_v^3}{3\varphi_v \langle C_{\text{scat}}^{x,m,\varepsilon}(\xi)[1 - g^{x,m,\varepsilon}(\xi)] \rangle} \\ &= \frac{8\pi r_v^3}{3\varphi_v \int_0^\pi C_{\text{scat}}^{x,m,\varepsilon}(\xi)[1 - g^{x,m,\varepsilon}(\xi)] \sin(\xi) d\xi} \end{aligned} \quad (3.4)$$

Afin de résoudre l'équation du transfert radiatif dans un milieu anisotrope, nous avons développé un code de Monte Carlo dans lequel la longueur de transport moyenne joue un rôle fondamentale de normalisation. Le prochain paragraphe sera consacré au détail de la méthode.

3.2 Simulations de Monte Carlo

3.2.1 Conventions de repères

Rappels sur les angles d'Euler

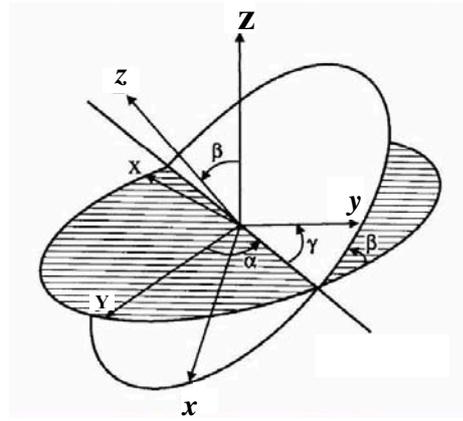


FIGURE 3.2 – Transformation du repère global du laboratoire L $\{X, Y, Z\}$ au repère local de la particule P $\{x, y, z\}$

Pour décrire l'interaction entre une onde électromagnétique et une particule non-sphérique, il est essentiel de bien définir les repères dans lesquels les calculs vont être effectués. Ainsi, le repère P $\{x, y, z\}$ est le repère local lié à la particule tandis que le repère L $\{X, Y, Z\}$ est le repère global de référence du laboratoire. Les trois angles d'Euler (α, β, γ) définissent l'orientation de la particule par rapport au repère du laboratoire comme on peut le voir sur la figure 3.2.1.

- Une première rotation autour de l'axe OZ permet d'obtenir l'angle $\alpha \in [0, 2\pi)$, on obtient alors la ligne des noeuds qui est la ligne formée par l'intersection entre les

deux plans XY et xy ,

- Une seconde rotation de l'axe Oz autour de la ligne des noeuds permet d'obtenir l'angle $\beta \in [0, 2\pi]$,
- Une troisième rotation de la ligne des noeuds autour de l'axe Oz permet d'obtenir l'angle $\gamma \in [0, 2\pi]$.

Calcul de la matrice de passage du repère du laboratoire au repère de la particule

La matrice $M(\alpha, \beta, \gamma)$ est la matrice permettant de faire passer un vecteur \vec{U}^L du repère du laboratoire vers le repère de la particule : $\vec{U}^P = M(\alpha, \beta, \gamma) \cdot \vec{U}^L$. La relation (3.5) permet de calculer cette matrice de passage en fonction des angles d'Euler α, β, γ :

$$M(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{bmatrix} \cos\alpha\cos\beta\cos\gamma - \sin\alpha\sin\gamma & \sin\alpha\cos\beta\cos\gamma + \cos\alpha\sin\gamma & -\sin\beta\cos\gamma \\ -\cos\alpha\cos\beta\sin\gamma - \sin\alpha\cos\gamma & -\sin\alpha\cos\beta\sin\gamma + \cos\alpha\cos\gamma & -\sin\beta\sin\gamma \\ \cos\alpha\sin\beta & \sin\alpha\sin\beta & \cos\beta \end{bmatrix} \quad (3.5)$$

Pour une particule axisymétrique, il est judicieux de prendre son axe de symétrie confondu avec l'axe Oz du repère de la particule. En effet, dans ce cas précis, la dépendance vis-à-vis de l'angle γ disparaît et l'on peut poser $\gamma = 0$ et ainsi, la relation (3.6) permet de calculer la matrice de passage $M(\alpha, \beta)$:

$$M(\alpha, \beta) = \begin{bmatrix} \cos\alpha\cos\beta & \sin\alpha\cos\beta & -\sin\beta \\ -\sin\alpha & \cos\beta & 0 \\ \cos\alpha\sin\beta & \sin\alpha\sin\beta & \cos\beta \end{bmatrix} \quad (3.6)$$

Dans le cas particulier d'une particule axisymétrique orientée suivant l'axe Ox du laboratoire, la relation (3.6) donne la matrice de passage du repère du laboratoire vers le repère de la particule. En effet, dans ce cas-là, la particule est orientée de sorte que : $\alpha = \pi$ et $\beta = \pi/2$.

$$M(\alpha = \pi, \beta = \pi/2) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & -1 \\ 0 & -1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (3.7)$$

3.2.2 Algorithme de Monte Carlo

Positionnement du problème

Les travaux de Mougel [65] et Dillet [24] ont montré qu'il était possible de relier le phénomène de diffusion de lumière à l'événement local de dispersion, c'est-à-dire l'interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule isolée. La longueur de transport l_{TR} qui est la distance moyenne parcourue par un photon avant que celui-ci perde l'information sur la direction incidente dans le milieu permet de faire le lien entre l'événement local de dispersion et le phénomène de diffusion multiple de lumière. La méthode employée pour construire ce phénomène à partir de l'événement de dispersion est la méthode de Monte Carlo [72, 94]. En clair, les simulations de Monte Carlo permettent de construire le phénomène de diffusion à partir l'équation du transfert radiatif incluant l'événement de dispersion régi par les équations de Maxwell. Grâce à cette approche, les travaux de Mougel [65] sur le transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu isotrope permettent en particulier de déterminer la taille moyenne en volume des particules r_v connaissant l'indice de réfraction relatif m du milieu et la fraction volumique en particules φ_v . Les travaux de Dillet [24] sur le transport incohérent de lumière polarisée dans un milieu isotrope permettent, connaissant l'indice de réfraction relatif m du milieu, de déterminer la fraction volumique en particules φ_v ainsi que la taille moyenne en volume des particules r_v . Nous allons donc utiliser ces simulations de Monte Carlo pour cette fois-ci déterminer l'anisotropie des objets. En clair, nous allons construire le phénomène de diffusion de lumière anisotrope en partant de l'événement local de dispersion sur une particule anisotrope afin de déterminer faire le lien entre la diffusion de lumière anisotrope et l'anisotropie des objets isolés.

Description de la méthode de Monte Carlo

La méthode de Monte Carlo est l'une des techniques les plus puissantes permettant de modéliser le transport incohérent de lumière dans un milieu dispersé [72, 94, 10, 94]. Les particules sont considérées comme réparties de manière aléatoire dans l'espace. Les particules anisotropes de forme sphéroïdale (prolate) sont toutes orientées suivant l'axe

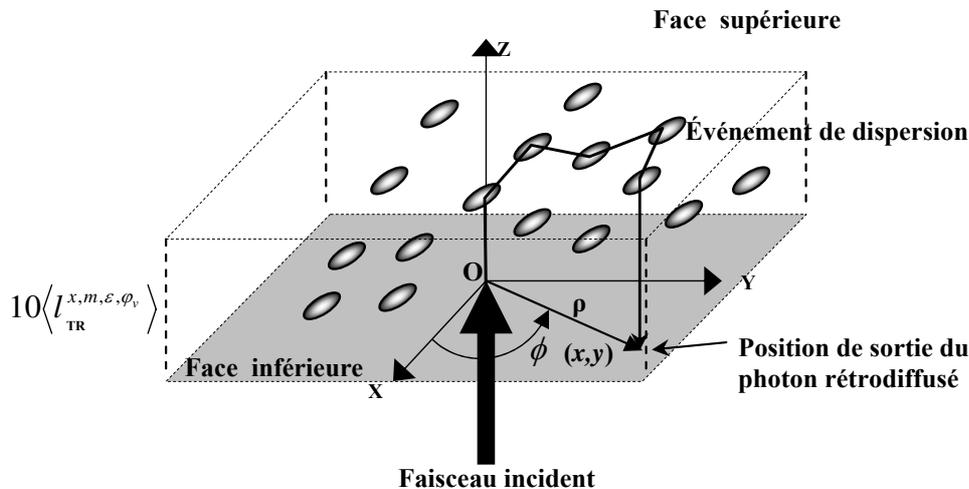


FIGURE 3.3 – Propagation d'un photon dans un milieu anisotrope

OX. On représente le faisceau lumineux par un grand nombre de photons. Une succession d'événements de dispersion se produisent dans le milieu lorsque les photons rencontrent les particules. On décrit l'événement local de dispersion à l'aide de la méthode T-matrix. Les photons se propagent dans le milieu jusqu'à ce qu'ils soient rétrodiffusés ou transmis (voir figure 3.3). Le calcul consiste donc à envoyer un photon verticalement, à suivre son cheminement après chaque événement de dispersion et à récupérer sa position à la sortie du milieu.

Chaque événement de dispersion nécessite de connaître la direction incidente du photon $(\theta_{inc}, \phi_{inc})$ ainsi que l'angle ξ entre cette direction incidente et l'axe d'orientation connu de la particule. Il nous faut donc définir correctement les repères dans lesquels les calculs vont être effectués.

Définitions des repères local et global

On suit la propagation des photons dans le repère global du laboratoire. Ainsi, les photons rencontrent les particules avec une direction incidente de support unitaire \vec{u}_L^{inc} lors de leur déplacement dans le milieu. L'angle entre la direction du photon incident et l'axe d'orientation de la particule définit l'angle ξ . Le vecteur unitaire \vec{u}_L^{objet} définit le vecteur orientation de la particule dans le repère du laboratoire. La relation (3.8) permet de calculer l'angle ξ en fonction de ces deux vecteurs :

$$\xi = \cos^{-1}(\vec{u}_L^{inc} \cdot \vec{u}_L^{objet}) \quad (3.8)$$

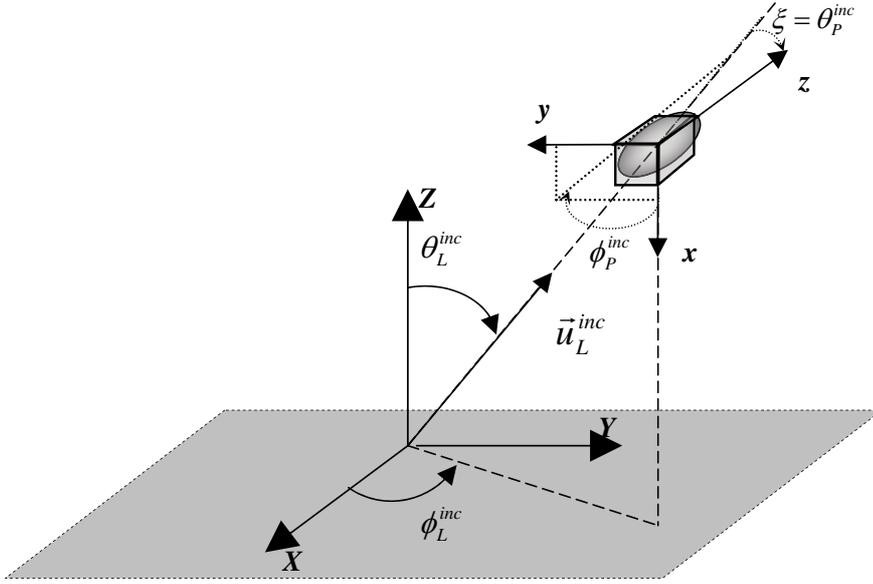


FIGURE 3.4 – Conventions de repères pour les axes et les angles

Comme toutes les particules sont orientées suivant l'axe OX du repère global du laboratoire alors on obtient la relation (3.9).

$$\xi = \cos^{-1}(-u_X^{inc}) \quad (3.9)$$

avec u_X^{inc} composante suivant l'axe OX du vecteur \vec{u}_L^{inc} .

Cependant, le calcul de la fonction de phase de la particule s'effectue dans le repère de la particule. Il nous faut donc définir toutes les directions dans ce repère. La matrice de passage précédemment calculée dans le paragraphe 3.10 va donc nous permettre d'effectuer le passage du repère global du laboratoire vers le repère local de la particule.

$$\vec{u}_P^{inc} = \mathbf{M} \cdot \vec{u}_L^{inc} \quad (3.10)$$

Où le vecteur \vec{u}_P^{inc} est la direction du photon incident dans le repère local de la particule. Grâce à la relation (3.7), nous obtenons la relation (3.11).

$$\begin{bmatrix} u_x^{inc} \\ u_y^{inc} \\ u_z^{inc} \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} u_Z^{inc} \\ u_Y^{inc} \\ u_X^{inc} \end{bmatrix} \quad (3.11)$$

Et ainsi, on obtient grâce à la relation (3.12), la direction incidente $(\theta_P^{inc}, \phi_P^{inc})$ dans le repère de la particule :

$$\begin{aligned} \theta_P^{inc} &= \cos^{-1}(-u_X^{inc}) = \xi, \\ \phi_P^{inc} &= \tan^{-1} \frac{u_Y^{inc}}{u_Z^{inc}} \end{aligned} \quad (3.12)$$

Après chaque événement local de dispersion, le photon est dispersé dans une direction $(\theta_P^{scat}, \phi_P^{scat})$. Nous allons donc voir de quelle manière cette direction est déterminée.

Principe du tirage aléatoire sur une fonction de probabilité

La méthode de Monte Carlo permet de simuler des processus aléatoires en utilisant des suites de nombres pseudo-aléatoires. Un processus aléatoire est décrit par une variable aléatoire x caractérisée par sa fonction de distribution $p(x)$. Cette fonction de distribution peut être simulée par tirages aléatoires de nombres aléatoires uniformément distribués entre 0 et 1. Il existe différentes méthodes d'échantillonnage de la variable aléatoire.

méthode de réjection sur une fonction de probabilité à une variable aléatoire

Cette méthode est employée lorsqu'il n'est pas possible d'inverser la fonction de distribution cumulative $F(x) = \int_{x_{min}}^x p(\xi) d\xi$. Elle consiste à tirer uniformément d'un nombre aléatoire ξ_1 dans l'intervalle $[0; 1]$ et à déterminer par une règle de proportionnalité affine, la variable aléatoire correspondante $x = x_{min} + \xi_1(x_{max} - x_{min})$ dans le domaine $[x_{min}; x_{max}]$ de la valeur aléatoire. Ensuite pour que la variable aléatoire x soit uniformément distribuée selon la fonction de distribution $p(x)$, un second tirage d'un nombre aléatoire ξ_2 uniformément distribué dans l'intervalle $[0; 1]$ permet de retenir x si ξ_2 est inférieur ou égal à $p(x)/\max(p(x))$ et de la rejeter sinon.

méthode de réjection sur une fonction de probabilité à plusieurs variables aléatoires

Lorsque la fonction de probabilité possède $n > 1$ dimensions (n variables), la méthode consiste à effectuer le tirage de $n+1$ nombres aléatoires. Ainsi, pour une fonction

de distribution à deux variables $p(x, y)$, on effectue donc un tirage de trois nombres aléatoires ξ_1 , ξ_2 et ξ_3 tirés aléatoirement et uniformément sur l'intervalle $[0; 1]$. On pose alors $x = x_{min} + \xi_1(x_{max} - x_{min})$ dans le domaine $D_1 = [x_{min}; x_{max}]$ et $y = y_{min} + \xi_2(y_{max} - y_{min})$ dans le domaine $D_2 = [y_{min}; y_{max}]$. Ensuite pour que les variables aléatoires (x, y) soient uniformément distribuées selon la fonction de distribution $p(x, y)$, nous retenons les variables aléatoires (x, y) si ξ_3 est inférieur ou égal à $p(x, y)/\max(p(x, y))$ et de la rejeter sinon.

Tirage aléatoire sur un événement de dispersion

Un événement de dispersion est défini par la connaissance de l'orientation ξ de la particule dans le repère global du laboratoire, le choix d'une direction de propagation (ou de dispersion) $(\theta^{scat}, \phi^{scat})$ et d'une distance de propagation d qui est la distance moyenne entre deux événements de dispersion.

On considère que la probabilité de présence d'un photon $p^{\varepsilon, x, m}(\theta_i, \theta_s, \phi_s)$ dans une direction donnée après avoir interagi avec une particule est proportionnelle à l'intensité dispersée dans cette direction donnée. Ainsi, pour effectuer le tirage sur les angles de dispersion $(\theta^{scat}$ et $\phi^{scat})$, on commence d'abord par calculer la fonction de phase de la particule $M_{11}^{x, m, \varepsilon}(\xi, \theta, \phi)$ que l'on normalise par son maximum. On a vu dans le paragraphe 2.2 que les photons sont dispersés de manière privilégiée vers l'avant, c'est-à-dire dans la direction incidente du photon. Par conséquent le maximum de la fonction de phase vaut $M_{11}^{x, m, \varepsilon}(\xi, \xi, 0)$. La relation (3.13) définit la fonction de phase normalisée.

$$p^{x, m, \varepsilon}(\xi, \theta, \phi) = \frac{M_{11}^{x, m, \varepsilon}(\xi, \theta, \phi)}{M_{11}^{x, m, \varepsilon}(\xi, \xi, 0)} \quad (3.13)$$

A présent, on effectue le tirage aléatoire sur une fonction de probabilité en tirant deux angles test $(\theta^{test}$ et $\phi^{test})$ sur une sphère homogène :

- Tirage aléatoire uniforme de $\theta^{test} \in [0; \pi[$ avec $\zeta_1 \in [0; 1[$

$$\theta^{test} = \cos^{-1}(1 - 2\zeta_1) \quad (3.14)$$

- Tirage aléatoire uniforme de $\phi^{test} \in [0; 2\pi[$ avec $\zeta_2 \in [0; 1[$

$$\phi^{test} = 2\pi\zeta_2 \quad (3.15)$$

On vérifie ensuite la probabilité de diffusion dans la direction test tirée aléatoirement en tirant à nouveau un troisième nombre aléatoire $\zeta_3 \in [0; 1[$. Si la condition de probabilité

(3.16) n'est pas vérifiée, alors on reprend le tirage des angles test (θ^{test} , ϕ^{test}) et de ζ_3 jusqu'à ce que la condition de probabilité soit vérifiée.

$$p^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \geq \zeta_3 \quad (3.16)$$

On obtient ainsi les angles de dispersion (θ^{scat} et ϕ^{scat}) dans le repère de la particule grâce à la relation (3.17).

$$\begin{aligned} \phi_p^{scat} &= \phi^{test} + \phi_p^{inc}, \\ \theta_p^{scat} &= \theta^{test}. \end{aligned} \quad (3.17)$$

Lorsqu'on calcule la fonction de phase $M_{11}(\xi, \theta, \phi)$, nous choisissons du fait de l'axisymétrie de la particule et pour des raisons de stockage de données de fixer $\phi_p^{inc} = 0$. De ce fait, lorsqu'on calcule l'angle de dispersion ϕ_p^{scat} , on effectue l'opération : $\phi_p^{scat} = \phi^{test} + \phi_p^{inc}$ afin de pouvoir se replacer correctement dans le repère local de la particule.

La relation (3.18) permet de calculer la direction de dispersion dans le repère local de la particule :

$$\vec{u}_p^{scat} = \begin{bmatrix} \sin(\theta_p^{scat}) \cos(\phi_p^{scat}) \\ \sin(\theta_p^{scat}) \sin(\phi_p^{scat}) \\ \cos(\theta_p^{scat}) \end{bmatrix} \quad (3.18)$$

La relation $\vec{u}_L^{scat} = M^{-1} \cdot \vec{u}_p^{scat}$ permet de calculer la direction de dispersion dans le repère global du laboratoire. Enfin, la relation (3.19) permet de calculer les angles de dispersion dans le repère global du laboratoire :

$$\begin{aligned} \phi_L^{scat} &= \tan^{-1} \left(\frac{u_y^{scat}}{u_x^{scat}} \right), \\ \theta_L^{scat} &= \cos^{-1}(u_z^{scat}). \end{aligned} \quad (3.19)$$

La distance de propagation est obtenue à l'aide de la relation de Beer-Lambert (3.20) normalisée par la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR}^{x,m,\varepsilon,\varphi_v} \rangle$. Cette relation (3.20) dépend de la longueur de dispersion $l_s(\xi)^{x,m,\varepsilon}$ et du paramètre ζ obtenu par tirage aléatoire

uniforme sur l'intervalle $]0; 1]$.

$$d = -\frac{l_s^{x,m,\varepsilon}(\xi)}{\langle l_{TR}^{x,m,\varepsilon,\varphi_v} \rangle} \ln(\zeta) \quad (3.20)$$

La position est mise à jour grâce à la relation (3.21) dans le repère global du laboratoire ; on calcule la position \vec{p}_{i+1} du photon à partir de la position \vec{p}_i et de la distance parcourue d dans la direction \vec{u}_L^{scat} . On propage ainsi le photon jusqu'à ce qu'il sorte du milieu.

$$\vec{p}_{i+1} = \vec{p}_i + d \cdot \vec{u}_L^{scat} \quad (3.21)$$

Les simulations sont réalisées dans un milieu d'épaisseur égale à $10 \langle l_{TR}^{x,m,\varepsilon,\varphi_v} \rangle$, épaisseur nécessaire pour considérer le milieu comme semi-infini. Enfin, concernant les angles, la résolution angulaire est de $\pi/100$ pour la fonction de phase (en θ , en ϕ et en ξ).

Représentation logarithmique de l'image de rétrodiffusion

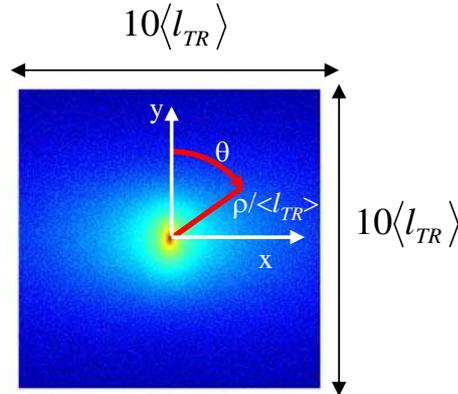


FIGURE 3.5 – Image de rétrodiffusion obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 0.66$, $x = 5$ et $\varepsilon = 0.2$

On envoie 100 millions de photons. Les photons sortants sélectionnés sont ceux sortant par la face inférieure $Z = 0$ du milieu (on rappelle que l'on est en géométrie de rétrodiffusion). La position du photon est exprimée dans le repère du laboratoire. On stocke alors la position de sortie (X, Y) du photon à sa sortie du milieu de deux façons

différentes. Le plan de rétrodiffusion retenu est de $10 < l_{\text{TR}}^{x,m,\varepsilon,\varphi_v} >$ de côté, discrétisée en 500 pixels en coordonnées cartésiennes. On discrétise également le plan de rétrodiffusion en coordonnées polaires avec une résolution angulaire de $\Delta\theta = 5^\circ$ et une résolution radiale de $\Delta\rho = \frac{\langle l_{\text{TR}} \rangle}{1000}$. La figure 3.5 est un exemple de représentation logarithmique en fausses couleurs de l'image de rétrodiffusion obtenue par le stockage en coordonnées cartésiennes.

Les simulations dépendent de trois paramètres : l'indice de réfraction relatif m , du paramètre de taille x et du facteur de forme ε . Une base de données de 480 simulations a été développée pour les valeurs de $m = (0.66, 0.75, 0.9, 1.1, 1.5)$. Pour chaque valeur de m , on fait varier le paramètre de taille $x = (0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 5, 10, 20)$ et le facteur de forme $\varepsilon = (0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1)$. L'indice de réfraction relatif $m = 0.66$ correspond par exemple à un milieu plastique contenant des bulles d'air tandis que $m = 1.5$ correspond à des peintures. Le domaine couvert par le paramètre de taille $x = 2\pi N_m r_v / \lambda$ s'étend de quelques dizaines de nanomètres à quelques micromètres pour les longueurs d'onde situées dans le visible. Enfin, le facteur de forme couvre le domaine des particules sphériques ($\varepsilon = 1$) aux particules très allongées ($\varepsilon = 0.1$). Des problèmes de convergence dans le calcul de la T-matrix apparaissent pour des valeurs élevées du paramètre de taille x et des valeurs du facteur de forme proche de 0.1. Plutôt que d'abaisser la précision du calcul, nous avons fait le choix de ne pas calculer les fonctions de phase de ces particules. Ainsi, certains points de calculs sont manquants dans notre base de données.

Le code de calcul a été développé sous DELPHI (Borland Corp.). Les simulations ont été lancées sur un PC possédant un processeur Core2Duo de fréquence 3.5 GHz et la base de données a été réalisée en un peu moins d'un an et demi afin d'étudier de manière systématique l'influence du paramètre de taille x , du facteur de forme ε et de l'indice de réfraction relatif m sur le transport incohérent de lumière en milieu anisotrope.

Descriptions qualitatives des images de rétrodiffusion

Les figures 3.6a) et 3.6b) représentent typiquement les images de rétrodiffusion 2D obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo. Les intensités sont en échelle logarithmique et en fausses couleurs. Sur les 3.6a) et 3.6b), l'indice de réfraction relatif m vaut 0.66 et le paramètre de taille x vaut respectivement 5 et 1. On fixe donc la valeur de l'indice de réfraction relatif m et du paramètre de taille x , et on observe l'évolution de l'image de rétrodiffusion 2D lorsque le facteur de forme de la particule varie de $\varepsilon = 0.1$ à $\varepsilon = 1$. Pour un facteur de forme $\varepsilon = 1$, l'image de rétrodiffusion est isotrope. Lorsqu'on diminue le facteur de forme, l'image de rétrodiffusion devient de plus en plus anisotrope (figure 3.6). Par ailleurs, on observe une double anisotropie de l'image de rétrodiffusion. Une anisotropie

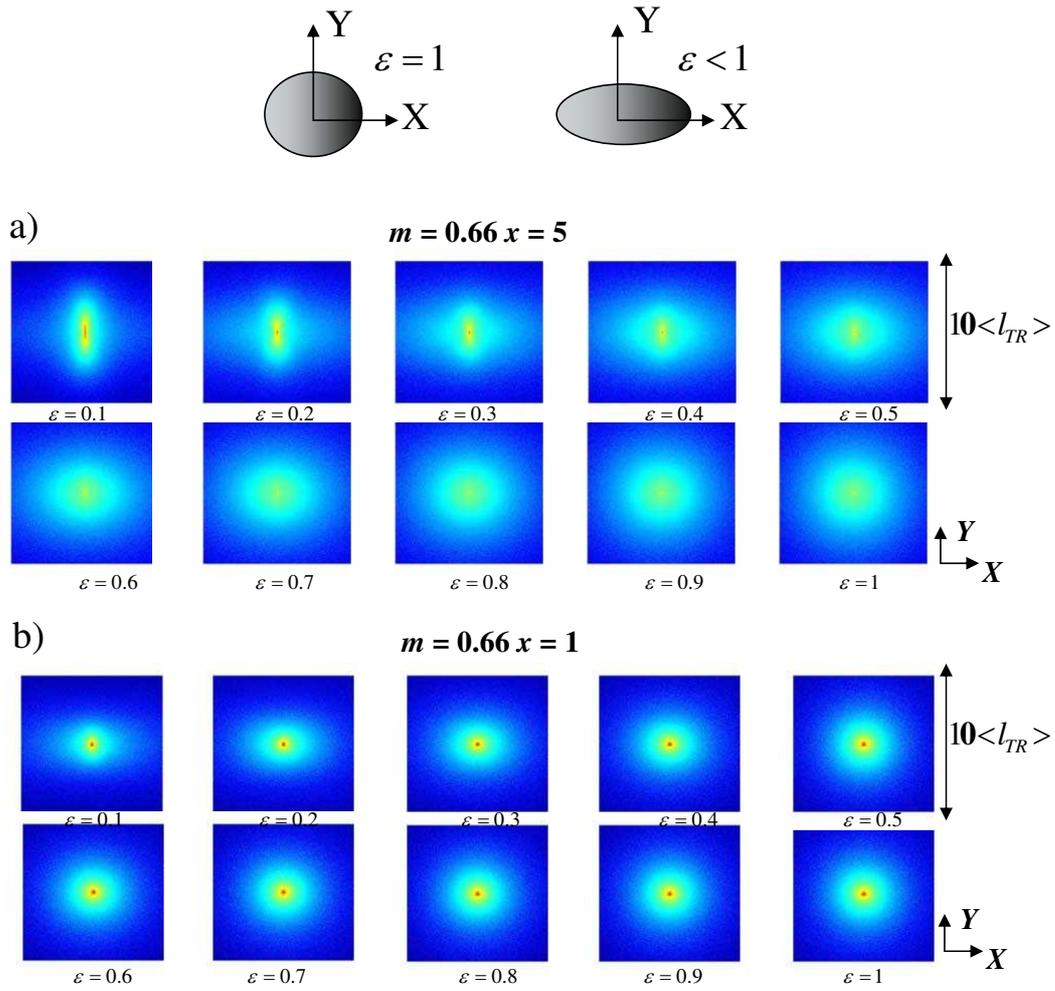


FIGURE 3.6 – Images de rétrodiffusion obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 0.66$ a) $x = 5$ b) $x = 1$

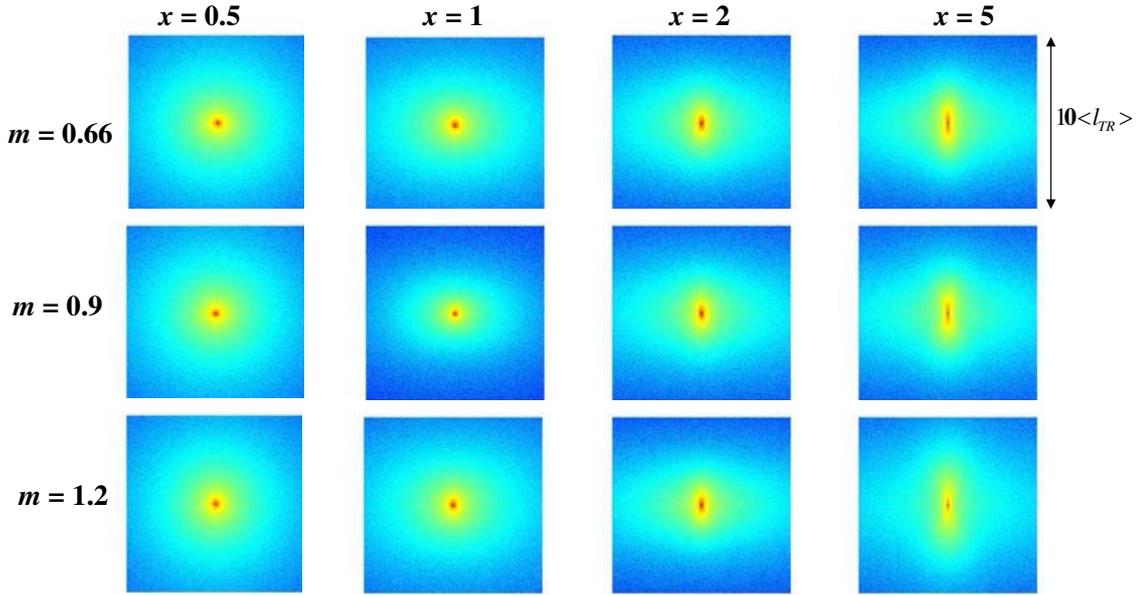


FIGURE 3.7 – Images de rétrodiffusion obtenues à l’aide des simulations de Monte Carlo pour $\varepsilon = 0.2$ pour différents paramètres de taille x et différents indices de réfraction

au centre de l’image de rétrodiffusion dans la direction OY perpendiculairement à l’axe d’orientation de la particule (toutes les particules sont orientées suivant l’axe OX). On nomme cette anisotropie, l’*anisotropie proche* de l’image de rétrodiffusion. Ensuite, une seconde anisotropie loin du centre de l’image de rétrodiffusion apparaît suivant l’axe OX. On nomme cette anisotropie, l’*anisotropie lointaine* de l’image de rétrodiffusion. Enfin, lorsque le paramètre de taille x diminue, cette double anisotropie disparaît. En effet, il existe toujours une faible anisotropie lointaine mais l’anisotropie proche disparaît.

Sur la figure 3.7, on s’intéresse à l’influence du paramètre de taille, en fixant la valeur du facteur de forme $\varepsilon = 0.2$ et en faisant varier le paramètre de taille $x = 0.5, 1, 2, 5$ et l’indice de réfraction relatif $m = 0.66, 0.9, 1.2$. On observe que plus le paramètre de taille augmente et plus l’image de diffusion est marquée pour un facteur de forme donné (figure 3.7). Pour des paramètres de taille $x \leq 5$, l’image de rétrodiffusion est isotrope, il n’y a pas de double anisotropie car on est en approximation de Rayleigh. Enfin, il semblerait que l’indice de réfraction relatif m n’ait pas d’influence significative sur le transport incohérent de lumière anisotrope car l’image de rétrodiffusion reste identique quelque soit l’indice de réfraction relatif du milieu (figure 3.7). On conclut à partir des figures 3.6 et 3.7 que le paramètre de taille et le facteur de forme influencent le transport incohérent de lumière dans un milieu anisotrope. Un accroissement du paramètre de taille et du facteur de forme augmentent l’anisotropie du transport de lumière. L’interprétation

physique de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion fera l'objet du paragraphe suivant.

3.3 Transport d'intensité moyenne

3.3.1 Variation radiale d'intensité

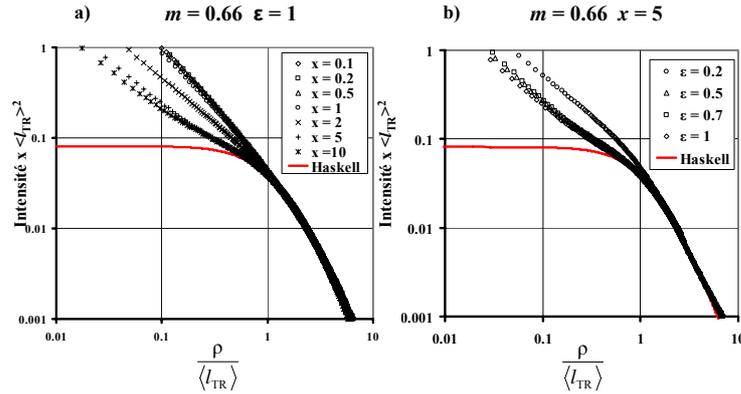


FIGURE 3.8 – Variation radiale d'intensité pour $m = 0.66$ a) pour des particules sphériques de différents paramètres de taille b) pour une particule de paramètre de taille $x = 5$ différents facteurs de forme

La figure 3.8a) correspond à la décroissance radiale d'intensité obtenue grâce aux simulations de Monte Carlo dans le cas d'un milieu constitué de particules sphériques ($\epsilon = 1$), d'indice de réfraction relatif $m = 0.66$ et pour différents paramètres de taille. La figure 3.8b) correspond à la décroissance radiale d'intensité obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour un milieu d'indice de réfraction relatif $m = 0.66$, un paramètre de taille $x = 5$ et différents facteurs de forme. Nous obtenons la décroissance radiale d'intensité $I(\rho)$ en effectuant la moyenne angulaire ($\theta \in [0..2\pi[$) de l'intensité pour chaque position radiale ρ selon la convention présentée sur la figure 3.5. L'espace ρ est normalisée par la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$ et la décroissance radiale d'intensité par $\langle l_{TR} \rangle^2$. Cette normalisation nous permet de nous affranchir de l'influence de la fraction volumique en particules φ_v . On compare sur ces figures, les décroissances radiales au modèle de Haskell sans absorption (relation (1.17)).

On constate sur la figure 3.8a) que les courbes coïncident parfaitement sur l'intervalle $\rho / \langle l_{TR} \rangle = [1; +\infty[$. Sur cet intervalle, la décroissance radiale d'intensité est identique quelque soit le paramètre de taille. On retrouve les résultats obtenus par Mougel [65] lorsque le facteur de forme vaut $\epsilon = 1$ sur la figure 3.8a), la décroissance radiale d'intensité obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo s'ajuste avec le modèle d'Haskell sans

absorption pour $\rho \in [l_{\text{TR}}; \infty[$. Les travaux de Julien Mougel [65] sur le transport incohérent de lumière non-polarisée dans une collection de particules sphériques ont montré qu'en ajustant la variation radiale d'intensité sur le modèle de Haskell, on pouvait déterminer la longueur de transport l_{TR} . On valide ainsi la pertinence de la longueur de transport moyenne $\langle l_{\text{TR}} \rangle$ pour normaliser nos simulations. Lors de nos expériences, il suffira donc d'ajuster la décroissance radiale d'intensité expérimentale au modèle de Haskell (relation (1.17)) pour pouvoir déterminer la longueur de transport moyenne d'un milieu anisotrope.

On constate sur la figure 3.8b) que sur l'intervalle $\rho / \langle l_{\text{TR}} \rangle = [1; \infty[$, la décroissance radiale d'intensité est identique quelque soit à présent le facteur de forme. On en conclut que sur l'intervalle $\rho / \langle l_{\text{TR}} \rangle = [1; \infty[$, l'énergie moyennée angulairement à une position radiale donnée est identique à l'énergie dispersée par une collection de ces particules toutes aléatoirement. Il y a en quelque sorte conservation de l'énergie dispersée. On peut également ajouter que la moyenne angulaire effectuée dans le plan de rétrodiffusion est tout à fait pertinente. On en conclut qu'il sera expérimentalement possible de déterminer la longueur de transport moyenne d'un milieu anisotrope. L'hypothèse d'une source diffuse en $z = \langle l_{\text{TR}} \rangle$, $\rho = 0$ est tout à fait valable même pour un milieu anisotrope. Cependant, il faut noter que l'ajustement de la décroissance radiale d'intensité sur le modèle de Haskell est moins satisfaisante lorsque les particules sont extrêmement anisotropes, soit pour des particules de facteurs de forme $\varepsilon \leq 0.2$ (figure 3.8b)).

3.3.2 Ajustement sur le modèle à double source

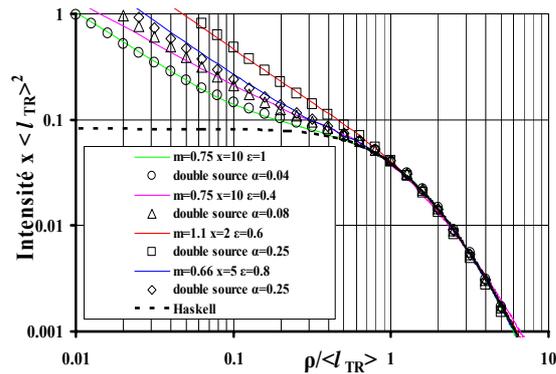


FIGURE 3.9 – Exemples d'ajustements du modèle à double source

On rappelle que Mougel [65] a montré que le paramètre α correspondant à l'amplitude relative entre les deux sources du modèle double source est liée à la fonction de phase de la particule et plus précisément à la fonction de phase arrière $p(\pi)$ (voir figure 1.9

). Nous avons souhaité montrer que pour une particule anisotrope, une telle corrélation pouvait exister. Pour ce faire, nous avons calculé la fonction de phase moyenne définie par la relation (3.22) :

$$\langle p^{x,m,\varepsilon}(\theta) \rangle = \frac{1}{\langle C_{scat}(\xi) \rangle} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} p^{x,m,\varepsilon}(\xi, \theta, \phi) \sin(\xi) d\xi d\phi \quad (3.22)$$

La figure 3.9 représente quelques ajustements du modèle double source sur des simulations à différents m , différents x et différents ε . Les valeurs du paramètre α sont ensuite corrélées à la partie arrière de la fonction de phase moyenne $\langle p^{x,m,\varepsilon}(\pi) \rangle$. Nous retrouvons ici les résultats obtenus par Mougel [65, 19] (figure 3.10). Dans un milieu anisotrope, comme pour les particules sphériques, l'amplitude α relative des deux sources est corrélée à la probabilité de dispersion vers l'arrière des photons soit à la partie arrière de la fonction de phase moyenne (figure 3.10). Nous pouvons ainsi analyser le transport incohérent de lumière en milieu anisotrope de façon similaire à l'analyse en milieu isotrope moyennant un moyennage angulaire dans le plan de rétrodiffusion. Ce moyennage angulaire correspond à un milieu isotrope équivalent dans lequel les particules anisotropes seraient orientées aléatoirement. Il est à noter que la figure 3.10 obtenue par Mougel [65] sur des simulations de Monte Carlo pour des particules sphériques ont été réalisées en ajoutant une polydispersité des particules. Il a été montré (Caton *et al.*, [19]) que la polydispersité permet de lisser la corrélation entre le paramètre α et la partie arrière de la fonction de phase. Un résultat similaire serait attendu dans le cas de particules anisotropes.

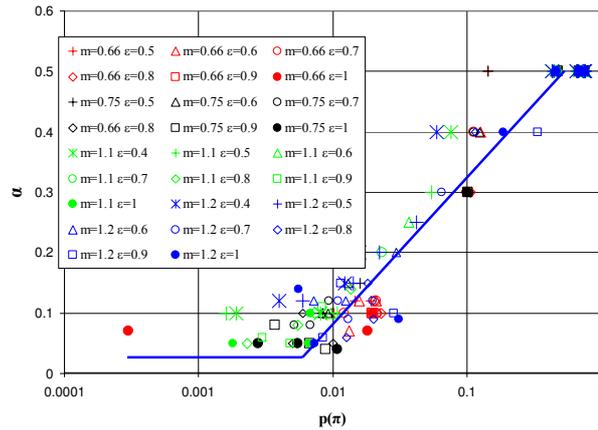


FIGURE 3.10 – a) Variation de α (déterminé par ajustement sur des simulations de Monte Carlo) avec $p(\pi)$ (calculé par la théorie de Mie) pour différents m et différents x b) Variation de α (déterminé par ajustement sur des simulations de Monte Carlo) avec $p(\pi)$ (calculé à l'aide du code T-matrix) pour différents m , différents x et différents ε

3.4 Etude de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion

3.4.1 Variation angulaire d'intensité

A une distance radiale constante $\rho / \langle l_{TR} \rangle$ du barycentre de l'image de rétrodiffusion, on mesure la variation angulaire d'intensité, c'est-à-dire que pour chaque angle θ , on fait la moyenne de l'intensité sur un élément de surface d'épaisseur 10 pixels à partir de la position $\rho / \langle l_{TR} \rangle$.

Les figures 3.11a) et 3.11b) représentent la variation angulaire d'intensité pour des simulations de Monte Carlo pour $m = 0.9$ et $x = 5$ à différentes positions radiales constantes ($\rho = \frac{\langle l_{TR} \rangle}{2}$ et en $\rho = 8 \langle l_{TR} \rangle$) pour différents facteurs de forme ε . Sur la figure 3.11a), on a un maximum d'intensité en $\theta = 0^\circ, 180^\circ, 360^\circ$ et un minimum d'intensité en $\theta = 90^\circ, 270^\circ$ pour $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 1/2$. L'intensité est donc maximale suivant l'axe OY perpendiculaire à l'axe d'orientation des particules. Sur la figure 3.11b), on constate un maximum d'intensité en $\theta = 90^\circ, 270^\circ$ et un minimum d'intensité en $\theta = 0^\circ, 180^\circ, 360^\circ$ pour $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 8$, l'intensité est donc maximale suivant l'axe OX. On constate également que plus le facteur de forme ε augmente et plus la variation angulaire augmente sur les figures 3.11a) et 3.11b). Les variations de la figure 3.11a) représentent ainsi les variations d'intensité proche du centre de l'image de rétrodiffusion, soit l'*anisotropie proche*. Les variations de la figure 3.11b) représentent donc les variations d'intensité loin du centre de l'image de rétrodiffusion, soit l'*anisotropie lointaine*. Ces figures confirment ce que l'on a observé de manière qualitative sur la figure 3.6 : l'anisotropie proche et l'anisotropie lointaine augmentent lorsque l'anisotropie de la particule ε diminue donc lorsque la particule se déforme de plus en plus.

Les figures 3.12a) et 3.12b) représentent la variation angulaire d'intensité pour des simulations de Monte Carlo à $m = 0.66$ et $\varepsilon = 0.4$ à différentes positions radiales constantes ($\rho = \frac{\langle l_{TR} \rangle}{2}$ et en $\rho = 8 \langle l_{TR} \rangle$) pour différents paramètres de taille x . Les observations sont les mêmes que précédemment : les courbes de la figure 3.12a) représentent ainsi les variations d'intensité proche du centre de l'image de rétrodiffusion, soit l'*anisotropie proche* tandis que les variations de la figure 3.11b) représentent donc les variations d'intensité loin du centre de l'image de rétrodiffusion, soit l'*anisotropie lointaine*. On observe sur les figures 3.12a) et 3.12b) que l'intensité augmente également lorsque le paramètre de taille x augmente et confirme ce que l'on a observé sur la figure 3.6. Cependant, lorsque le paramètre de taille x est supérieure ou égale à 5, les variations radiales d'intensité ne varient plus et sont identiques quelque soit le paramètre de taille. On tend vers une courbe unique lorsque le paramètre de taille est supérieur ou égal à 5. Nous pouvons imaginer

que cette limite est associée à la limite de l'optique géométrique pour $x \geq 5$.

A partir de la variation angulaire d'intensité, pour chaque position radiale $\rho \in [0; \infty[$ dans le plan de rétrodiffusion, la relation (3.23) permet de définir l'anisotropie radiale (voir figure 3.11). Par conséquent, sur chaque couronne $\rho = \text{constante}$, on mesure une anisotropie radiale.

$$A^{x,m,\varepsilon} \left(\frac{\rho}{\langle l_{\text{TR}} \rangle} \right) = \frac{I_{\text{V}} - I_{\text{H}}}{I_{\text{V}} + I_{\text{H}}} \quad (3.23)$$

Où I_{H} est l'intensité angulaire suivant la direction parallèle à l'axe des objets (axe OX, $\theta = \pi/2, 3\pi/2$) et I_{V} est l'intensité angulaire suivant la direction perpendiculaire à l'axe des objets (axe OY, $\theta = 0, \pi, 2\pi$) à chaque position radiale.

Nous allons dans le prochain paragraphe effectuer une étude plus détaillée de la variation radiale d'anisotropie. Nous allons étudier à présent l'influence du paramètre de taille x , de l'indice de réfraction relatif m et du facteur de forme ε sur cette transition entre l'anisotropie perpendiculaire aux particules et l'anisotropie qui leur est parallèle .

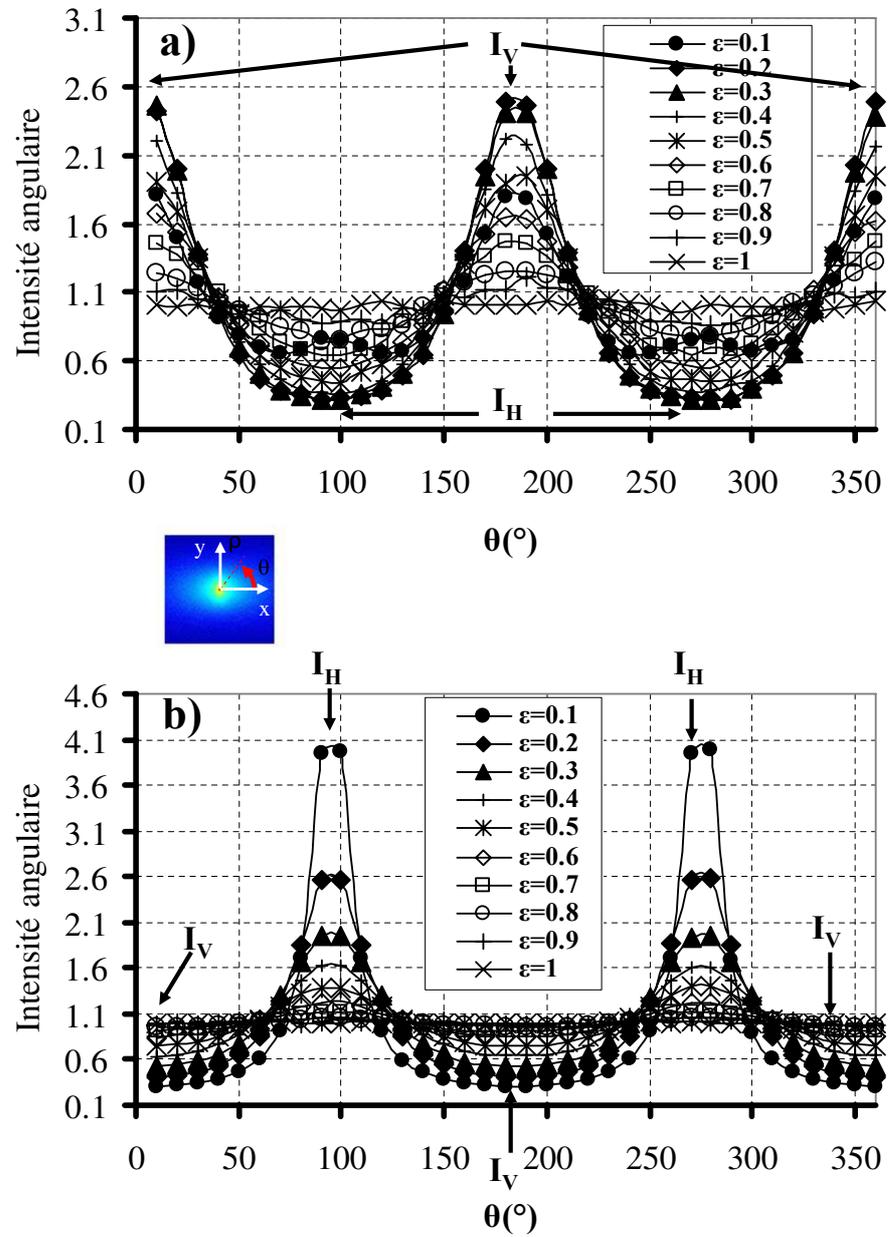


FIGURE 3.11 – Variations angulaires d'intensité pour différents facteurs de forme pour $m = 0.9$ et $x = 5$ à différents positions radiales a) $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 0.5$ b) $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 8$

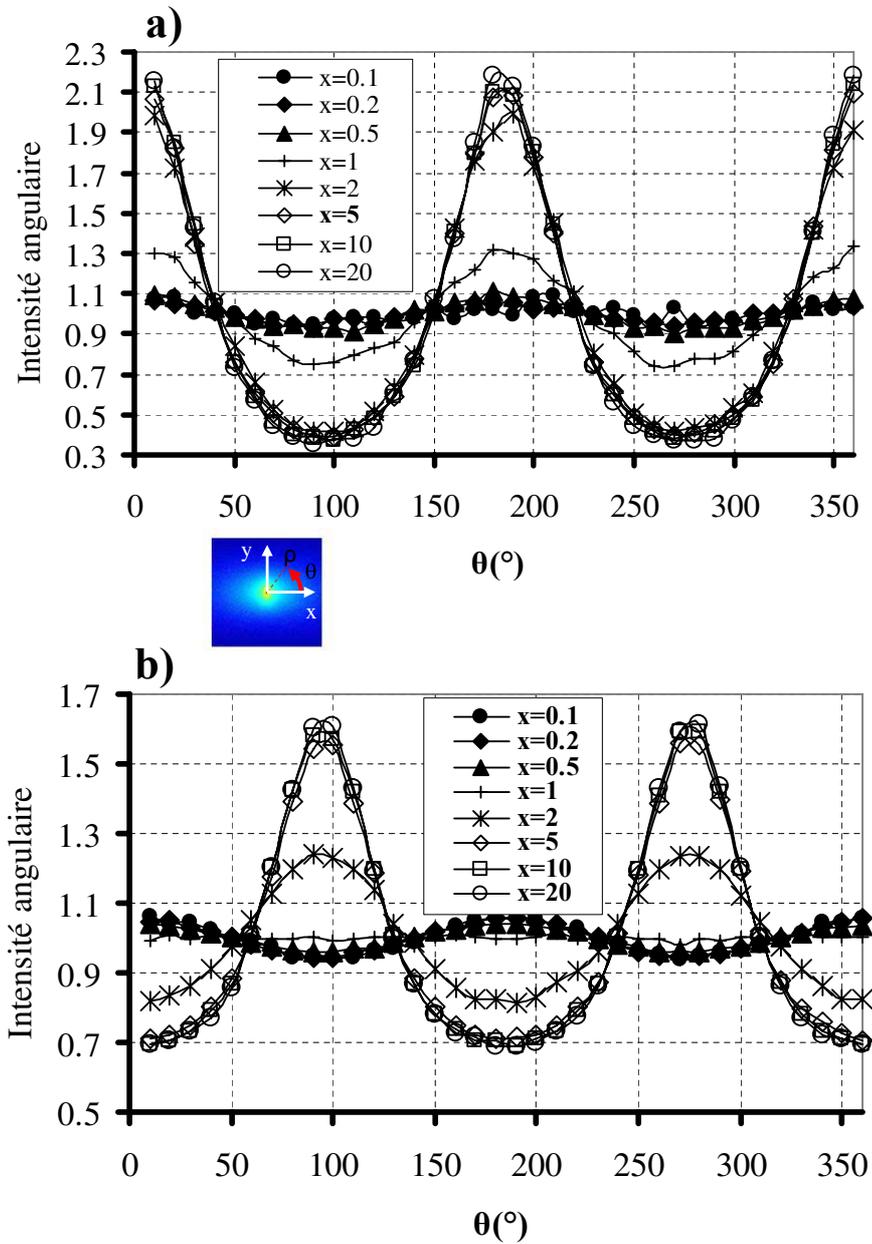


FIGURE 3.12 – Variations angulaires d’intensité pour différents paramètres de taille pour $m = 0.66$ et $\varepsilon = 0.4$ à différents positions radiales a) $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 0.5$ b) $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 8$

3.4.2 Variation radiale d'anisotropie

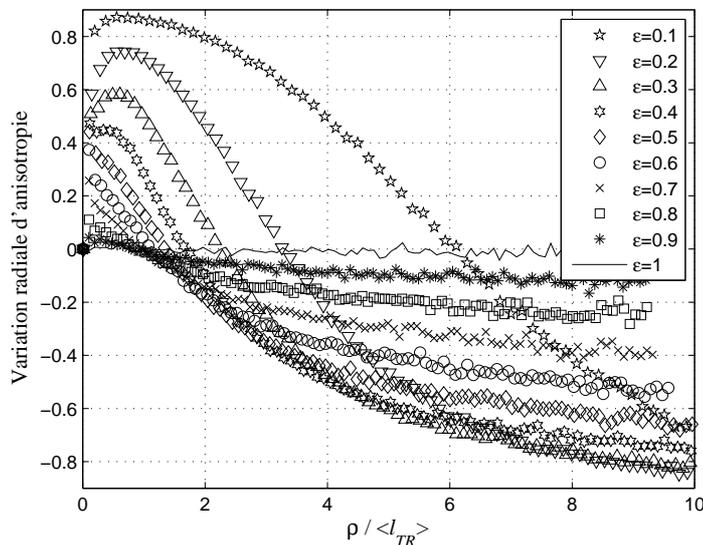


FIGURE 3.13 – Variation radiale d’anisotropie pour différents facteurs de forme pour $m = 0.9$ et $x = 5$

La figure 3.13 représente la variation radiale d’anisotropie pour un indice de réfraction relatif $m = 0.9$ et un paramètre de taille $x = 5$ et pour différents facteurs de forme ε . La distance radiale est normalisée par la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$. On observe que la variation radiale d’anisotropie augmente à partir du centre de l’image jusqu’à atteindre un maximum en $\rho = \langle l_{TR} / 2 \rangle$ puis décroît rapidement jusqu’à ce qu’elle atteigne une valeur asymptotique. Le maximum d’anisotropie correspond à l’anisotropie proche suivant l’axe OY. La variation radiale d’anisotropie devient négative lorsqu’on s’éloigne du maximum d’anisotropie. Ce changement de signe correspond au passage de l’anisotropie proche perpendiculaire à l’orientation des particules vers l’anisotropie lointaine suivant l’axe OX parallèle à l’orientation des particules.

La figure 3.14 représente la variation radiale d’anisotropie pour un paramètre de taille $x = 1$ et un facteur de forme $\varepsilon = 0.1$ pour différents indices de réfraction relatifs. La distance radiale est normalisée par la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$. On observe, comme précédemment, que la variation radiale d’anisotropie augmente à partir du centre de l’image jusqu’à atteindre un maximum en $\rho = \langle l_{TR} / 2 \rangle$ puis décroît rapidement jusqu’à ce qu’elle atteigne une valeur asymptotique. Cependant, la variation radiale d’anisotropie est identique quelque soit la valeur de l’indice de réfraction relatif m . Il n’y a pas d’influence de l’indice de réfraction relatif sur la variation radiale d’anisotropie et

confirme ce que l'on a observé qualitativement sur la figure 3.6. La variation radiale ne dépend à priori pas de l'indice de réfraction relatif.

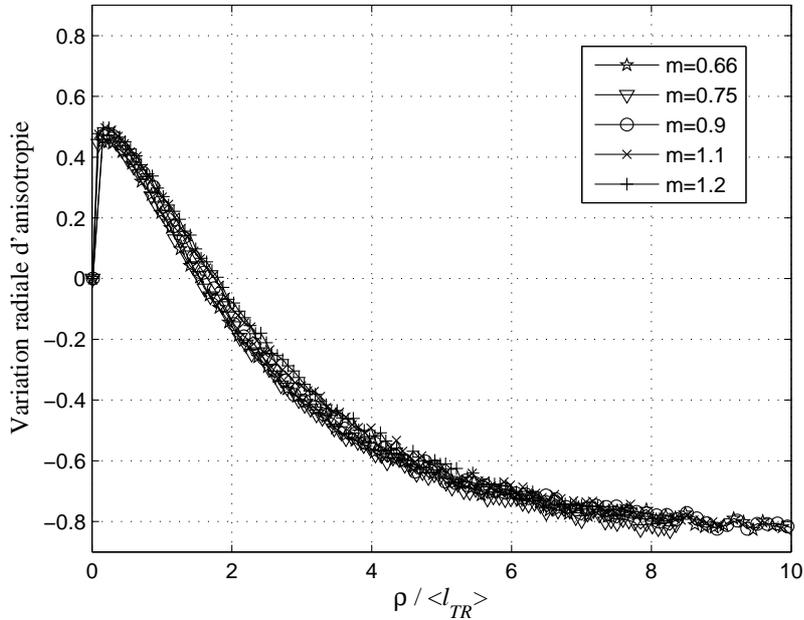


FIGURE 3.14 – b) Variation radiale d'anisotropie pour différents indices de réfraction relative pour $\varepsilon = 0.1$ et $x = 1$

La figure 3.15 correspond à la variation d'anisotropie pour $m = 0.66$ et $\varepsilon = 0.4$ pour différents paramètres de tailles. Sur la figure 3.15, la variation radiale d'anisotropie augmente lorsque le paramètre de taille augmente. Cependant, pour des paramètres de taille $x \geq 5$, la variation radiale d'anisotropie est identique quelque soit le paramètre de taille. Pour des paramètres de taille très petits, la variation radiale d'anisotropie est également identique et on notera l'absence d'anisotropie proche également. La variation radiale d'anisotropie ne dépend plus du paramètre de taille une fois que l'on a atteint la limite de l'optique géométrique, c'est-à-dire lorsque la longueur d'onde est inférieure à la taille des objets.

On notera également que pour les paramètres très petits (typiquement inférieurs), l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion est inexistante contrairement à l'anisotropie lointaine. Par conséquent, nous étudierons l'anisotropie proche que pour les particules ayant un paramètre de taille supérieur ou égal à 1.

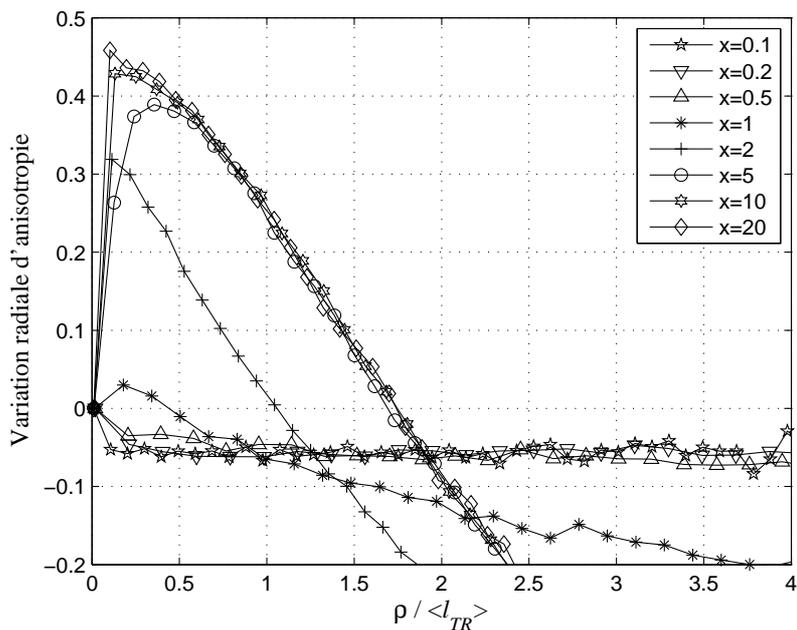


FIGURE 3.15 – Variation radiale d’anisotropie pour différents paramètres de taille $m = 1.1$ et $\varepsilon = 0.4$

Pour résumer, pour des paramètres de taille supérieurs ou égaux à 5, la variation radiale d’anisotropie ne dépend plus du paramètre de taille x , ni du rapport des indices de réfraction mais uniquement du facteur de forme. On rappelle que l’objectif final est de trouver un moyen de relier l’anisotropie des objets à l’anisotropie du transport incohérent de lumière. Nous allons donc considérer deux paramètres discriminants pour la suite de notre étude : l’anisotropie proche en $\rho = \langle l_{TR} \rangle / 2$ et l’anisotropie lointaine en $\rho = 8 \langle l_{TR} \rangle$.

3.4.3 Ajustement exponentiel de la variation radiale d’anisotropie

Il est plus aisé de récupérer l’anisotropie proche que l’anisotropie lointaine. En effet, l’anisotropie lointaine est la limite de la variation radiale d’anisotropie pour $\rho / \langle l_{TR} \rangle \rightarrow \infty$ (voir figure 3.13) et il faut aller très loin dans le milieu pour obtenir cette information limite, ce qui serait prohibitif compte tenu du temps de calcul. Pour résoudre ce problème, nous ajustons à la courbe de variation radiale d’anisotropie une fonction exponentielle définie par la relation 3.24 où le paramètre A_∞ correspond à l’anisotropie lointaine extrapolée à $\rho / \langle l_{TR} \rangle \rightarrow \infty$.

$$A = A_0 + (A_\infty - A_0) \left(1 - e^{-\beta \frac{\rho}{\langle l_{TR} \rangle}} \right) \quad (3.24)$$

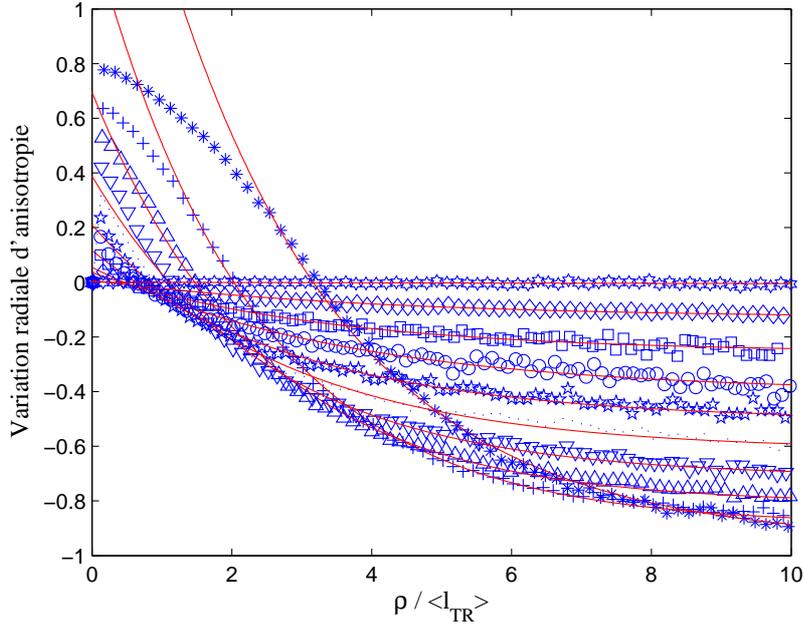


FIGURE 3.16 – Variation radiale d’anisotropie et ajustements exponentiels pour $m = 1.1$ et $x = 2$

La figure 3.16 représente les ajustements obtenus sur quelques simulations dans le cas où $m = 1.1$ et $x = 2$ pour différents facteurs de forme. Les paramètres A_0 , A_∞ et β sont des paramètres d’ajustement. A_0 correspond à l’anisotropie proche de l’image de rétrodiffusion et A_∞ correspond à l’anisotropie lointaine de l’image de rétrodiffusion.

Pour conclure, à partir de chaque simulation (m, x, ϵ) , nous obtenons une image de rétrodiffusion 2D du transport incohérent de lumière dans un milieu anisotrope. Grâce à cette image de rétrodiffusion 2D, nous déterminons la variation radiale d’anisotropie. A partir de ces variations, nous retenons deux grandeurs physiques pour caractériser l’anisotropie de l’image de rétrodiffusion : l’anisotropie proche, perpendiculaire à l’orientation des particules et correspondant à l’anisotropie de l’image en $\rho = \langle l_{TR} \rangle / 2$ et à l’aide de l’ajustement exponentiel (relation 3.24), nous extrayons l’anisotropie lointaine de l’image de rétrodiffusion en $\rho / \langle l_{TR} \rangle \rightarrow \infty$. Une base de donnée a ainsi été constituée pour chaque simulation (m, x, ϵ) , l’anisotropie lointaine et l’anisotropie proche ont été extraites de chaque image de rétrodiffusion (voir figure 3.17).

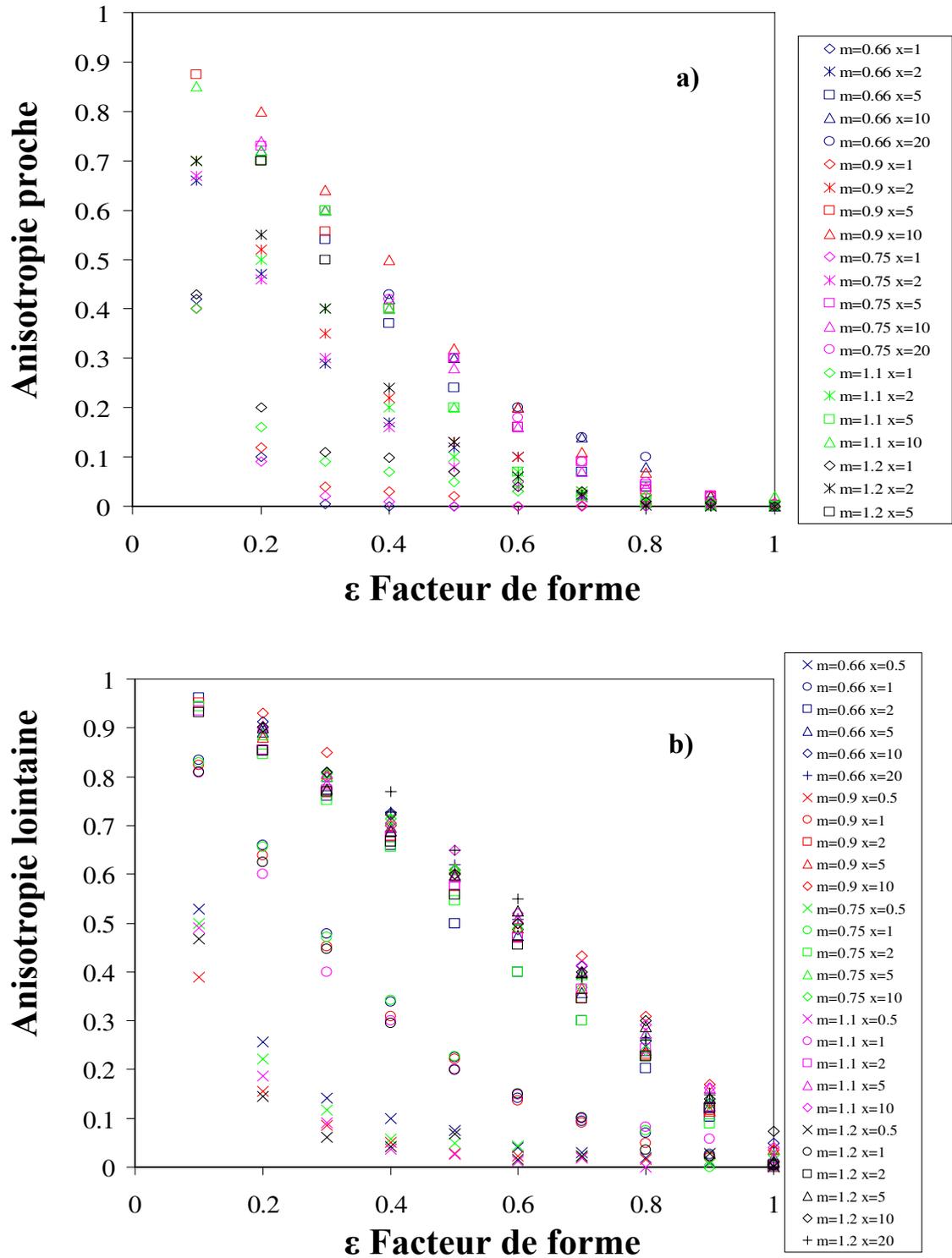


FIGURE 3.17 – Evolution de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion en fonction du facteur de forme pour différents paramètres de taille et différents indices de réfraction relatif a) Anisotropie proche. b) Anisotropie lointaine

3.5 Résultats des simulations de Monte Carlo

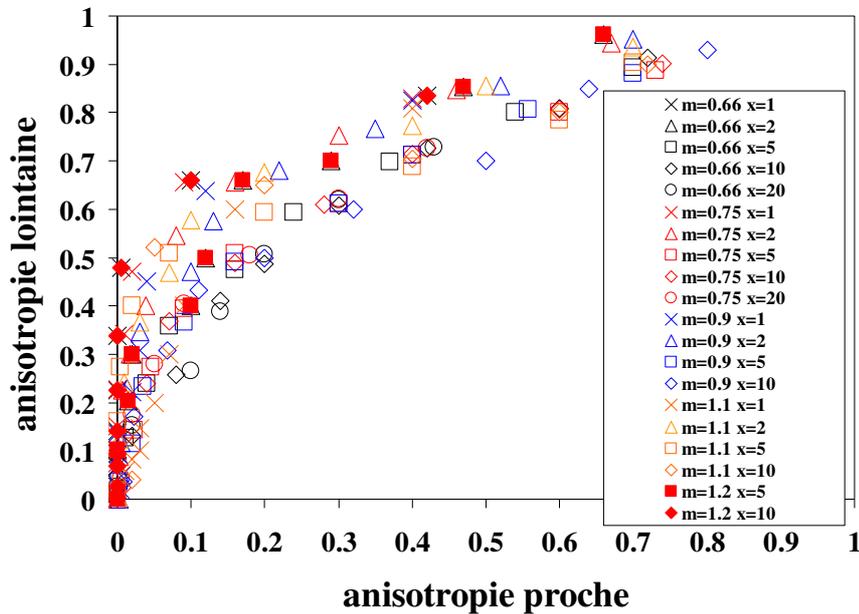


FIGURE 3.18 – Anisotropie lointaine en fonction de l’anisotropie proche pour différents paramètres de taille x et différents indices de réfraction relatifs m et différents facteurs de forme ε

La figure 3.17a) représente l’évolution de l’anisotropie proche en fonction du facteur de forme ε pour différents paramètres de taille x et différents indices de réfraction relatifs m . Sur cette figure, on a présenté les simulations effectuées au cours de cette étude pour les paramètres de taille supérieurs ou égaux à 1 car pour les paramètres de taille inférieurs à 1, l’anisotropie proche est nulle. L’anisotropie proche augmente lorsque le paramètre de taille augmente et lorsque le facteur de forme diminue. L’anisotropie proche ne dépend pas de l’indice de réfraction relatif et enfin, pour des paramètres de taille $x \geq 5$, l’anisotropie proche ne varie plus, une limite est atteinte.

La figure 3.17b) représente l’évolution de l’anisotropie lointaine en fonction du facteur de forme ε pour différents paramètres de taille x et différents indices de réfraction relatifs m . Sur cette figure, comme précédemment, on a présenté l’ensemble des simulations effectuées au cours de cette étude. L’anisotropie lointaine augmente lorsque le paramètre de taille augmente et lorsque le facteur de forme diminue. L’anisotropie proche, comme l’anisotropie lointaine, ne dépend pratiquement pas de l’indice de réfraction relatif et enfin, pour des paramètres de taille $x \geq 5$, l’anisotropie lointaine, comme l’anisotropie proche, ne varie plus, une limite est également atteinte.

La figure 3.18 représente l'évolution de l'anisotropie lointaine en fonction de l'anisotropie proche pour différents paramètres de taille $x \geq 1$, différents indices de réfraction relatifs m et différents facteurs de forme ε . Nous obtenons une courbe sur laquelle l'influence de l'indice de réfraction relatif semble négligeable et l'anisotropie lointaine est vaguement corrélée à l'anisotropie proche.

Pour conclure, comme nous l'avons observé de manière qualitative sur les figures 3.6 et 3.7, une augmentation du paramètre de taille x ou une diminution du facteur de forme ε (correspondant à une augmentation de l'anisotropie de la particule) provoquent une augmentation de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion. En outre, pour les particules de très grandes tailles, on atteint une limite physique qui semble être une limite liée à l'optique géométrique.

A présent, nous allons tenter d'interpréter physiquement les variations radiales d'anisotropie.

3.5.1 Analyse de l'anisotropie proche

Corrélation entre l'anisotropie proche et l'anisotropie de la fonction de phase à incidence normale

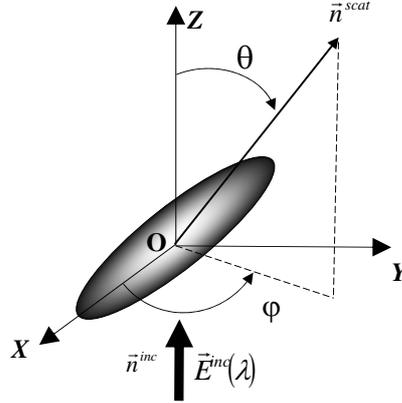


FIGURE 3.19 – Premier événement de dispersion à incidence normale

L'anisotropie proche est perpendiculaire à l'axe d'orientation de la particule et augmente lorsque l'anisotropie de la particule augmente. Caton *et al.* [19] montrent que la répartition d'intensité proche du centre de l'image de rétrodiffusion 2D est directement liée à la fonction de phase pour des particules sphériques. Par ailleurs, lorsque les photons pénètrent le milieu, les premières particules rencontrées sont à incidence normale or nous avons vu que la variation azimutale à incidence normale augmente avec l'anisotropie des particules. La dispersion se fait de manière privilégiée dans ce cas-là dans la direction perpendiculaire de l'axe d'orientation de la particule comme nous l'avons observée dans le paragraphe 2.2.3. Il est donc intuitif de tenter de corréler l'anisotropie proche à fonction de phase de la particule à incidence normale. Nous définissons la fonction de phase azimutal lorsque la particule est à incidence normale (voir figure 3.19) par la relation (3.25) :

$$\langle p^{x,m,\varepsilon}(\phi) \rangle = \frac{\int_0^\pi M_{11}(\xi = \pi/2, \theta, \phi) \sin(\theta) d\theta}{C_{scat}(\xi = \pi/2)} \quad (3.25)$$

La relation (3.26) permet de définir l'anisotropie de la fonction de phase de façon similaire à la définition utilisée pour l'anisotropie de l'image.

$$A_\phi = \frac{\langle p^{x,m,\varepsilon}(\phi = \pi/2) \rangle - \langle p^{x,m,\varepsilon}(\phi = 0) \rangle}{\langle p^{x,m,\varepsilon}(\phi = \pi/2) \rangle + \langle p^{x,m,\varepsilon}(\phi = 0) \rangle} \quad (3.26)$$

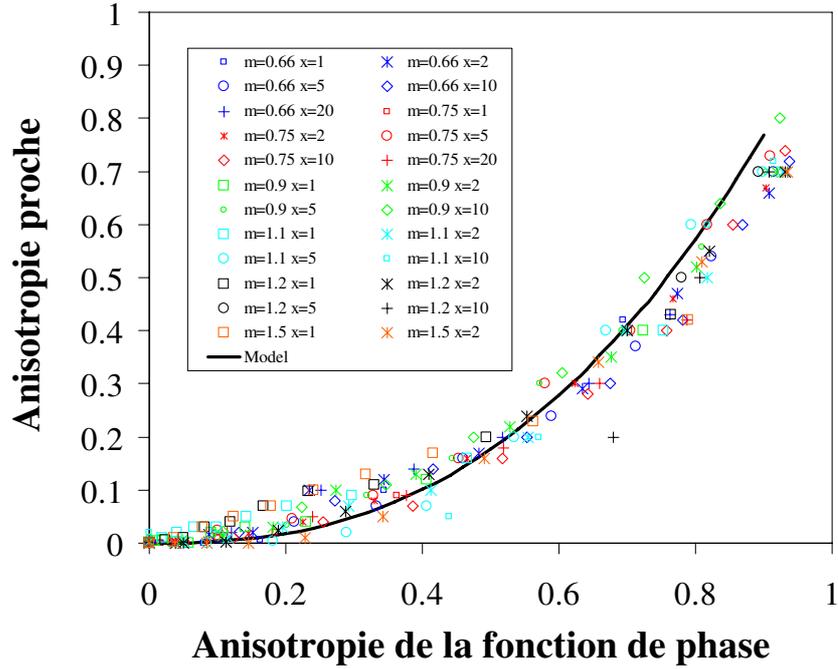


FIGURE 3.20 – Correlation entre l’anisotropie proche et l’anisotropie de la fonction de phase. courbe en trait plein : modèle en loi de puissance de la relation 3.27

La figure 3.20 représente l’anisotropie proche en fonction de l’anisotropie de la fonction de phase pour différents indices de réfraction relatifs m , et différents paramètres de taille x et des anisotropies de particules ε variées. L’anisotropie proche est corrélée comme on peut le voir à l’anisotropie de la fonction de phase à incidence normale quelque soit la particule considérée. Connaissant les propriétés des particules, à savoir le paramètre de taille x , l’indice de réfraction relatif m et leur anisotropie ε (voir figure 3.20), il sera donc possible de déterminer l’anisotropie proche. Sans avoir recours aux simulations de Monte Carlo, l’origine physique de l’anisotropie proche est donc issue de l’anisotropie azimutale de la fonction de phase à incidence normale. La relation (3.27) donne la loi en puissance permettant une relation continue entre l’anisotropie proche et l’anisotropie de la fonction de phase (figure 3.20).

$$A_{\text{proche}} \cong A_{\phi}^{2.5} \quad (3.27)$$

La non-linéarité de la relation entre l’anisotropie proche et l’anisotropie de la fonction de phase azimutale provient sans doute des effets de dispersion multiple.

Corrélation entre l'anisotropie proche et le facteur de forme

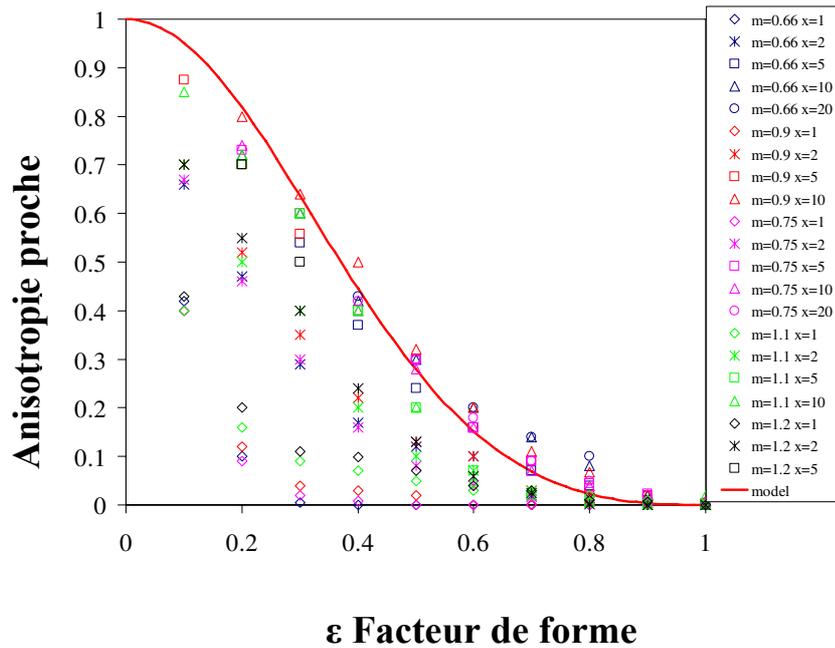


FIGURE 3.21 – Variation de l’anisotropie proche en fonction du facteur de forme ϵ . Courbe en trait plein : modèle correspondant à la relation (3.35)

La figure 3.21 représente l’évolution de l’anisotropie proche en fonction du facteur de forme ϵ pour différents indices de réfraction relatifs m et pour les paramètres de taille $x \geq 1$. L’anisotropie proche ne dépend pas de l’indice de réfraction relatif. Par ailleurs, l’anisotropie proche augmente lorsque le paramètre de taille augmente jusqu’à atteindre une limite lorsque le paramètre de taille est supérieur ou égal à 5. Cette limite correspond à une limite liée à l’optique géométrique mais elle se propage également jusqu’au régime de diffraction. Or, dans la limite de la diffraction, on montre que $\frac{\langle p^{x,m,\epsilon}(\phi=0) \rangle}{\langle p^{x,m,\epsilon}(\phi=\pi/2) \rangle} = 1/\epsilon^2$.

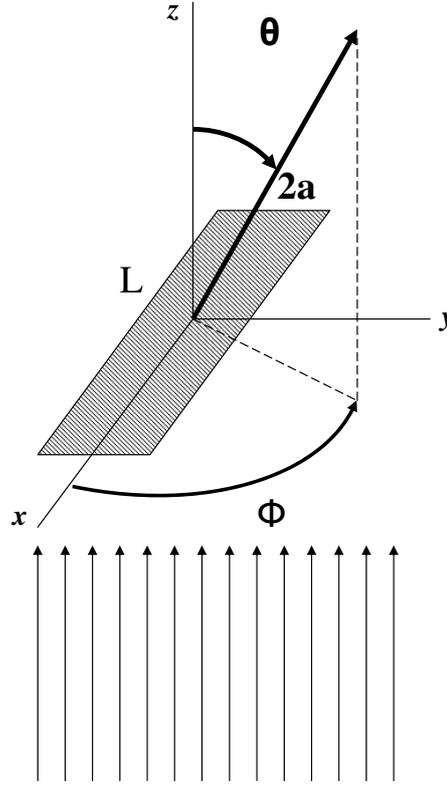


FIGURE 3.22 – Interaction entre obstacle rectangulaire opaque et une onde électromagnétique plane dans en diffraction

En effet, en approximation de diffraction, l'illumination d'une ouverture rectangulaire par une onde électromagnétique est identique à celle d'un cylindre infini. L'expression de l'amplitude du champ diffracté par l'ouverture rectangulaire peut être calculée à partir de la relation d'Huygens-Fresnel :

$$S(\theta, \phi) = \frac{k^2(1 + \cos(\phi))}{4\pi} \int_{-a}^a \int_{-L/2}^{L/2} e^{-ik\sin(\theta)(\xi\cos(\phi) + \eta\sin(\phi))} d\xi d\eta \quad (3.28)$$

Où $k = 2\pi/\lambda$, λ est la longueur d'onde, L est la longueur de l'ouverture et $2a$ est la largeur de l'ouverture. Le point de coordonnées (ξ, η) est un point se trouvant à l'intérieur de l'ouverture.

La section efficace de diffraction est égale à la section projetée, soit :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{|S(\theta, \phi)|^2}{k^2} \sin(\theta) d\theta d\phi = 2aL = 4a^2\varepsilon \quad (3.29)$$

Où ε correspond au rapport $L/2a$ et $x = ka = 2\pi/\lambda a$. La relation suivante donne

l'expression de l'intensité diffractée par un obstacle de forme rectangulaire (Bohren *et al.* [15]).

$$S(\theta, \phi) = \frac{1 + \cos(\theta)}{\pi} \frac{x \sin(x \sin(\theta) \sin(\phi))}{x \sin(\theta) \sin(\phi)} \frac{x \varepsilon \sin(x \varepsilon \sin(\theta) \sin(\phi))}{x \varepsilon \sin(\theta) \sin(\phi)} \quad (3.30)$$

On définit la fonction de phase en fonction de l'amplitude de diffraction par : $p(\theta, \phi) = |S(\theta, \phi)| / 4x^2 \varepsilon$. La dispersion est maximale dans la direction avant soit :

$$p(\theta = 0^\circ, \phi = 0^\circ) = \frac{x^2 \varepsilon}{\pi^2} = \frac{k^2 a L}{2\pi^2} \quad (3.31)$$

Plus les dimensions de la particule (rayon ou longueur) sont grandes et plus la dispersion a lieu vers l'avant. En incidence normal ($\theta = 90^\circ$), la fonction de phase $p(\theta, 90^\circ)$ s'exprime de la manière suivante :

$$p(\theta, 90^\circ) = \left(\frac{1 + \cos(\theta)}{2} \right)^2 \frac{p(0^\circ)}{x^2 \sin^2(\theta)} \quad (3.32)$$

et en incidence parallèle ($\theta = 0^\circ$), on exprime la fonction de phase $p(\theta, 0^\circ)$ s'exprime de la manière suivante :

$$p(\theta, 0^\circ) = \left(\frac{1 + \cos(\theta)}{2} \right)^2 \frac{p(0^\circ)}{x^2 \varepsilon^2 \sin^2(\theta)} \quad (3.33)$$

Et ainsi, le rapport entre les deux fonctions de phase donne :

$$\frac{p(\theta, 90^\circ)}{p(\theta, 0^\circ)} = \varepsilon^2 \quad (3.34)$$

Par conséquent, on peut relier l'anisotropie proche au facteur de forme ε grâce à la relation (3.35).

$$A_{\text{proche}} \cong A_{\phi}^{2.5} = \left(\frac{1 - \varepsilon^2}{1 + \varepsilon^2} \right)^{2.5} \quad (3.35)$$

Connaissant l'anisotropie de l'image, il sera donc aisé surtout dans la limite de l'optique géométrique et à la limite de la diffraction de déterminer l'anisotropie des objets sans se soucier de l'indice de réfraction relatif ou du paramètre de taille en utilisant la relation (3.35).

Pour les particules de petites tailles ($x \leq 2$), les courbes de la figure 3.21 permettent d'inverser directement l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion en terme de facteur de forme.

3.5.2 Analyse de l'anisotropie lointaine

Corrélation entre l'anisotropie lointaine et l'anisotropie de la longueur de transport

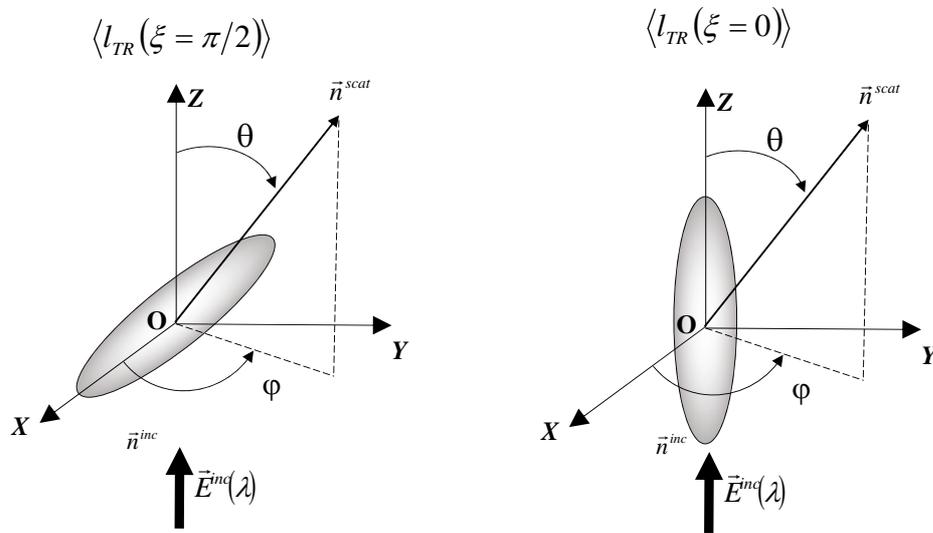


FIGURE 3.23 – Gauche : longueur de transport moyenne dans le cas où la particule est orientée suivant l'axe OX, Droite : longueur de transport moyenne dans le cas où la particule est orientée suivant l'axe OZ

L'anisotropie lointaine est un phénomène qui se produit loin du point d'impact du laser. Lorsque les photons ont parcouru de très longues distances dans le milieu, c'est-à-dire lorsqu'ils sont devenus totalement diffusifs. Or la grandeur caractéristique permettant de décrire le phénomène de diffusion est la longueur de transport l_{TR} . Afin de déterminer l'origine de l'anisotropie lointaine, nous cherchons à montrer qu'il existe une corrélation entre l'anisotropie lointaine et l'anisotropie de la longueur de transport. Autant l'anisotropie proche est une propriété qui provient essentiellement de l'anisotropie de la fonction de phase, autant l'anisotropie lointaine est une propriété qui est essentiellement due à l'anisotropie de la diffusion et à l'anisotropie du paramètre qui décrit ce phénomène, à savoir la longueur de transport. La relation (3.36) représente la longueur de transport moyenne pour une orientation ξ donnée de la particule :

$$\langle l_{\text{TR}} \rangle (\xi) = \frac{4/3\pi a^2 b}{C_{\text{scat}}(\xi)(1 - g(\xi))} \quad (3.36)$$

La relation (3.37) permet de définir l'anisotropie de la longueur de transport dans le milieu :

$$A_{l_{\text{TR}}} = \frac{\langle l_{\text{TR}} \rangle^2 (\xi = 0) - \langle l_{\text{TR}} \rangle^2 (\xi = \pi/2)}{\langle l_{\text{TR}} \rangle^2 (\xi = 0) + \langle l_{\text{TR}} \rangle^2 (\xi = \pi/2)} \quad (3.37)$$

Où $\langle l_{\text{TR}} \rangle (\xi = \pi/2)$ correspond à la longueur de transport moyenne lorsque les particules sont orientées suivant l'axe OX et $\langle l_{\text{TR}} \rangle (\xi = 0)$ correspond à la longueur de transport moyenne lorsque les particules sont orientées suivant l'axe OZ (voir figure 3.23).

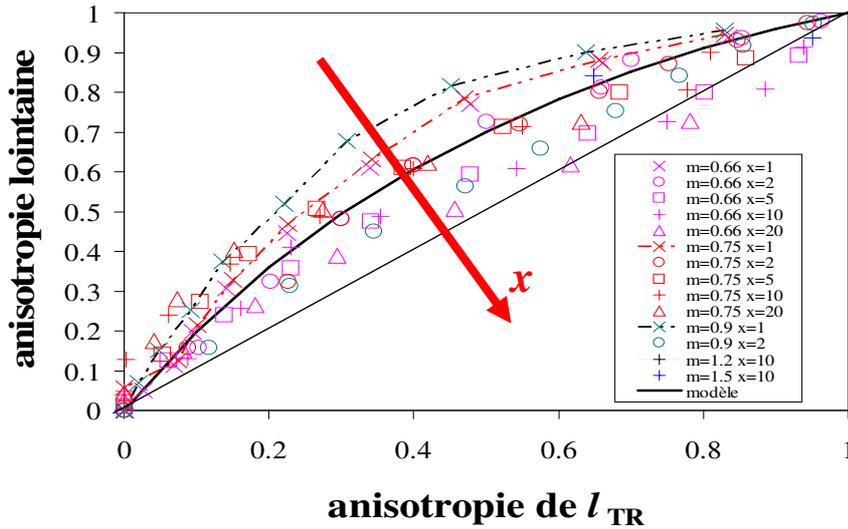


FIGURE 3.24 – Anisotropie lointaine en fonction de l'anisotropie de la longueur de transport $\langle l_{\text{TR}} \rangle$

La figure 3.24 représente l'anisotropie lointaine en fonction de l'anisotropie de la longueur de transport pour différents indices de réfraction relatifs m , différents paramètres de taille x et différentes anisotropies de particule ϵ . L'anisotropie lointaine est corrélée à l'anisotropie de la longueur de transport $A_{l_{\text{TR}}}$ quel que soit x , m et ϵ . La relation (3.38) donne la loi permettant de relier l'anisotropie lointaine à l'anisotropie de la longueur de transport dans la limite de $x \geq 5$. On obtient alors une droite de corrélation.

$$A_{\text{loin}} = 1 - \left(\frac{1 - A_{l_{\text{TR}}}}{1 + A_{l_{\text{TR}}}} \right) \quad (3.38)$$

Pour les tailles de particules inférieures à 5, l'anisotropie lointaine suit une loi non-linéaire en fonction de l'anisotropie de la longueur de transport. Pour les tailles de particules relativement grandes ($x \geq 5$), on tend vers une loi linéaire, l'anisotropie lointaine est égale à l'anisotropie de la longueur de transport. L'origine physique de l'anisotropie lointaine provient donc de l'anisotropie de la diffusion suivant les directions perpendiculaire et parallèle à la direction d'orientation des particules.

On a montré que précédemment que certains auteurs résolvaient l'équation du transfert radiatif à l'aide d'une équation de diffusion faisant intervenir un tenseur de diffusion. Ce tenseur de diffusion fait intervenir une longueur de transport parallèle et une longueur de transport perpendiculaire à l'origine de l'anisotropie lointaine. Nos travaux montrent ainsi que cette approche est correcte uniquement dans le cas de particules dont le paramètre de taille $x \geq 5$.

Corrélation entre l'anisotropie lointaine et le facteur de forme

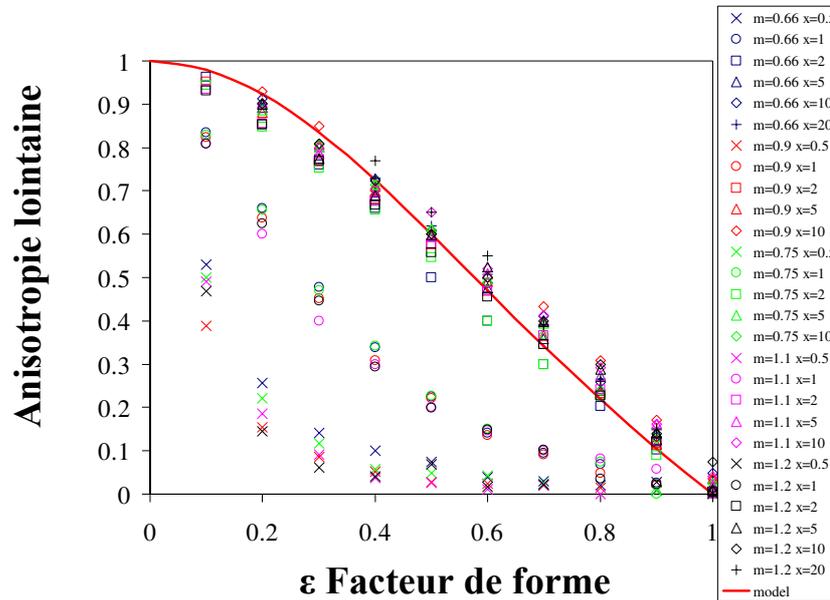


FIGURE 3.25 – Variation de l'anisotropie lointaine en fonction du facteur de forme ϵ . Courbe en trait plein : modèle correspondant à la relation (3.41)

La figure 3.25 représente l'évolution de l'anisotropie lointaine en fonction du facteur de forme ϵ pour différents indices de réfraction relatifs m et différents paramètres de taille

x . On présente également l'ensemble des simulations de Monte Carlo effectuées. L'anisotropie lointaine est définie comme la limite de la variation radiale d'anisotropie lorsque la distance radiale tend vers l'infini. L'anisotropie lointaine augmente lorsque le paramètre de taille augmente et également lorsque le facteur de forme de la particule diminue. Pour les paramètres de taille supérieurs ou égaux à 5, on atteint une limite qui correspond au début du domaine de l'optique géométrique. Pour les particules de paramètres de taille très élevés, on atteint la limite de diffraction. Mais il semble que dans les deux cas, la limite atteinte soit identique.

Dans le domaine de l'optique géométrique, pour des particules d'assez grandes tailles devant la longueur d'onde, la section efficace de dispersion est proportionnelle à la section projetée dans la direction de propagation de la lumière. Ainsi, la section efficace de dispersion dans la direction perpendiculaire à l'axe d'orientation de la particule est égale à πab tandis que la section efficace de dispersion suivant l'axe d'orientation de la particule est égale à πa^2 (voir figure 3.17). La longueur de transport est proportionnelle au rapport du volume et de la section efficace de dispersion alors on obtient la relation (3.40). D'autre part, l'intensité (m^{-2}) est proportionnelle à l'inverse du carré de la longueur de transport à une position radiale donnée. Ainsi, l'anisotropie de l'intensité peut être décrite par :

$$A_{\text{loin}} = \frac{\frac{1}{l_{\text{TR}\perp}^2} - \frac{1}{l_{\text{TR}\parallel}^2}}{\frac{1}{l_{\text{TR}\perp}^2} + \frac{1}{l_{\text{TR}\parallel}^2}} \quad (3.39)$$

Soit :

$$A_{\text{loin}} = \frac{\left(\frac{\frac{4}{3}\pi a^2 b}{\pi a^2}\right)^2 - \left(\frac{\frac{4}{3}\pi a^2 b}{\pi ab}\right)^2}{\left(\frac{\frac{4}{3}\pi a^2 b}{\pi a^2}\right)^2 + \left(\frac{\frac{4}{3}\pi a^2 b}{\pi ab}\right)^2} \quad (3.40)$$

Soit :

$$A_{\text{loin}} = \frac{1 - \varepsilon^2}{1 + \varepsilon^2} \quad (3.41)$$

Connaissant l'anisotropie lointaine de l'image, il sera donc aisé surtout dans la limite de l'optique géométrique et à la limite de la diffraction de déterminer l'anisotropie des objets sans se soucier de l'indice de réfraction relatif ou du paramètre de taille en utilisant la relation (3.41).

Pour les particules de petites tailles ($x \leq 2$), les courbes de la figure 3.25 permettent d'inverser directement l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion en terme de facteur de forme.

3.6 Inversion du facteur de forme

Pour déterminer l'anisotropie des objets ε à partir de l'image de rétrodiffusion, la procédure suivante peut être suivie :

1. La première étape consistera à mesurer la décroissance radiale d'intensité $I(\rho)$ obtenue en faisant la moyenne des intensités sur tous les angles θ et de l'ajuster au modèle de Haskell (relation (1.17)) afin de déterminer la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$.
2. La seconde étape consistera à déterminer l'anisotropie radiale $A(\rho / \langle l_{TR} \rangle)$ de l'image de rétrodiffusion. A partir de cette courbe, on prélève l'anisotropie proche ou l'anisotropie lointaine de l'image de rétrodiffusion. Deux cas de figures se présentent alors en fonction de la valeur du paramètre d'ordre x des particules.
 - Dans le cas où le paramètre de taille $x \leq 5$, les figures 3.17a) et 3.17b) permettent d'inverser directement l'anisotropie proche ou lointaine de l'image de rétrodiffusion en terme d'anisotropie d'objet.
 - En revanche, si le paramètre de taille des particules est supérieur à 5 alors on se sert des relations (3.35) et (3.41) pour déterminer l'anisotropie des objets à partir de l'image de rétrodiffusion.

Par ailleurs, si la longueur de transport moyenne est de l'ordre de la taille de l'image alors le paramètre discriminant sera l'anisotropie proche. Si la longueur de transport moyenne est de plusieurs fois supérieure à la taille de l'image alors le paramètre discriminant sera l'anisotropie lointaine.

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés au transport incohérent de lumière dans une collection de particules anisotropes. Nous avons dans un premier temps effectué un bref rappel des travaux de Julien Mougel [65] sur le transport incohérent de lumière dans une collection de particules sphériques. Ce qui nous a permis d'introduire les grandeurs caractéristiques de diffusion dans une collection de particules sphériques : la longueur de dispersion l_s qui est la distance moyenne entre deux événements de dispersion ; la longueur d'absorption l_a et enfin la longueur de transport l_{TR} qui est le libre parcours moyen des

photons.

Dans une collection de particules anisotropes, ces grandeurs de diffusion dépendent de l'angle ξ entre la direction incidente de l'onde électromagnétique et l'axe d'orientation de la particule. Nous avons alors introduit un nouveau paramètre de diffusion : la longueur de transport moyenne $\langle l_{\text{TR}} \rangle$. Il s'agit de la longueur de transport du milieu isotrope équivalent quand toutes les particules sont orientées aléatoirement. Nous avons développé des simulations de Monte Carlo du transport incohérent de lumière dans une collection de particules anisotropes. Le transport de lumière dans ce type de milieu dépend de l'indice de réfraction relatif m , du paramètre de taille des particules x , de la fraction volumique en particules φ_v et du facteur de forme de la particule ε . Nous avons montré que la longueur de transport moyenne avait un sens et qu'il était possible de la déterminer par moyennage angulaire de l'image de rétrodiffusion.

Une fois cette grandeur déterminée, nous nous sommes intéressés à l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion. Elle présente une double anisotropie : la première anisotropie, proche du point d'impact du faisceau laser, suivant la direction perpendiculaire de l'axe d'orientation de la particule, c'est l'anisotropie proche et la seconde, loin du point d'impact du faisceau laser, suivant l'axe d'orientation de la particule, c'est l'anisotropie lointaine. L'analyse globale de l'influence du facteur de forme ε , du paramètre de taille x et de l'indice de réfraction relatif m sur ces deux paramètres nous a montré qu'il était possible d'inverser directement les images de rétrodiffusion en terme de facteur de forme quelle que soit l'indice de réfraction relatif lorsque la taille des particules est supérieure à la longueur d'onde. En pratique, si la taille de l'image est du même ordre de grandeur que la longueur de transport moyenne, l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion peut être directement inversée en terme de facteur de forme à partir de l'anisotropie proche. Si la taille de l'image est plus petite que la longueur de transport moyenne, l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion peut être inversée directement en terme de facteur de forme à partir de l'anisotropie lointaine.

Par ailleurs, nous avons également montré que l'origine physique de l'anisotropie proche est issue de l'anisotropie azimutale de la fonction de phase à incidence normale. Pour les particules dont le paramètre de taille $x \geq 5$, nous avons montré qu'il est possible de relier l'anisotropie proche à l'anisotropie ε des particules. Enfin, l'anisotropie lointaine est quant à elle corrélée à l'anisotropie de la diffusion dans les directions perpendiculaire et parallèle. Pour les paramètres de taille supérieurs ou égaux à 5, nous avons réussi à relier l'anisotropie lointaine à l'anisotropie ε des particules.

Chapitre 4

Applications

Sommaire

4.1 Etude de la déformabilité des émulsions	104
4.2 Etude de la déformation des globules rouges	122

Dans ce chapitre, nous allons voir deux applications de notre technique de caractérisation de l'anisotropie des objets à partir du transport incohérent de lumière. La première application porte sur la détermination de la tension interfaciale d'une émulsion et la seconde application porte sur la mesure du module de cisaillement de globules rouges pour un échantillon de sang humain.

Dans la première partie, nous utiliserons notre technique de caractérisation pour mesurer la tension interfaciale d'émulsions concentrées constituées de gouttelettes d'huile dispersées dans une solution de gomme de guar. Nous confronterons nos résultats avec des mesures de la tension interfaciale obtenue à l'aide d'un dispositif constitué de deux bandes parallèles. Dans la seconde partie, nous nous servirons de notre technique de caractérisation pour mesurer le module de cisaillement des globules rouges. Nous comparerons nos résultats avec ceux obtenus grâce à différentes techniques de mesure.

4.1 Etude de la déformabilité des émulsions

4.1.1 Bibliographie sur la déformations des gouttelettes

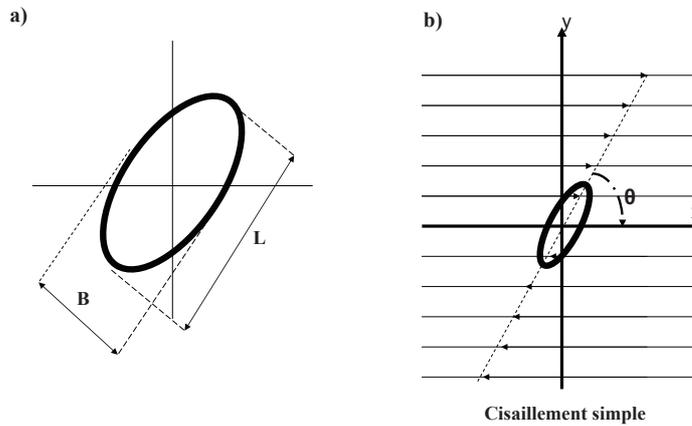


FIGURE 4.1 – Gouttelette soumise à un écoulement de cisaillement simple

On appelle émulsion, la dispersion d'un fluide dans un autre fluide non miscible. Elles se rencontrent aussi bien dans l'agro-alimentaire (lait, mayonnaise, etc.), que dans les cosmétiques (crèmes, lotions, etc.) ou la pharmacie (crèmes, dérivés hormonaux, etc.). On en rencontre également dans l'industrie pétrolière (fluides de forage, de production, de raffineries, etc.). En pratique, on obtient une émulsion en appliquant aux deux fluides une énergie mécanique. L'interface entre les deux fluides se déforme jusqu'à l'apparition des gouttelettes.

Les gouttelettes peuvent se déformer sous l'action des forces visqueuses ou d'inertie. En générale, la rupture des gouttelettes peut être appréhendée comme étant la compétition entre deux types de forces : une force externe qui tend à déformer les gouttelettes et une force interne qui tend à conserver la forme initiale des gouttelettes. Le nombre capillaire C_a est le rapport entre les forces visqueuses et les forces de surface. La relation (4.1) est la définition du nombre capillaire pour un écoulement de cisaillement simple :

$$C_a = \frac{\eta_c \dot{\gamma} R}{\gamma} \quad (4.1)$$

avec η_c la viscosité de la phase continue, $\dot{\gamma}$ le gradient de vitesse (s^{-1}), γ la tension interfaciale (N/m) et R le rayon de la gouttelette (m). La tension interfaciale correspond

à la tension qui existe entre deux liquides non miscibles ou qui se manifeste à l'interface entre un solide et un liquide.

La rupture des gouttelettes survient lorsque le nombre capillaire est supérieur ou de l'ordre de 1 dans le cas d'un écoulement de cisaillement, c'est-à-dire lorsque la force externe surpasse la force interne. Il existe donc un nombre capillaire critique Ca_{cr} au dessus duquel les gouttelettes se brisent. Grace *et al.* [30] montre que ce nombre capillaire critique dépend du rapport des viscosités q . Le nombre capillaire critique pour un écoulement élongationnel est identique à celui d'un écoulement de cisaillement ($Ca_{cr} \approx 0.5$). L'écoulement de cisaillement simple est moins efficace que l'écoulement élongationnel pour briser une gouttelette.

Définition de la déformabilité d'une gouttelette

Les premières études sur la déformabilité des gouttelettes ont été menées par Taylor [84, 83] dans un fluide newtonien. Taylor [83] calcule le champ de pression et le champ de vitesse à l'intérieure et à l'extérieure de la gouttelette en résolvant l'équation de Stokes pour un écoulement laminaire. On définit la déformabilité D d'une gouttelette en régime de faibles déformations grâce à la relation (4.2) :

$$D = \frac{L - B}{L + B} \quad (4.2)$$

Où L est la dimension la plus grande de la gouttelette tandis que B est la dimension la plus petite de la gouttelette (voir figure 4.1).

Déformation statique En régime de faibles déformations et pour un écoulement laminaire, les résultats de Taylor [84, 83] indiquent que la déformabilité dépend de deux paramètres : le nombre capillaire C_a (relation (4.1)) et le rapport des viscosités $q = \eta_d/\eta_c$ où η_d est la viscosité de la phase dispersée et η_c est la viscosité de la phase continue. Lorsque les forces de surfaces dominent les forces visqueuses, c'est-à-dire que $C_a \ll 1$ alors on exprime la déformabilité à partir de la relation (4.3) [84, 83].

$$D = C_a \frac{19q + 16}{16q + 16} \quad (4.3)$$

Cette relation est valable uniquement pour des valeurs de q pas trop élevées (c'est-à-dire proche de 1) et pour de faibles déformations. La quantité $(19q + 16)/(16q + 16)$ variant entre 1 (lorsque q tend vers 1) et 1.187 (lorsque q tend vers l'infini), de ce fait

on peut considérer que la déformabilité est pratiquement égale au nombre capillaire C_a . Dans le cas où les forces visqueuses sont égales aux forces de surface, c'est-à-dire $C_a = 1$ et $q \gg 1$, Taylor [84, 83] exprime la déformabilité à partir de la relation (4.4).

$$D = \frac{5}{4}q \quad (4.4)$$

Taylor [84, 83] observe que les résultats expérimentaux sont en accord avec sa théorie dans le cas des faibles déformations, pour un écoulement hyperbolique plan et pour un cisaillement simple.

Toujours dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, Cox [75] étend la théorie de Taylor pour tous les rapports de viscosités q et pour de faibles déformations (relation (4.5)).

$$D = \frac{5(19q + 16)}{4(q + 1)\sqrt{(\frac{20}{C_a})^2 + (19q)^2}} \quad (4.5)$$

Il détermine également l'évolution en fonction du temps t de la déformabilité de la gouttelette grâce à la relation (4.6) en écoulement de cisaillement simple.

$$D(t) = D_\infty(1 - e^{-\frac{\gamma t}{\eta_d r}}) \quad (4.6)$$

Où r est le rayon de la gouttelette, D_∞ est la déformabilité en régime stationnaire, soit la relation (4.5), η_d est la viscosité de la phase dispersée et γ est la tension interfaciale.

angle d'orientation Lorsqu'une gouttelette est soumise un écoulement de cisaillement simple, celle-ci tourne suivant la direction de l'écoulement et l'axe de symétrie de la gouttelette fait un angle θ avec la direction de l'écoulement (voir figure 4.1). La relation (4.7) est la relation proposée par Cox [75] pour définir l'angle θ entre la direction de l'écoulement et l'axe de symétrie de la gouttelette déformée en fonction du nombre capillaire C_a .

$$\theta = \arctan\left(0.359C_a^{-\frac{3}{4}}\right) \quad (4.7)$$

relaxation de la gouttelette Lorsqu'une gouttelette est soumise à l'action d'un champ extérieur tel qu'un écoulement de cisaillement simple, la gouttelette se déforme. Une fois que la gouttelette atteint sa forme finale, si on arrête l'écoulement, la gouttelette reprend sa forme sphérique originelle : c'est le phénomène de relaxation de la gouttelette. Dans l'hypothèse de faibles déformations, il est possible de prédire la déformabilité de la gouttelette au cours du temps $D(t)$ grâce à la relation (4.8) proposée par Rallison [73] :

$$D = D_0 \exp \left(\frac{40(q+1)}{(2q+3)(19q+16)} \tau \right) \quad (4.8)$$

avec $\tau = \gamma t / \eta_c R_0$, R_0 étant le rayon de la gouttelette, D_0 étant la déformation à l'instant initial $t = 0$ et η_c la viscosité de la phase continue.

Les études menées par Megias-Alguacil *et al.* [54, 53], Guido [32] ont permis de montrer qu'il était possible de mesurer la tension interfaciale à l'aide de la relaxation d'une gouttelette. Dans ces études, on mesure la tension interfaciale entre deux fluides immiscibles newtoniens à l'aide de différentes méthodes parmi lesquelles la méthode basée sur le phénomène de relaxation. Guido [32] mesure la tension interfaciale du mélange polyisobutylène-polydimethylsiloxane et compare cette valeur avec celle mesurée par d'autres auteurs tels que Sigillo *et al.* [81] sur le même système. La valeur obtenue par Guido [32] est en accord avec celles de la littérature. On trouve dans la littérature des études comme celles de Megias *et al.* [53] qui mesure la tension interfaciale d'un mélange de polyéthylène glycoethanol-eau à l'aide de ces trois méthodes. Il montre que globalement ces techniques donnent les mêmes résultats à condition de respecter les conditions de validité de chaque technique.

En résumé, les techniques actuelles de mesure de la tension interfaciale sont basées sur les relations (4.2-4.8). En appliquant un écoulement de cisaillement simple à une gouttelette, on peut déterminer la tension interfaciale : soit en mesurant la déformabilité de la gouttelette en fonction du cisaillement [84, 83], soit en mesurant l'orientation en fonction du cisaillement [75], soit en mesurant la déformabilité en fonction du temps [75], ou enfin soit à partir de la relaxation au cours du temps de la gouttelette [73].

4.1.2 Système étudié : dispersion d'une solution de gomme de guar dans une huile silicone

La gomme de guar constitue la phase continue tandis qu'une huile silicone constitue la phase dispersée de l'émulsion. Un tensio-actif est utilisé pour améliorer la stabilité de l'émulsion (le polyoxyéthylène sorbitan monolaurate).

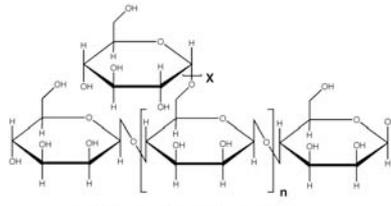


FIGURE 4.2 – Structure moléculaire de la galactomannane n = Degrée de polymérisation, X = Degrée de substitution de galactose

Guar La gomme de guar est extraite de la graine de la légumineuse *Cyamopsis tetragonoloba*, où elle sert de réserve d'aliments et d'eau. La gomme de guar est composée principalement de galactomannane, une fibre végétale. Le galactomannane est un polysaccharide (polymère d'ose) présent dans de nombreuses graines. Le galactomannane est un polymère linéaire composé d'une chaîne de monomères de mannose auxquelles sont ramifiées par un pont constitué d'une unité de galactose. Le ratio entre le mannose et le galactose est de 2 pour 1, ainsi en moyenne une unité de galactose est ramifiée tous les trois mannoses sur la chaîne (figure 4.2). La gomme de guar est un additif alimentaire (E412) largement utilisé dans l'industrie agro-alimentaire. Elle permet notamment d'alléger certaines préparations en remplaçant le rôle de l'amidon, de sucres ou de matières grasses. La gomme de guar est utilisée comme épaississant, stabilisant et émulsifiant dans les aliments grâce à sa texture uniforme et ses propriétés pour former des gels. Elle peut être utilisée dans les sauces, soupes, crèmes glacées et sorbets, produits de boulangerie et de pâtisserie, poudres, etc.

Huile silicone Les huiles silicones utilisées sont les huiles silicones AK500 ($\eta_{dyn} = 560$ mPa.s, masse volumique (25°C) = 0.969 g/cm³) produites par la société Wacker-Chemie.

Procédure de fabrication des émulsions

La préparation des émulsions a été réalisée par Andre Braun *et al.* [17]. La préparation des émulsions débute par le mixage de 1.25% en fraction massique de poudre de guar dans de l'eau déminéralisée à 70°C pendant une heure. Afin d'éliminer les impuretés, la solution est centrifugée pendant une heure à 50°C. La solution obtenue est turbide et d'aspect crémeux. L'ajout de 0.1 % en fraction massique d'azide de sodium empêche la formation des bactéries. Les bactéries accélèrent la dégradation de la chaîne de monomères de mannose provoquant ainsi une diminution de la viscosité. Une quantité assez importante de surfactants (environ 2% en fraction massique de tensioactifs) permet ainsi de couvrir la surface entière des gouttelettes surtout lorsque les gouttelettes se déforment lors du cisaillement.

Les tensioactifs et de l'azide de sodium sont dispersés dans la solution de guar à l'aide d'un appareil de dispersion Polytron DT6000 (Kinematika, CH) à une vitesse de rotation de 5000 tours/minute pendant 180s. La fraction de la phase dispersée (huile silicone) varie entre 10 % et 40 %. L'huile silicone est dispersée à l'aide du Polytron dans la phase continue. Le stockage de l'émulsion d'au moins 30 heures dans un réfrigérateur permet la suppression d'éventuelles bulles d'air qui se seraient introduites au cours de la préparation.

La viscosité de la phase continue (guar) dépend de la fraction massique en guar utilisée pour fabriquer l'émulsion. La figure 4.3b) représente la viscosité du guar en fonction de la contrainte pour deux fractions massiques différentes. La viscosité de la phase continue à 1.4 % est plus élevée que celle à 1.25 %. Trois types d'émulsions ont été étudiées au cours de nos expériences : AK500 N°9, AK500 N°4 et AK500 N°7. Le tableau 4.1.2 récapitule les caractéristiques de chaque émulsion.

Emulsion	AK500N°7	AK500N°4	AK5008N°9
% massique en guar	1.4	1.25	1.25
% massique en huile silicone AK500	20	20	40

TABLE 4.1 – Pourcentage massique de guar et en huile silicone pour chaque émulsion

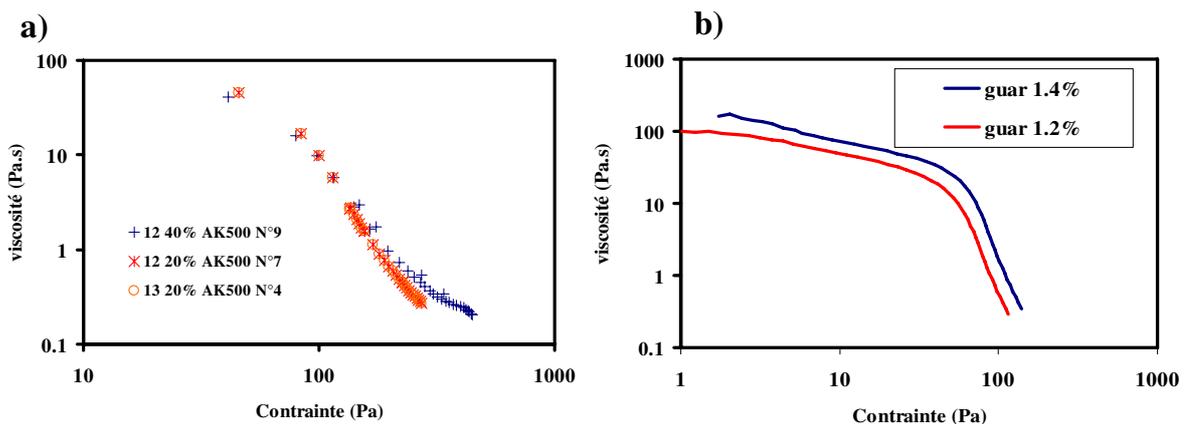


FIGURE 4.3 – a) Viscosités des différentes émulsions AK500 N°7, AK500 N°4 et AK500 N°9 en fonction de la contrainte b) Viscosité pour différents pourcentages massiques en guar en fonction de la contrainte

La figure 4.3a) représente la viscosité des différentes émulsions étudiées en fonction de la contrainte. Lorsque la contrainte augmente la viscosité diminue : le fluide possède donc un comportement rhéofluidifiant. Les viscosités des émulsions AK500 N°7 et AK500 N°4 sont identiques car les deux émulsions possèdent la même fraction massique en huile silicone (20%). Enfin, la viscosité de l'émulsion AK500 N°9 est supérieure aux deux autres car la fraction massique de celle-ci est supérieure (40%) à celle des deux autres émulsions (20%).

4.1.3 Mesure de la déformabilité des gouttelettes d'une émulsion par diffusion de lumière

L'étude de la déformation des gouttelettes d'une émulsion est réalisée sur les échantillons AK500 N°7, AK500 N°9 et AK500 N°4. On cisaille les échantillons sur un rhéomètre en utilisant une géométrie plan-plan de 5 cm de diamètre avec un entrefer de 2 mm. On réalise des paliers successifs de cisaillement entre 1 s^{-1} et 1000 s^{-1} et simultanément on réalise l'acquisition de la matrice de Mueller. Cependant, nous nous intéressons uniquement à l'élément M_{11} de la matrice de Mueller car nous nous intéressons uniquement au transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu anisotrope .

Images de rétrodiffusion en fonction du cisaillement

La figure 4.4 représente les images de rétrodiffusion obtenues expérimentalement avec les différents échantillons AK500 pour différents cisaillements. En dehors du centre de l'image de rétrodiffusion où on perçoit une légère anisotropie, l'image de rétrodiffusion ne semble pas être très affectée par le cisaillement : la longueur de transport reste donc inchangée lorsqu'on augmente le cisaillement. Par ailleurs, les images de rétrodiffusion des échantillons AK500 N°7 et N°4 sont identiques. En revanche, elles sont différentes de celles de l'échantillon AK500 N°9. La longueur de transport de l'échantillon AK500 N°9 est donc différente de celle des deux autres échantillons.

L'anisotropie de l'image est donc perceptible mais très faible. Nous décidons alors d'effectuer la comparaison en différence d'images. En clair, nous soustrayons expérimentalement l'image de rétrodiffusion obtenue à un cisaillement quelconque avec l'image de rétrodiffusion obtenue à un cisaillement de 1 s^{-1} , c'est-à-dire lorsque l'image de rétrodiffusion expérimentale est isotrope.

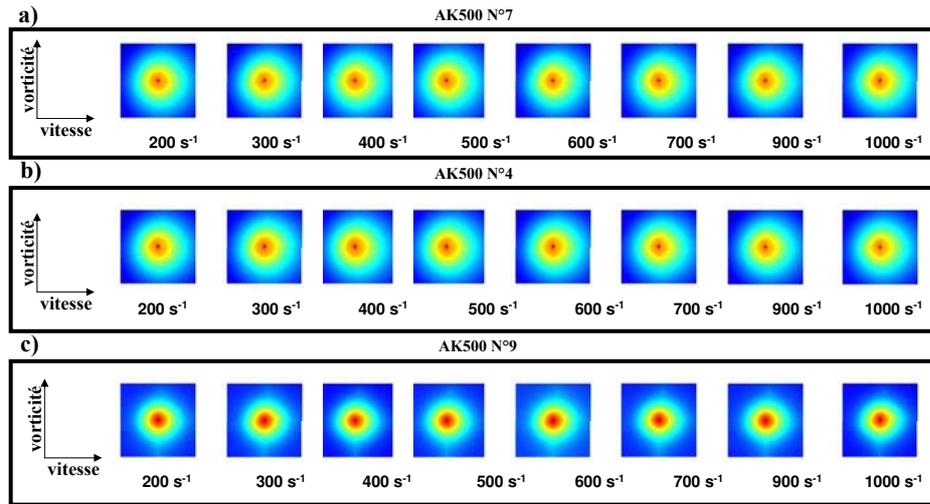


FIGURE 4.4 – Images de rétrodiffusion expérimentales à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°7, b) pour l'émulsion AK500 N°4 c) pour l'émulsion AK500 N°9

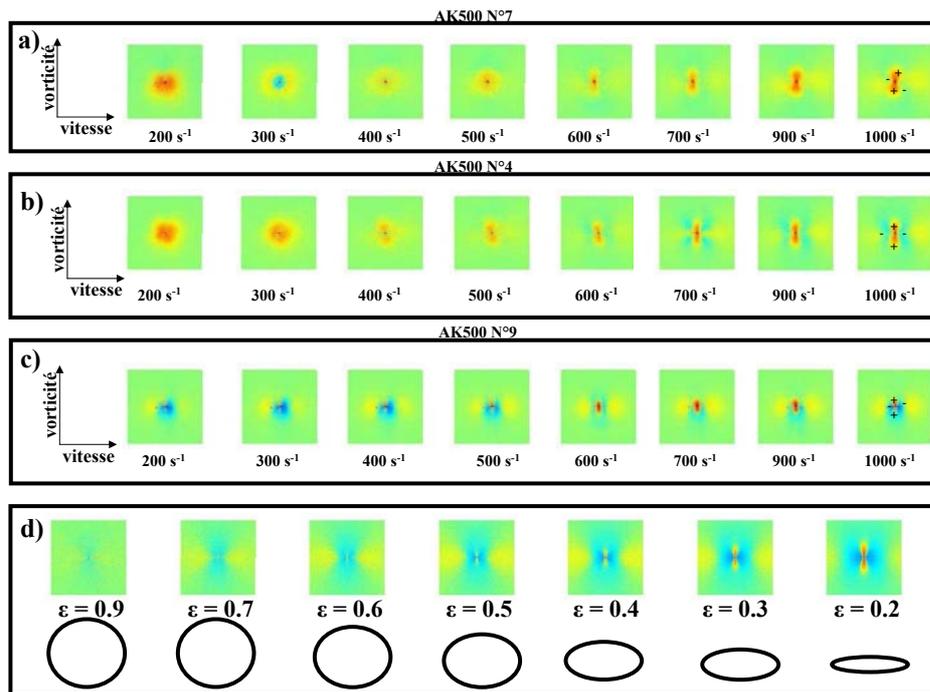


FIGURE 4.5 – Différences d'images de rétrodiffusion expérimentales à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°7, b) pour l'émulsion AK500 N°4 c) pour l'émulsion AK500 N°9 d) Différences d'images de rétrodiffusion pour différents facteurs de forme obtenus à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.1$, $x = 10$

La figure 4.5d) représente les images de rétrodiffusion obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo en différence d'images. L'image de rétrodiffusion présente des lobes rouges et bleus. On observe sur la figure 4.5d) que lorsque le facteur de forme augmente l'intensité des lobes augmente. Par conséquent, la déformation d'une particule s'accompagne d'une augmentation de l'intensité des lobes rouges et bleus. Les lobes bleus indiquent le sens d'orientation des gouttelettes sous cisaillement tandis que les lobes rouges indiquent la direction perpendiculaire soit la direction du vecteur vorticité.

Les figures 4.5a)b)c) représentent les images de rétrodiffusion obtenues expérimentalement à l'aide des échantillons AK500 en différence d'images. On observe sur ces figures des lobes rouges et bleus. Sur les figures 4.5a)b)c), l'intensité des lobes augmente lorsque le cisaillement augmente. Par conséquent, sur la figure 4.5a)b)c), l'apparition des lobes rouges et bleus indiquent que les particules en l'occurrence les gouttelettes se déforment sous cisaillement. Les gouttelettes se déforment suivant la direction du vecteur d'orientation perpendiculairement à la direction du vecteur vorticité.

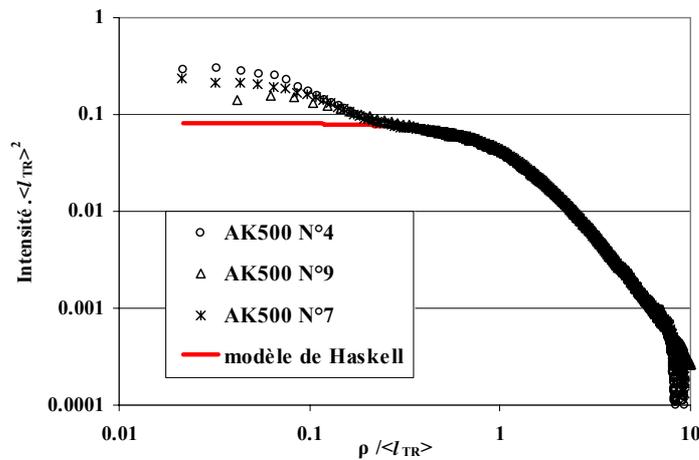


FIGURE 4.6 – Variations radiales d'intensité normalisées en milieu épais des différents échantillons

A partir des images de rétrodiffusion (voir figure 4.4), nous effectuons une mesure de la longueur de transport moyenne de chaque échantillon sous cisaillement. On obtient la longueur de transport moyenne par ajustement de la variation radiale d'intensité sur le modèle de Haskell (relation (1.17)). La figure 4.6 représente l'ajustement de la variation radiale d'intensité sur le modèle de Haskell pour un cisaillement de $100s^{-1}$ dans le cas des trois émulsions AK500. Cette ajustement permet de constater que quel que soit le cisaillement la variation radiale d'intensité reste identique. Le tableau 4.1.3 récapitule les

longueurs de transport obtenues pour chaque échantillon AK500.

Comme nous l'avions suggéré à partir des images de rétrodiffusion, la longueur de transport moyenne des échantillons AK500 N°7 et AK500 N°4 est identique et diffère de celle de l'échantillon AK500 N°9. La longueur de transport étant inversement proportionnelle à la fraction volumique, lorsqu'on augmente la fraction volumique la longueur de transport moyenne décroît. La fraction volumique de l'échantillon AK500 N°9 est supérieure à celle des échantillons AK500 N°7 et N°4, sa longueur de transport est donc logiquement plus faible.

Emulsion	AK500 N°7	AK500 N°4	AK500 N°9
$\langle l_{\text{TR}} \rangle$ (mm)	0.91	0.908	0.48

TABLE 4.2 – Longueurs de transport moyenne de chaque émulsion

Connaissant les indices de réfraction des phases continues ($N_c=1.33$) et dispersé ($N_d=1.406$), il est possible grâce à l'étude du transport incohérent de lumière polarisée de mesurer la taille moyenne en volume des gouttelettes. Le tableau 4.1.3 indique les valeurs des rayons obtenus à l'aide du transport de polarisation de lumière. Les valeurs sont proches de celles trouvées précédemment par diffraction. Ainsi, ces valeurs de rayons donnent des paramètres de taille supérieurs à 5.

Enfin, pour les milieux très concentrés, Dillet [23] a montré que la diffusion dépendante par le biais du facteur de structure devait être prise en compte dans les simulations de Monte Carlo pour avoir des résultats proches de la réalité.

AK500	N°7	N°4	N°9
R_{moyen} en μm	0.7	0.8	0.56

TABLE 4.3 – Taille moyenne pour chaque émulsion par polarisation

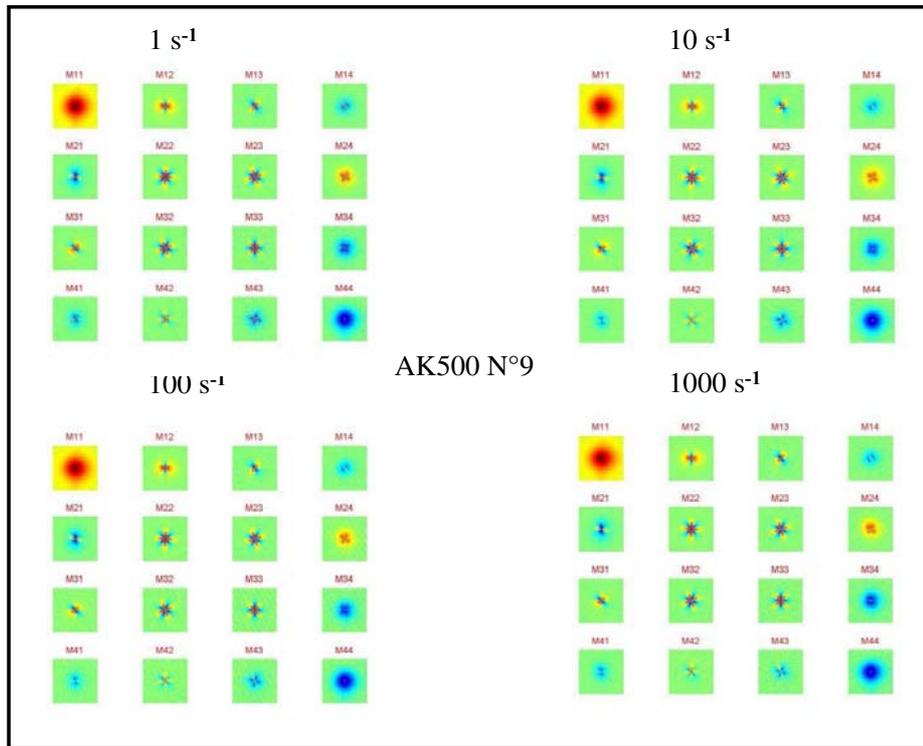


FIGURE 4.7 – Matrices de Mueller expérimentales à différents cisaillements pour l’émulsion AK500 N°9

La figure 4.7 représentent les matrices de Mueller obtenues dans le cas de l’émulsion AK500 N°9 pour différents cisaillements . Qualitativement, on observe une constance des effets de polarisations quelque soit le cisaillement. Cette dernière observation associée au fait que la longueur de transport moyenne de chaque émulsion ne varie pas en fonction du cisaillement permet donc de conclure que l’anisotropie de l’image de rétrodiffusion observée pour chaque émulsion provient uniquement de la déformation des gouttelettes et les gouttelettes ne sont pas rompues par le cisaillement. Nous allons donc dans la suite quantifier cette déformation à l’aide de la technique développée lors du chapitre 3.

Analyse des variations angulaires d'intensité expérimentale

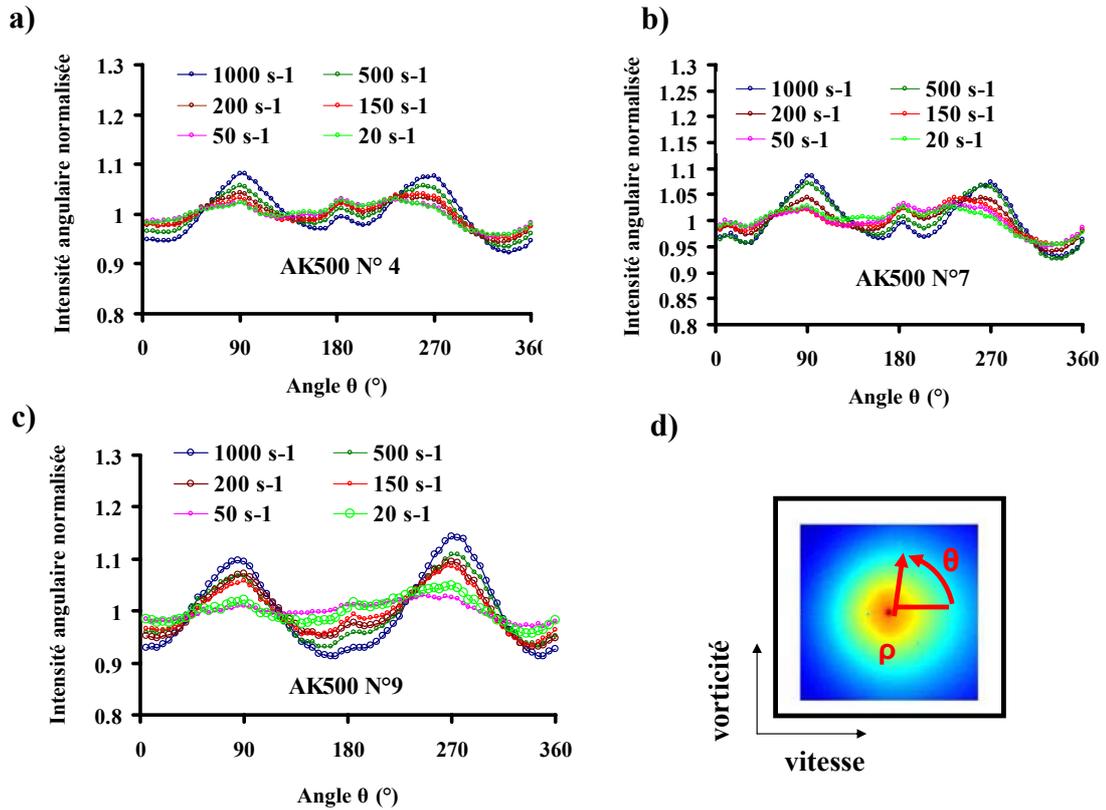


FIGURE 4.8 – variations angulaires d'intensité à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°4 b) pour l'émulsion AK500 N°7 c) pour l'émulsion AK500 N°9 d) Exemples d'images de rétrodiffusion expérimentales

Nous allons à présent appliquer la méthodologie d'analyse des images de rétrodiffusion anisotropes établie au chapitre précédent. Ainsi, une fois la longueur de transport moyenne déterminée, nous décidons d'étudier l'évolution de la variation angulaire d'intensité à différents cisaillements pour chaque émulsion. Les simulations de Monte Carlo ont montré que l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion se situe à cette position de l'image. Les figures 4.8a)b)c) représentent la variation angulaire d'intensité à différents cisaillements pour chaque émulsion AK500. Nous observons une augmentation de la variation angulaire d'intensité lorsque le cisaillement augmente.

Analyse des variations radiales d'anisotropie

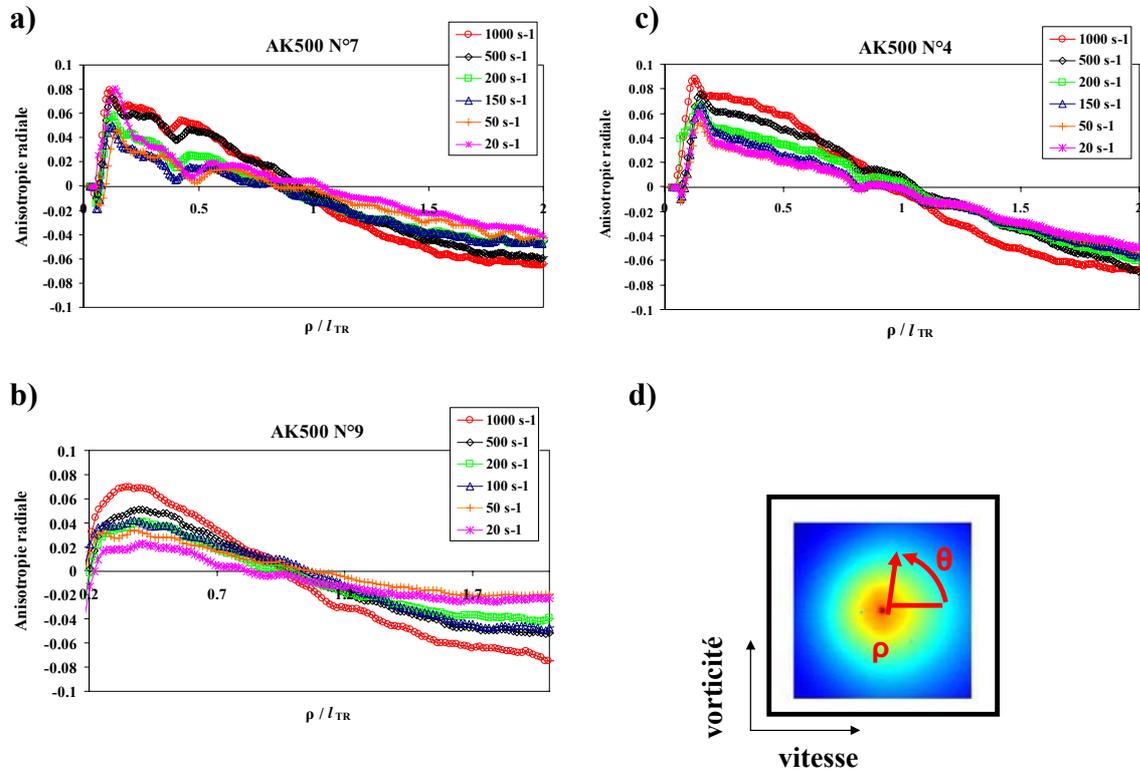


FIGURE 4.9 – variations radiales d’anisotropie à différents cisaillements a) pour l’émulsion AK500 N°4 b) pour l’émulsion AK500 N°7 c) pour l’émulsion AK500 N°9 d) Exemples d’images de rétrodiffusion expérimentales

Nous décidons donc à partir des variations angulaires à différentes distances ρ du barycentre de l’image de déterminer la variation radiale d’anisotropie définie par la relation (3.23). Les figures 4.9 représentent la variation radiale d’anisotropie de chaque image de rétrodiffusion à différents cisaillements. Nous observons que la variation radiale d’anisotropie augmente lorsque le cisaillement augmente quelque soit l’échantillon étudié. La variation radiale croît jusqu’à un maximum d’anisotropie. Le maximum d’anisotropie correspond à l’anisotropie proche de l’image de rétrodiffusion. Nous décidons alors à partir des variations radiales d’anisotropie de mesurer l’anisotropie proche de chaque image de rétrodiffusion expérimentale.

Comparaison entre les mesures expérimentales et les simulations de Monte Carlo

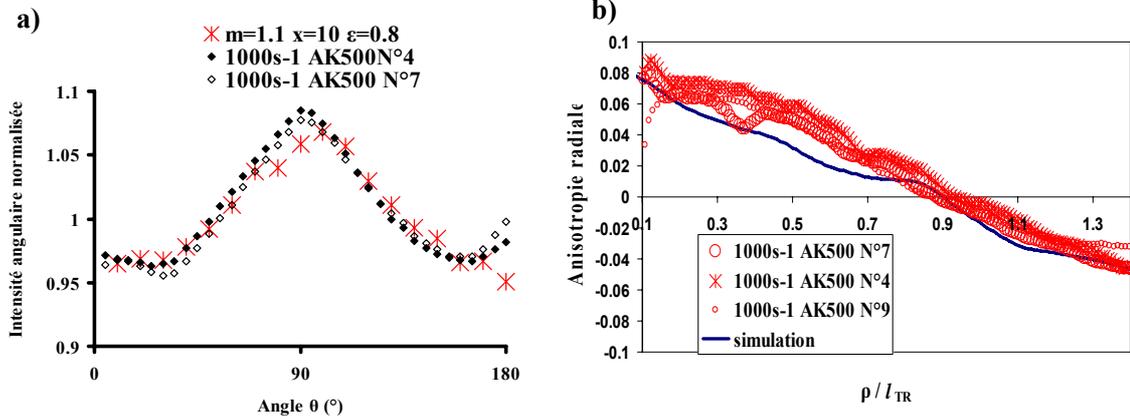


FIGURE 4.10 – a) Comparaison des variations angulaires d’intensité obtenue par simulation ($m=1.1$, $x=10$, $\epsilon=0.8$) et obtenues expérimentalement b) Comparaison des variations radiales d’intensité obtenue par simulation ($m=1.1$, $x=10$, $\epsilon=0.8$) et obtenues expérimentalement

La figure 4.10a) permet de comparer la variation angulaire d’intensité obtenue expérimentalement avec celle obtenue à l’aide des simulations de Monte Carlo avec les paramètres de simulations suivant : $x = 10$, $m = 1.1$ et $\epsilon=0.8$. Le seul paramètre ajustable est le facteur de forme ϵ . Nous constatons qu’il y a une bonne correspondance entre la variation angulaire d’intensité expérimentale et celle obtenue par simulation directe . Sur la figure 4.10b), nous avons superposé les variations radiales d’anisotropie expérimentales et les variations radiales d’anisotropie obtenues à l’aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.1$ et $x = 10$ et $\epsilon = 0.8$. Nous observons une bonne correspondance entre les simulations et les résultats expérimentaux comme précédemment.

L’augmentation de la variation angulaire d’intensité et donc de la variation radiale d’anisotropie en fonction du cisaillement traduit une augmentation du facteur de forme des particules en fonction du cisaillement et par conséquent de la déformation des gouttelettes. Nous en concluons donc que lorsque le cisaillement augmente, la déformation des gouttelettes augmente.

Inversion de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion

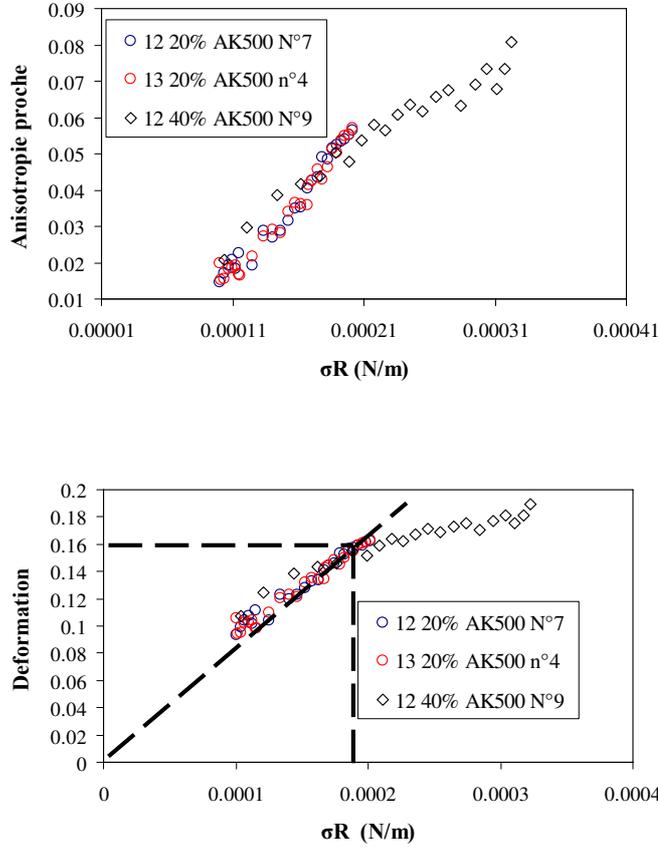


FIGURE 4.11 – a) Anisotropie proche en fonction de la contrainte. Rayon b) Déformabilité proche en fonction de la contrainte. Rayon

Nous mesurons pour chaque cisaillement, l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion. La figure 4.11a) représente l'évolution de l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion en fonction de la contrainte locale de cisaillement multipliée par le rayon des gouttelettes (environ $1 \mu\text{m}$). Grâce à la relation (4.9), nous déterminons l'anisotropie ε des gouttelettes à partir de l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion.

$$A_{\text{proche}} = \left(\frac{1 - \varepsilon^2}{1 + \varepsilon^2} \right)^{2.5} \quad (4.9)$$

En effet, le paramètre de taille des gouttelettes étant supérieur à 5 ($x \approx 13$), on est largement dans la zone de validité de cette relation. Puis, à partir de l'anisotropie ε des gouttelettes, nous déterminons la déformabilité des gouttelettes grâce à la relation de Taylor (4.3). La courbe 4.11b) représente la déformabilité en fonction de la contrainte locale

multiplié par le rayon des gouttelettes.

On rappelle la relation (4.12) définie la déformabilité d'une gouttelette en fonction de l'anisotropie de la gouttelette :

$$D = \frac{L - B}{L + B} = \frac{2a - 2b}{2a + 2b} = \frac{a - b}{a + b} = \frac{1 - \varepsilon}{1 + \varepsilon} = C_a \quad (4.10)$$

Or le nombre capillaire est défini par la relation (4.11) :

$$C_a = \frac{\sigma R}{\gamma} \quad (4.11)$$

Où γ est la tension interfaciale, σ est la contrainte de cisaillement et R le rayon de la gouttelette. Par conséquent, la déformabilité est définie par la relation (4.12) :

$$D = \frac{\sigma R}{\gamma} \quad (4.12)$$

On fait apparaitre la contrainte de cisaillement car Mougel [65] a montré que cette représentation était valable pour une émulsion concentrée même si la phase continue est non-newtonienne ce qui est notre cas. Cette relation permet de s'abstraire de la non-linéarité de la viscosité.

Nous obtenons une courbe unique qui indique que la tension interfaciale est une grandeur physique indépendante de la fraction volumique en particules. Pour les faibles déformations, la relation entre la déformabilité et la contrainte est linéaire comme l'indiquent les travaux de Taylor [84, 83]. Nous déterminons alors la tension interfaciale grâce à la relation (4.3). L'inverse de la pente de la courbe 4.11b) permet de déterminer la tension interfaciale entre les deux phases car on considère que la déformabilité est égale au nombre capillaire (voir relation (4.1) et (4.3)). Nous obtenons alors une tension interfaciale égale à $1.2 \mu\text{N}/m$.

4.1.4 Comparaison avec le dispositif Parallel Band apparatus

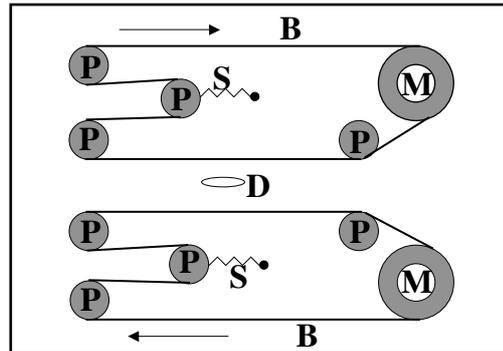


FIGURE 4.12 – a) Schéma de fonctionnement du dispositif de bandes parallèles (M) : Moteurs (P) Poulie de déflexion (S) Ressorts (B)Bande (D) Gouttelette

Braun [17] a développé à l'ETH (zurich, Suisse) un dispositif très fortement inspiré de celui développé par Taylor [84, 83] et qui reprend les améliorations apportées par Birkhofer *et al.* [14]. Le dispositif expérimental ayant servi à mesurer la déformabilité d'une gouttelette isolée de quelques millimètres de diamètre est constitué d'une cellule d'écoulement de cisaillement simple dans laquelle on introduit la phase continue et de deux plans parallèles (Parallel band Apparatus) qui se déplacent dans des directions opposées. Une cellule d'écoulement est placée entre les deux plans parallèles. Le mouvement des deux plans parallèles crée un écoulement de cisaillement simple entre les deux bandes parallèles qui est la zone de cisaillement. Le gap entre les deux bandes parallèles peut varier entre 2 mm et 4 cm. On enregistre le mouvement de la gouttelette qui se déplace dans la zone de cisaillement à l'aide d'une caméra C.C.D (DFW-V500, Sony Electronics) qui est disposé perpendiculairement à la cellule d'écoulement. Un ordinateur de contrôle en temps réel du mouvement des gouttelettes, un programme de contrôle des moteurs et une boucle de régulation complète le dispositif expérimental afin de mieux contrôler l'écoulement. La figure 4.12 représente le dispositif expérimental utilisé par Andre Braun [17] pour réaliser son étude.

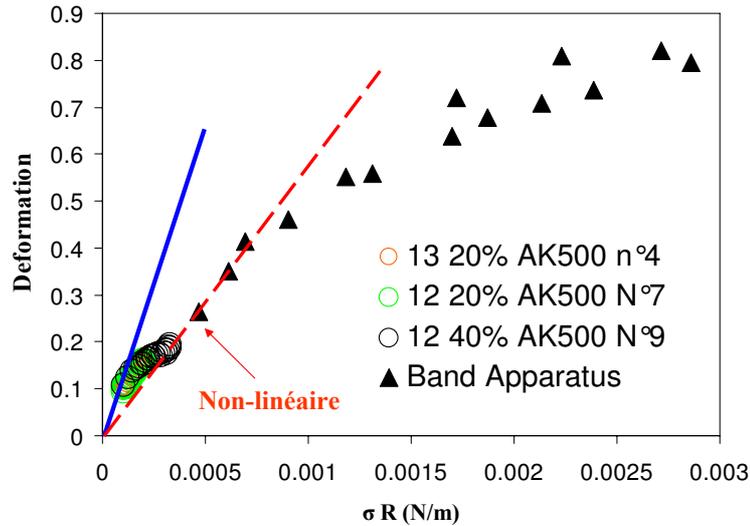


FIGURE 4.13 – Comparaison entre la déformabilité obtenue à l’aide de la diffusion avec la déformabilité obtenue avec le dispositif de bandes parallèles

Sur la figure 4.13, nous avons superposé les résultats obtenus à l’aide de l’appareil à bandes parallèles. Les résultats obtenus à l’aide de ce dispositif sont identiques à celles que nous obtenons à l’aide du dispositif basé sur la diffusion de lumière. En outre, notre dispositif permet de mesurer les très faibles déformations contrairement au dispositif constitué de bandes parallèles. Enfin, notre dispositif ne nécessite aucune dilution et il est complètement non-intrusif contrairement au dispositif de bandes parallèles qui nécessite une dilution et l’étude d’une gouttelette de diamètre égale à quelques millimètres.

La phase dispersée est très fortement non-newtonienne. L’émulsion est également non-newtonienne comme on peut le voir sur la figure 4.3a). Il est très difficile de mesurer la tension interfaciale d’un tel système car la majorité des techniques ne sont fiables que pour des fluides newtoniens. Notre dispositif a l’énorme avantage de pouvoir mesurer de manière précise la tension interfaciale d’une dispersion dont la phase continue est newtonien ou non-newtonien. Pour de faibles déformations, Taylor [84, 83] observe une linéarité de la déformation en fonction du cisaillement. En revanche, pour les grandes déformations (de l’ordre de 0, 2), cette linéarité disparaît. Cette non-linéarité de la déformabilité en fonction de la contrainte appliquée s’explique par l’apparition pour les grands déformations d’un gradient de tension interfaciale le long de l’interface entre les deux phases. On observe, en effet, des déformations faibles, une non-linéarité liée à une mauvaise estimation de la pression de Laplace, puis de la tension interfaciale pour des déformations plus importantes. La relation $C_a = D$ n’est en effet plus valide que pour des déformations inférieures ou de l’ordre de 0, 2.

A présent, nous allons nous appliquer notre technique de caractérisation de la déformabilité des particules d'une suspension pour mesurer le module de cisaillement des globules rouges.

4.2 Etude de la déformation des globules rouges

4.2.1 Généralités sur les globules rouges

Le sang est un fluide complexe constitué principalement d'un fluide suspendant, le plasma et d'une dispersion de globules rouges. Le rôle majeur des globules rouges est de transporter l'oxygène dans l'organisme, et les éléments nutritifs nécessaires aux processus vitaux de tous les tissus du corps humain et à évacuer les déchets tels que le dioxyde de carbone ou les déchets azotés. Il sert également à diffuser les hormones dans tout l'organisme.

Les globules rouges sont des cellules micrométriques en forme de disque biconcave (discoïde) d'environ $7\mu m$ de diamètre et $3\mu m$ d'épaisseur. Suivant les individus et le sexe, la concentration en globules rouges nommée taux d'hématocrite varie entre 40% et 55%. Le taux d'hématocrite se mesure simplement par centrifugation d'un prélèvement dans un microtube. Les globules rouges sont constitués d'une membrane responsable des propriétés complexes de déformation et d'agrégation des globules. En modifiant les propriétés de la membrane, il est possible de rendre les globules agrégeants, non-agrégeants, sphériques et durcis [7].

Les vaisseaux sanguins, dans lesquels circulent les globules rouges, sont de petits tubes chargés du transport du sang dans tout le corps. Le système circulatoire humain est composé de trois types de vaisseaux sanguins : les artères, les veines et les capillaires. Une artère est un vaisseau sanguin très large (le diamètre varie entre 4 et 8 mm) qui transporte le sang oxygéné du cœur vers les tissus et les cellules de l'organisme. Les veines sont des vaisseaux chargés de transporter le sang pauvre en oxygène et les déchets du métabolisme vers le cœur (le diamètre varie de quelques millimètres à quelques centimètres). Les capillaires sont microscopiques. Ils relient les artères et les veines aux tissus de l'organisme et sont le siège de l'échange entre l'oxygène et le dioxyde de carbone. Les artères transportent le sang et ont des parois beaucoup plus élastiques que les veines (le diamètre fait quelques dizaines de centimètres).

La déformation des globules rouges est donc essentielle pour la circulation sanguine.

En effet, les dimensions des globules rouges est nettement supérieure au diamètre des capillaires (8 à 10 μm) dans lesquelles circulent les globules rouges. Il est donc primordiale pour que ceux-ci puissent circuler dans le réseau microcirculatoire, que les globules rouges puissent se déformer.

4.2.2 Bibliographie sur les techniques de mesure de la déformabilité des globules rouges



FIGURE 4.14 – Photographie de globules rouges par microscopie électronique à balayage

La déformabilité d'un globule rouge comme nous l'avons indiqué précédemment est un paramètre essentiel pour la circulation du sang dans les vaisseaux sanguins. Les globules rouges du sang ont une forme biconcave comme on peut le voir sur la figure 4.14. La longueur moyenne d'un globule rouge est d'environ $7\mu m$ et son épaisseur de l'ordre de $1,7\mu m$. Le rayon sphérique moyen d'un globule rouge est d'environ $2,2\mu m$. Le paramètre de taille est donc à 635 nm de longueur d'onde supérieure à 50.

Rhéoscope

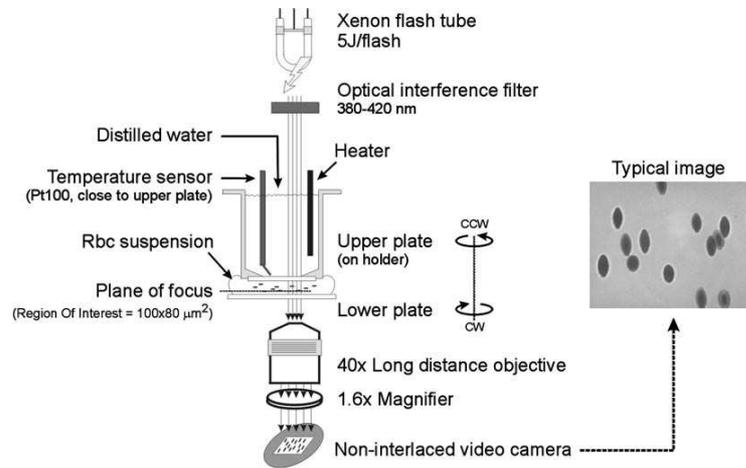


FIGURE 4.15 – Dispositif de mesure de la déformabilité des globules rouges : Rhéoscope développé par Dobbe *et al.*[25]

Un grand nombre de dispositifs ont été développés pour mesurer la déformabilité. Parmi ces dispositifs on peut citer le rhéoscope. Le rhéoscope est constitué de deux plateaux contra-rotatifs. Les globules rouges sont suspendus dans une solution saline (phosphate buffered saline). On introduit la suspension de globules rouges entre les deux plateaux. Le mouvement des plateaux provoquent la déformation des globules rouges que l'on observe à travers un microscope. On mesure ainsi la déformabilité des globules rouges à l'aide du microscope. Grâce à ce dispositif, Dobbe *et al.* [25] compare la déformabilité des globules rouges provenant de plusieurs donneurs différents. Il montre que le rhéoscope peut servir au travers de la déformabilité à détecter certaines maladies (ex : anémie) ou certains traitements hormonaux (ex : dopage à l'Erythropoietin EPO). Korin *et al.* [46] utilisent le rhéoscope pour étudier l'écoulement et la déformation des globules rouges à travers un microcanal. Ils montrent dans cette étude que la déformabilité des globules rouges dépend de trois paramètres : la viscosité interne, le rapport entre la surface et le volume des cellules et les propriétés viscoélastiques de la membrane de la cellule. Bransky *et al.* [16] utilisent le rhéoscope pour étudier cette fois-ci le comportement rhéologique d'une suspension de globules rouges s'écoulant également à travers un microcanal. Ils démontrent qu'il existe une relation entre la déformabilité et la vitesse d'écoulement des globules rouges. On notera que dans toutes ces études, les suspensions sont extrêmement diluées. La fraction volumique en globules rouges dans l'étude menée par Bransky *et al.* [16] est de 0.45%, dans celle de Dobbe *et al.* [25], elle est de 0.2% et dans celle de Korin *et al.* [46], on a une fraction volumique en globules rouges d'environ 0.04%. Ces concen-

trations sont très éloignées des conditions physiologiques d'environ 45% pour les femmes et 50% pour les hommes.

Il n'est pas certain que la dilution ne modifie pas les propriétés mécaniques des globules rouges. L'avantage de la technique est qu'elle est assez simple à mettre en oeuvre.

Ektacytomètre

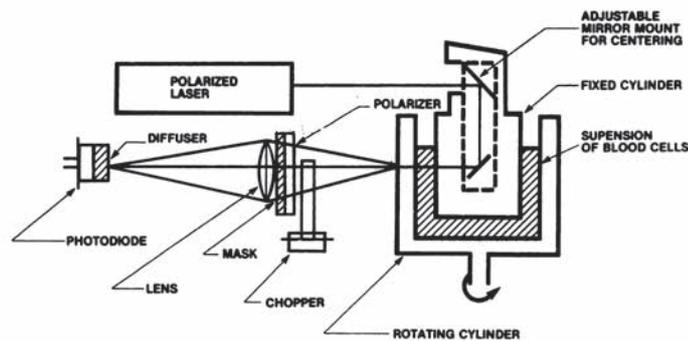


FIGURE 4.16 – Dispositif de mesure de la déformabilité des globules rouges : ectacytomètre développé par Groner *et al.* [31]

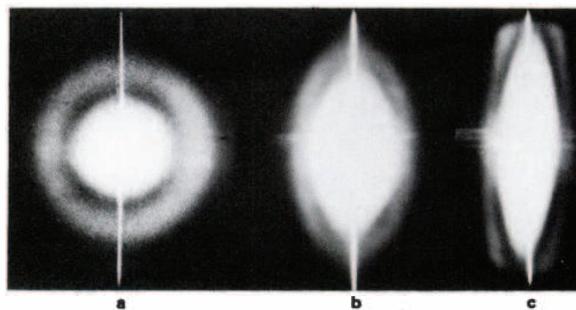


FIGURE 4.17 – Images de diffraction obtenues à l'aide de l'ectacytomètre de Groner *et al.* [31] a) vitesse de cisaillement $< 50 \text{ s}^{-1}$ b) vitesse de cisaillement $= 50 \text{ s}^{-1}$ c) vitesse de cisaillement $> 100 \text{ s}^{-1}$

Un autre dispositif permettant de mesurer la déformabilité d'un globule rouge est l'ektacytomètre. Il s'agit d'un dispositif optique constitué d'une cellule de Couette introduit par Bessis *et al.* [12] et Groner *et al.* [31] (figure 4.16) et utilisé récemment par Schauf *et al.* [78]. Le cylindre extérieur tourne autour du cylindre intérieur et provoque ainsi la déformation des globules rouges. On introduit l'échantillon entre les deux cylindres concentriques transparents. (l'entrefer vaut 0.5 mm , [31]). Un laser traverse les parois des

deux cylindres concentriques. Les globules rouges diffractent la lumière à une distance donnée de la cellule de Couette. La figure de diffraction 4.17 obtenue est circulaire pour de faibles vitesses tandis que pour des vitesses plus élevées, elle est elliptique. On mesure à partir de la figure de diffraction, un indice de déformabilité (DI Deformability Index). Groner *et al.* [31] valident le dispositif en comparant l'index de déformabilité d'une suspension de globules rouges obtenu à l'aide de l'ektacytomètre avec la déformabilité de la même suspension de globules rouges obtenue à l'aide d'un rhéoscope. Les résultats obtenus à l'aide de l'ektacytomètre sont identiques à ceux obtenus à l'aide du rhéoscope. Le gradient de vitesse varie entre 0 et 1000 s^{-1} et la déformabilité varie entre 0 et 0,7. On définit l'indice de déformabilité DI par la relation (4.13) où L est la longueur demi-grand axe de la figure de diffraction et B est la longueur demi-petit axe de la figure de diffraction.

$$\text{DI} = \frac{L - B}{L + B} \quad (4.13)$$

L'avantage de cette technique est qu'elle ne nécessite pas de dilution des globules rouges dans une suspension, l'étude peut se faire sur du sang total. Shin *et al.* [79] modifient le dispositif de Groner *et al.* [31] en remplaçant la cellule de Couette par un canal section rectangulaire (voir figure 4.18). On introduit l'échantillon à l'intérieur du canal et l'application d'une différence de pression dans le canal entraîne l'écoulement de l'échantillon à travers le canal. L'écoulement provoque la déformation des globules dans le canal. Un faisceau laser traverse le canal transparent perpendiculairement, on recueille la figure de diffraction à l'aide d'une caméra C.C.D. L'avantage de ce système par rapport à celui de Groner *et al.* est que la mesure du gradient de vitesse et du taux de cisaillement se réduit à une simple mesure de pression grâce aux relations (4.14) et (4.15).

$$\tau_w = \frac{\Delta P(t)h}{\left(1 + 2\frac{h}{w}\right)L} \quad (4.14)$$

$$\dot{\gamma}_w = \frac{6Q}{3wh^2} \left[2 + \frac{d \ln Q}{d \ln \tau_w} \right] \quad (4.15)$$

Q correspond au débit en m^3/s , h est la largeur de la fente (m), w est la longueur de la fente (m), ΔP est la différence de pression (Pa) et L est la longueur du canal (m). En parallèle, des mesures de déformabilité sont effectuées à l'aide d'un ectacytomètre classique. Les résultats obtenus à l'aide de ce dispositif sont identiques à ceux obtenus à l'aide de l'ektacytomètre de Shin *et al.*. La gamme de pression appliquée varie entre 0 et 35 Pa. La déformabilité varie entre 0 et 0,6.

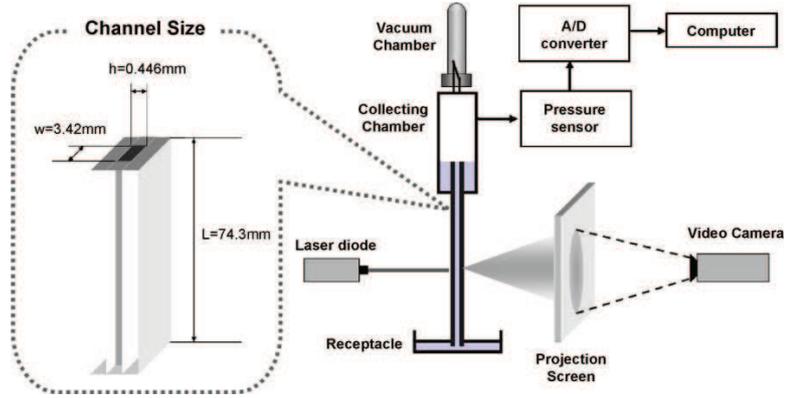


FIGURE 4.18 – Dispositif de mesure de la déformabilité des globules rouges : ectacymètre développé par Shin et al. [79]

Pinces optiques

La technique des pinces optiques est une technique largement utilisée pour étudier et manipuler de petits objets tels que des cellules vivantes. Le principe consiste à piéger à l'aide d'un faisceau laser un objet diélectrique au point de convergence du faisceau. On applique une contrainte à la membrane du globule rouge par l'intermédiaire d'une bille de silice (Henon *et al.* [35]; Liu *et al.* [51]) ou de polystyrène (Li *et al.* [50]) optiquement piégées et utilisées comme "poignées". On mesure la déformabilité du globule rouge et on en déduit le module de cisaillement. Le module de cisaillement se déduit à partir des équations d'élasticité de la membrane, en supposant la membrane du globule rouge inextensible. Dans la limite des faibles déformations, la relation 4.16 permet de calculer la diminution du diamètre du globule rouge ΔD en fonction de la force appliquée F .

$$\Delta D = \frac{F}{2\pi\mu} \quad (4.16)$$

Où μ est le module de cisaillement (N/m). Liu *et al.* [51] utilise cette technique pour mesurer la déformabilité des globules rouges. La déformabilité des globules rouges est mesurée pour différentes forces. Un modèle mécanique est développé pour simuler la déformation des globules rouges et en comparant les données expérimentales avec les données numériques, Liu *et al.* [51] évalue le module de cisaillement qui varie entre $4.56 \mu\text{N}/m$ et $5.18 \mu\text{N}/m$. Li *et al.* [50] observent que le module de cisaillement varie au cours du temps. Il vaut $3.72 \text{ dN}/m$ au bout de deux jours de stockage et $5.53 \text{ dN}/m$ au bout de deux semaines alors qu'il admis dans la littérature que le module de cisaillement varie entre 4 et $10 \mu\text{N}/m$. Cette différence provient certainement du fait que la méthode est intrusive puisqu'elle nécessite l'insertion d'une bille à la surface des globules. Cette insertion mo-

difie certainement le module de cisaillement des globules. Par ailleurs, le laser provoque un échauffement local qui modifie également le module de cisaillement du globule.

Aspiration par micropipette

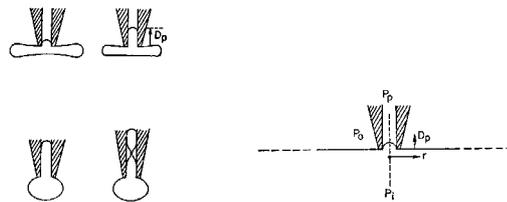


FIGURE 4.19 – Principe de mesure du module de cisaillement d'un globule rouge par Evans *et al.* [29]

Enfin, le dispositif d'aspiration par micropipette permet également de mesurer la déformabilité des globules rouges (figure 4.19). Rand *et al.* [74] sont les premiers à utiliser cette technique pour étudier la déformabilité des globules rouges et mesurer le module de contrainte des globules rouges (Rand *et al.* [74] $18 \mu\text{N}/m$, Evans *et al.* [29] $10 \mu\text{N}/m$). Le principe de cette technique consiste à aspirer à l'aide d'une micropipette un globule rouge. En pénétrant dans le canal, le globule crée une différence de pression ($P_i - P_p$) à l'intérieur du canal de la micropipette (P_i : pression à l'extérieur du canal ; P_p : pression à l'intérieur du canal). Lorsque la profondeur de pénétration de la cellule D_p est égale au rayon de la micropipette R_p , la relation 4.17 permet de relier la différence de pression ($P_i - P_p$) et le rayon du canal de la micropipette R_p :

$$\frac{P_i - P_p}{\mu} = \frac{\kappa}{R_p} \quad (4.17)$$

Où κ est une constante et μ est le module de cisaillement (N/m). L'inconvénient de cette technique est qu'elle impose des déformations extrêmement élevées. Le module de cisaillement n'est sans doute pas le même aux grandes déformations qu'aux petites déformations.

Déformation des globules rouges à l'aide d'un champ électrique

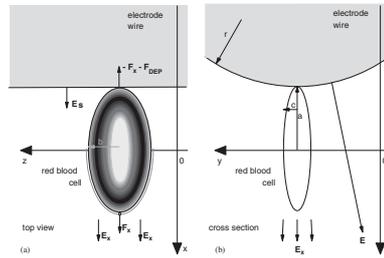


FIGURE 4.20 – Schéma de principe du dispositif de mesure de la déformabilité de Thom *et al.* [85]. \mathbf{E}_x correspond au champ électrique et \mathbf{F}_x à la force d'interaction.

La polarisation de Maxwell-Wagner se produit généralement à l'interface entre deux milieux possédant des permittivités et des conductivités différentes en présence d'un champ électrique non-uniforme, et se caractérise par l'apparition d'une force d'interaction entre les deux milieux. Si l'une des interfaces est une cellule biologique telle qu'un globule rouge suspendu dans une solution faiblement conductrice, la force d'interaction induite par la polarisation de Maxwell-Wagner entraîne la déformation des cellules biologiques. Cette effet n'apparaît que dans une certaine gamme de fréquences. Les travaux traitant de ce phénomène proposent de calculer cette force d'interaction. En effet, connaissant cette force d'interaction, il est alors possible de déterminer le module de contrainte des globules rouges. Thom *et al.* [85] utilisent ainsi cette technique pour mesurer le module de contrainte ($0.1 \mu\text{N}/m$) d'un globule rouge en présence d'un champ électrique sinusoïdal de fréquence 1 MHz. Dans la littérature, on admet que le module de cisaillement varie entre 4 et $10 \mu\text{N}/m$. Cette différence provient sans doute du fait que la méthode est intrusive, la présence du champ électrique modifie très sensiblement le module de cisaillement des globules rouges.

4.2.3 Préparation des échantillons

Cette étude est la continuité des travaux de Jérôme Dillet [24, 7] et de Guillaume Toussaint [86]. Les échantillons étaient préparés à partir d'une poche de sang de 450 ml d'un unique donneur anonyme sain. La préparation des échantillons consiste à laver les globules rouges en plaçant la sang dans des tubes de centrifugation pendant 10 minutes à 3000 tours/min. Le plasma est alors séparé des globules rouges. Les globules rouges sont ensuite à nouveau suspendus dans une solution tampon saline de "Phosphate Buffered Saline". On renouvelle 3 fois, les opérations de centrifugation et de resuspension afin que les globules rouges soient suspendus dans la solution saline la plus pure possible.

Cette première opération permet d'obtenir un premier échantillon de "sang non-aggrégeant" formé de "discoïdes déformables". L'ajout de 3% de Dextran permet d'obtenir une solution dans laquelle les globules peuvent s'aggréger par déplétion que l'on nomme "sang aggrégeant". La modification de la pression osmotique de la solution saline rend les globules rouges sphériques et permet ainsi d'obtenir une suspension de "sphéroïdes déformables". L'ajout de 0.05% de glutaraléhyde permet de durcir les globules et on obtient ainsi une suspension de "sphéroïdes durcis" et une suspension de "discoïdes durcis". La concentration en globules rouges est d'environ 40% en fraction volumique, proche des concentrations physiologiques. Ces différents échantillons ont permis d'étudier indépendamment les effets d'aggrégation, de déformation et d'orientation.

Dans ces travaux, Jérôme Dillet [24, 7] réalise une étude sur la déformabilité des globules rouges sous cisaillement sur des sphéroïdes et des discoïdes durcis et non-durcis. Lorsqu'on augmente le cisaillement, la longueur de transport demeure constante dans les deux cas. Or lorsque les globules rouges s'aggrègent, il y a une augmentation de la longueur de transport. Il observe également une anisotropie de l'image de rétrodiffusion dans le cas des globules non-durcis lorsqu'on augmente le cisaillement. En revanche, cette anisotropie disparaît lorsque les globules rouges sont durcis. Il en conclut alors que l'anisotropie du transport de lumière provient uniquement de la déformation des globules rouges sous cisaillement. Dans ce chapitre, nous nous proposons de reprendre les travaux de Jérôme Dillet et d'utiliser notre méthode pour déterminer la déformabilité des globules en milieux concentrés. Nous comparerons la valeur obtenue avec celles de la littérature utilisant diverses techniques de caractérisation.

4.2.4 Mesure du module de cisaillement d'un globule rouge par diffusion de lumière

Dans cette étude, nous nous intéressons essentiellement aux sphéroïdes non-durcis et aux discoïdes non-durcis. Pour chacun des échantillons, on réalise des paliers successifs de cisaillement ($1 s^{-1}$, $2 s^{-1}$, $5 s^{-1}$, $10 s^{-1}$, $20 s^{-1}$, $50 s^{-1}$, $100 s^{-1}$, $200 s^{-1}$, $500 s^{-1}$) à l'aide d'un rhéomètre avec une géométrie plan-plan de 5 cm de diamètre avec un entrefer de 3 mm. On réalise simultanément l'acquisition de la matrice de Mueller. Cependant, nous nous intéressons uniquement au transport incohérent de lumière non-polarisée afin de relier l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion à la déformation des érythrocytes.

Déformation des globules par diffusion de lumière

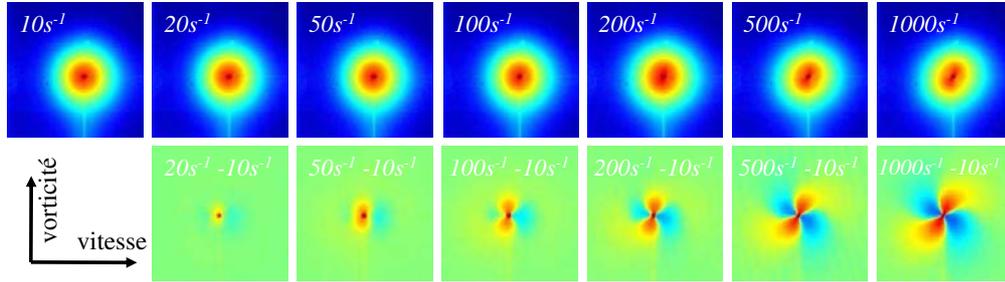


FIGURE 4.21 – Images de rétrodiffusion (haut) et différences d’images (bas) de l’échantillon N°7 composé de discoïdes non-durcis à différents cisaillements

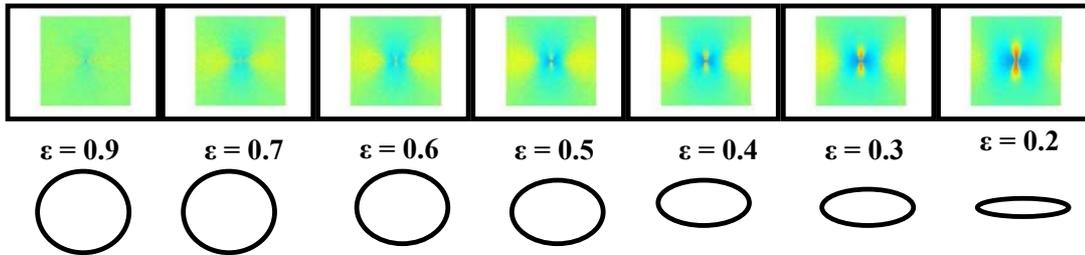


FIGURE 4.22 – Différences d’images de rétrodiffusion pour différents facteurs de forme obtenus à l’aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.1$, $x = 10$

Dans un premier temps, nous effectuons une analyse qualitative des images de rétrodiffusion anisotropes. La figure 4.21 représente les images de rétrodiffusion obtenues à différents cisaillements des échantillons de sphéroïdes non-durcis et de discoïdes non-durcis. Nous observons que le centre de l’image de rétrodiffusion devient de plus en plus anisotrope lorsque le cisaillement augmente.

Pour une meilleure visualisation de l’évolution de l’anisotropie du transport de lumière avec le cisaillement, nous décidons de soustraire chaque image de rétrodiffusion à une image de référence isotrope à un cisaillement de $10 s^{-1}$. On observe sur la différence d’image de rétrodiffusion des lobes rouges et bleus. Les lobes négatifs (bleu) caractérisent l’orientation moyenne des globules sous cisaillement. Ils s’orientent donc suivant une direction proche de l’axe des vitesses et qui semble tourner quand le cisaillement augmente.

Nous soustrayons les images de rétrodiffusion obtenues à l’aide des simulations de Monte Carlo pour un facteur de forme quelconque avec l’image de rétrodiffusion obtenue

pour un facteur de forme égale à 1, soit le cas isotrope. La figure 4.22 représente les images de rétrodiffusion obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo en différence d'images. La différence d'image de rétrodiffusion présente également des lobes rouges et bleus.

L'apparition des lobes sur la figure 4.22 indiquent que la déformation d'une particule (soit diminution du facteur de forme ϵ) s'accompagne d'une augmentation de l'intensité des lobes rouges et bleus. Par conséquent, sur la figure 4.22, l'apparition des lobes rouges et bleus indiquent que les particules en l'occurrence les globules se déforment sous cisaillement. Les lobes bleus indiquent le sens d'orientation des gouttelettes sous cisaillement tandis que les lobes rouges indiquent la direction perpendiculaire soit la direction du vecteur vorticité.

Mesure de la longueur de transport

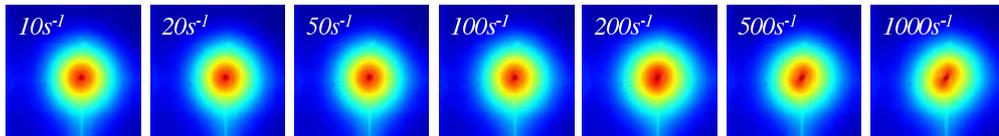


FIGURE 4.23 – Images de rétrodiffusion de l'échantillon N°7 composé de discoïdes non-durcis à différents cisaillements

A présent, nous nous intéressons à la longueur de transport moyenne des globules rouges. Pour chaque cisaillement, nous analysons l'élément M_{11} de la matrice de Mueller (voir figure 4.23). Nous déterminons la décroissance radiale d'intensité et nous ajustons cette décroissance radiale d'intensité sur le modèle de Haskell avec absorption (relation 1.18). En effet, l'absorption ne peut être négligée dans le sang et l'indice de réfraction relatif d'une solution de globules rouges dans une solution tampon d'eau vaut $m = 1,045$.

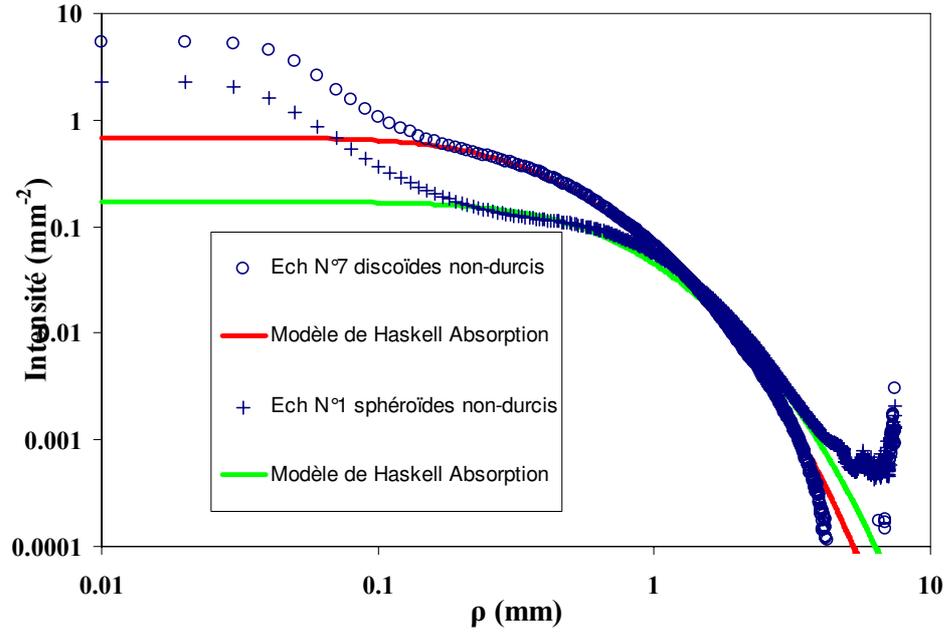


FIGURE 4.24 – Variations radiales d'intensité à 1000 s^{-1} pour l'échantillon N°1 (sphéroïdes non-durcis) et pour l'échantillon N°7 (discoïdes non-durcis)

Sur la figure 4.24, nous avons ajusté le modèle de Haskell avec absorption (relation 1.18) sur la décroissance radiale d'intensité. Le développement de l'anisotropie (voir figure 4.23) avec le cisaillement n'affecte en aucune manière le transport incohérent de lumière car la longueur de transport reste constante quelque soit le cisaillement appliqué. Le tableau 4.2.4 rassemble les valeurs des longueurs de décorrélation $l_{déc}$, longueur d'absorption l_a et longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$ pour chaque échantillon.

Echantillon	sphéroïdes non-durcis Ech N°1	discoïdes non-durcis Ech N°7
ϕ_v	0.49	0.48
$\langle l_{TR} \rangle$ (mm)	0.68	0.37
l_a (mm)	14	14
$l_{déc}$ (mm)	0.72	0.408

TABLE 4.4 – Longueurs de transport moyenne de chaque échantillon

Analyse des variations angulaires d'intensité

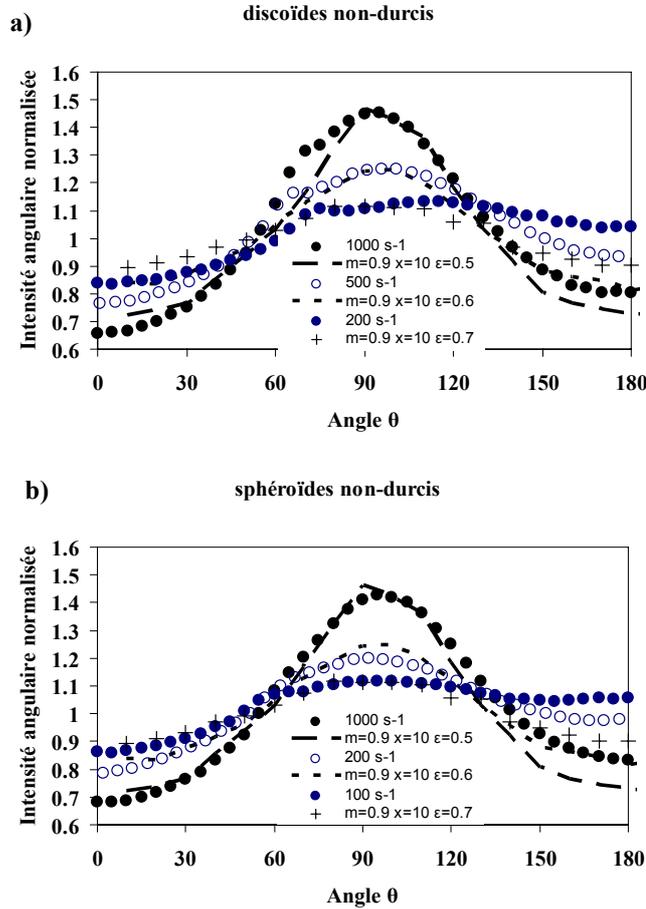


FIGURE 4.25 – Variations angulaires d’intensité à différents cisaillements a) pour l’échantillon N°1 (sphéroïdes non-durcis) b) pour l’échantillon N°7 (discoïdes non-durcis)

Après avoir déterminé la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$, nous décidons d’étudier l’évolution de la variation angulaire d’intensité à différents cisaillements. On rappelle que la variation angulaire d’intensité est la variation d’intensité lumineuse en fonction de l’angle θ à une distance radiale ρ fixe du barycentre de l’image de rétrodiffusion. Sur les figures 4.25a) et b), nous représentons la variation angulaire d’intensité à une distance radiale $\rho = \langle l_{TR} \rangle / 2$ du centre de l’image de rétrodiffusion. On observe deux maximums en $\theta = 90^\circ$ et en $\theta = 270^\circ$. On constate également que l’amplitude de la variation angulaire d’intensité augmente lorsque le cisaillement augmente.

Sur la figure 4.25, on a superposé les variations radiales d’intensité obtenues à l’aide de simulations de Monte Carlo dans le cas d’une particule de paramètre de taille $x=10$,

d'indice de réfraction relative $m=0.9$. Le seul paramètre ajustable est l'anisotropie des particules ε . On observe une bonne correspondance entre les variations radiales obtenues par simulation de Monte Carlo et celles obtenues expérimentalement. Ainsi, lorsque le cisaillement augmente, l'anisotropie des objets diminue, ce qui signifie que les objets sont de plus en plus déformés. A partir des variations angulaires d'intensité, nous allons déterminer la variation radiale d'intensité et nous allons étudier l'évolution de l'anisotropie proche en fonction du cisaillement.

Analyse des variations radiales d'anisotropie

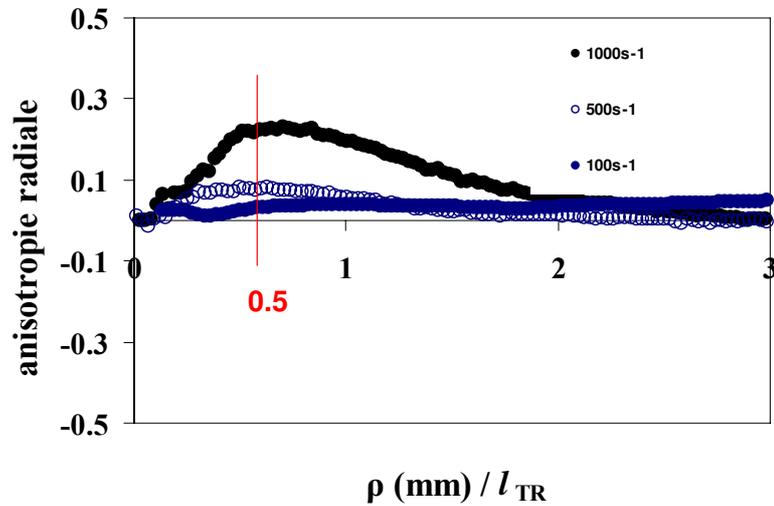


FIGURE 4.26 – a) Variations radiale d'anisotropie à différents cisaillements pour l'échantillon N°1 (sphéroïdes non-durcis)

Nous avons vu dans le chapitre 2 qu'à une distance radiale ρ du barycentre de l'image de rétrodiffusion, nous pouvons définir l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion A à partir de la variation angulaire d'intensité à une distance radiale ρ constante. En faisant varier la distance radiale ρ , on obtient la variation radiale de l'anisotropie $A(\rho)$. Cette anisotropie augmente jusqu'à un maximum qui se situe aux environs de $\rho = \langle l_{TR} \rangle / 2$ avant de décroître. Ce maximum d'anisotropie correspond à l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion. Nous décidons alors pour chaque cisaillement de déterminer l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion expérimentale.

Sur la figure 4.26, nous n'avons pas superposé les variations radiales d'intensité obtenues à l'aide de simulations de Monte Carlo car nos simulations font l'hypothèse d'un milieu non-absorbant or le sang est absorbant. Cependant, l'anisotropie proche n'étant

pas dépendant de l'indice de réfraction du milieu, nous pouvons déterminer l'anisotropie proche et déterminer l'anisotropie des objets à partir de l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion.

Inversion de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion

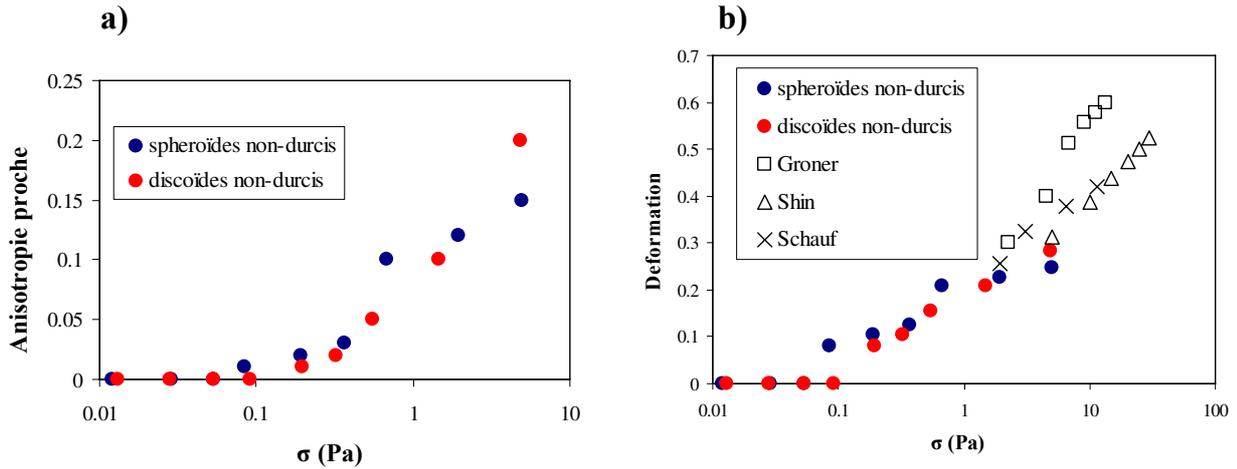


FIGURE 4.27 – a) Anisotropie proche en fonction du cisaillement b) Déformation en fonction du cisaillement

La figure 4.27a) représente l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion en fonction du cisaillement pour chaque échantillon. Comme nous pouvions nous y attendre l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion augmente lorsque le cisaillement augmente. À partir de la relation (3.35), nous pouvons déterminer l'anisotropie des objets ou facteur de forme à partir de l'image de rétrodiffusion, à condition que le paramètre de taille x soit inférieur à 5 ($x \approx 30$ pour les globules rouges). La relation (4.18) permet de calculer la déformabilité à partir de l'anisotropie des globules rouges.

$$Def = \frac{L - B}{L + B} = \frac{2a - 2b}{2a + 2b} = \frac{a - b}{a + b} = \frac{1 - \varepsilon}{1 + \varepsilon} \quad (4.18)$$

Nous représentons donc sur la figure 4.27b), l'évolution de la déformabilité des globules rouges en fonction du cisaillement. La relation 4.19 donne l'expression de la déformabilité en fonction du cisaillement :

$$Def = \frac{\sigma R}{\mu} \quad (4.19)$$

Où σ est la contrainte de cisaillement (Pa), R est le rayon moyen des globules rouges et μ est le module de cisaillement (N/m). On détermine alors le module de cisaillement à

partir de la relation 4.19 et des données expérimentales représentées sur la figure 4.27b). Nous obtenons alors un module de cisaillement égale à $6.6 \mu\text{N}/m$. Dans le tableau 4.2.4, nous avons rassemblé les valeurs du module de cisaillement obtenus à l'aide de différentes techniques de mesure.

Auteurs	μ ($\mu\text{N}/m$)	Techniques
Henon <i>et al.</i> [35]	2.5	pincés optiques
Lenormand <i>et al.</i> [49]	2.4	pincés optiques
Thom <i>et al.</i> [85]	10	champ électrique
Rand <i>et al.</i> [74]	18	micropipettes
Evans <i>et al.</i> [29]	10	micropipettes
Schauf <i>et al.</i> [78]	6	ectacytomètre
Notre étude [66]	6.6	Diffusion de lumière

TABLE 4.5 – Module de cisaillement obtenue dans la littérature

4.2.5 Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, l'analyse du transport incohérent de lumière dans un milieu anisotrope nous a permis de mesurer la déformabilité des gouttelettes d'une émulsion d'huile silicone dans une solution de gomme de Guar. En effet, sous cisaillement les gouttelettes de l'émulsion se déforment, ce qui rend le milieu anisotrope du point de vue de la diffusion de lumière. A partir de la mesure de la déformabilité, nous avons pu déterminer la tension interfaciale de l'émulsion.

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous nous sommes intéressé à la déformabilité d'une solution de globules rouges en condition physiologique (40 % en fraction volumique de globules rouges). Sous cisaillement, les globules rouges se déforment et s'orientent dans la même direction. L'analyse du transport de lumière dans cette solution, nous a permis d'accéder à la déformabilité des globules rouges en fonction du cisaillement et de déterminer le module de cisaillement.

L'intérêt majeur de cette technique est qu'elle permet un suivi dynamique de la déformabilité d'un système complexe constitué de particules déformables. Par ailleurs, elle est non-intrusive et contrairement à la majorité des techniques de caractérisation, les mesures de diffusion de lumière ont lieu en milieu concentré et ne nécessite donc aucune dilution.

Ce chapitre conclut ainsi la première partie de ma thèse sur l'utilisation du transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu anisotrope pour caractériser la déformation des particules anisotropes d'une suspension de particules. Le transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu anisotrope est une technique de caractérisation de la déformation de particules anisotropes toutes orientées suivant la même direction. En effet, les simulations de Monte Carlo du transport de lumière dans un milieu constitué de particules de forme sphéroïdale de facteur de forme $\varepsilon = a/b$ (où a est le demi-petit axe et b est le demi-grand axe) ont montré qu'il est possible de relier cette grandeur à l'anisotropie de l'image observée dans le plan de rétrodiffusion.

Nous allons, dans la seconde partie de ce mémoire, nous intéresser au cas d'un milieu constitué de particules anisotropes ayant une orientation moyenne globale ou partielle. On choisit de s'intéresser notamment à un milieu constitué de particules cylindriques ; la longueur L étant très largement supérieure au rayon a du cylindre, on pourra considérer ces cylindres comme infinis.

Chapitre 5

Transport incohérent de lumière dans une collection de longs cylindres partiellement orientés

Sommaire

5.1	Préambule	140
5.2	Normalisation des simulations de Monte Carlo	143
5.3	Simulation de Monte Carlo	144
5.4	Etude de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion	152
5.5	Inversion du paramètre d'ordre	158
5.6	Conclusion	158

Dans ce chapitre, l'objectif est de déterminer l'orientation moyenne des cylindres infinis à partir de l'anisotropie du transport de lumière. Nous allons donc simuler le transport incohérent de lumière non-polarisée par des simulations de Monte Carlo basées sur la théorie de Mie pour décrire l'événement de dispersion. Par conséquent, ce chapitre va débiter par une description de l'événement de dispersion d'une onde électromagnétique plane par un cylindre infini. Dans la seconde partie du chapitre, nous verrons en détail de quelle manière l'algorithme de Monte Carlo est construit. Et enfin, nous terminerons ce chapitre par une analyse détaillée des simulations de Monte carlo.

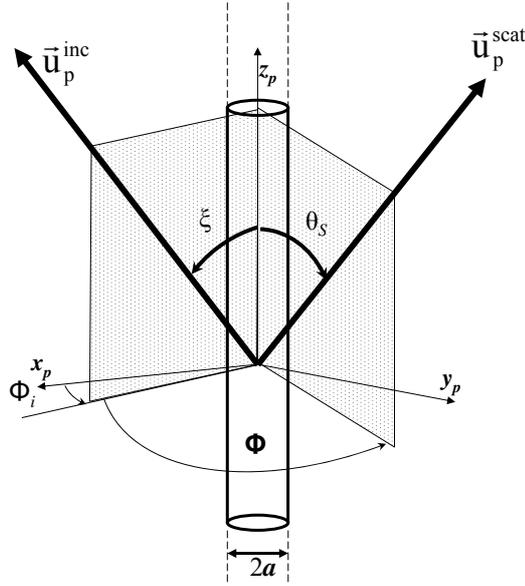


FIGURE 5.1 – cylindre infini dans un repère fixe

5.1 Préambule

5.1.1 Théorie de Mie sur un cylindre infini

On considère une onde électromagnétique plane de longueur d'onde λ se propageant dans un milieu d'indice de réfraction N_m . On choisit le repère de la particule comme repère de référence, l'axe d'orientation de la particule est colinéaire à l'axe Oz_p du repère. Le cylindre infini possède un rayon a et un indice de réfraction N_p . Lors de l'événement de dispersion, l'onde électromagnétique plane incidente dans la direction \vec{u}_p^{inc} est dispersée par le cylindre dans la direction \vec{u}_p^{scat} . L'intensité dispersée fait alors le même angle $\theta_s = \xi$ dans le cas d'un cylindre infini. Par conséquent, en raison de l'axisymétrie du cylindre, l'intensité est dispersée dans un cône dont le sommet fait un angle θ_i avec l'axe Oz_p du repère de la particule.

De même que pour une sphère, l'interaction entre une onde électromagnétique plane et un cylindre dépend de deux paramètres adimensionnels. On définit le paramètre de taille en fonction du rayon du cylindre a et du nombre d'onde k : $x = ka$ et le rapport entre l'indice de réfraction de la particule et de l'indice de réfraction du milieu environnant $m = N_p/N_m$. En raison de l'axisymétrie de la particule, la matrice de Jones J_{ij} est antisymétrique, soit : $J_{12} = -J_{21}$. On définit suivant le formalisme de [15] les paramètres suivants : $\zeta = x \sin(\xi)$, $\eta = x \sqrt{m^2 - \cos^2(\xi)}$. Nous calculons dans un premier temps les paramètres suivants :

$$A_n = i\varsigma \left[\xi J'_n(\eta) J_n(\varsigma) - \eta J_n(\eta) J'_n(\varsigma) \right] \quad (5.1a)$$

$$B_n = \varsigma \left[m^2 \varsigma J'_n(\eta) J_n(\varsigma) - \eta J_n(\eta) J'_n(\varsigma) \right] \quad (5.1b)$$

$$C_n = n \cos(\xi) \eta J_n(\varsigma) J_n(\eta) \left(1 - \frac{\varsigma^2}{\eta^2} \right) \quad (5.1c)$$

$$D_n = n \cos(\xi) \eta H_n(\varsigma) J_n(\eta) \left(1 - \frac{\varsigma^2}{\eta^2} \right) \quad (5.1d)$$

$$V_n = \varsigma \left[m^2 \varsigma J'_n(\eta) J_n(\varsigma) - \eta J_n(\eta) J'_n(\varsigma) \right] \quad (5.1e)$$

$$W_n = i\varsigma \left[\eta \varsigma J_n(\eta) H'_n(\varsigma) - \varsigma J'_n(\eta) h_n(\xi) \right] \quad (5.1f)$$

En sachant que J_n est la fonction de Bessel du premier ordre, Y_n est la fonction de Bessel du second ordre. H_n est la fonction de Hankel définie par $H_n = J_n + iY_n$. La fonction J'_n est la dérivée de la fonction de Bessel du premier ordre et H'_n la dérivée de la fonction de la fonction de Hankel.

On calcule alors les coefficients d'expansion a_n^I , b_n^I , a_n^{II} et b_n^{II} à partir des paramètres définis précédemment dans les équations (5.1a)-(5.1f) :

$$a_n^I = \frac{C_n V_n - B_n D_n}{W_n V_n + i D_n^2} \quad (5.2a)$$

$$b_n^I = \frac{C_n V_n - B_n D_n}{W_n V_n + i D_n^2} \quad (5.2b)$$

$$a_n^{II} = \frac{C_n V_n - B_n D_n}{W_n V_n + i D_n^2} \quad (5.2c)$$

$$b_n^{II} = \frac{C_n V_n - B_n D_n}{W_n V_n + i D_n^2} \quad (5.2d)$$

En sachant que les indices **I** et **II** correspondent respectivement aux cas où le champ électrique incident est respectivement parallèle et perpendiculaire au plan $Ox_p z_p$. A partir des coefficients d'expansion, on peut alors calculer les éléments de la matrice d'amplitude normalisée :

$$J_{11}(\xi, \phi) = b_0^I + 2 \sum_{n=1}^{\infty} b_n^I \cos(n\phi), \quad J_{12}(\xi, \phi) = -2i \sum_{n=1}^{\infty} b_n^{II} \cos(n\phi) \quad (5.3a)$$

$$J_{21}(\xi, \phi) = -2i \sum_{n=1}^{\infty} a_n^I \sin(n\phi) = -J_{12}, \quad J_{22}(\xi, \phi) = a_0^{II} + 2 \sum_{n=1}^{\infty} a_n^{II} \cos(n\phi) \quad (5.3b)$$

5.1.2 Les grandeurs de dispersion

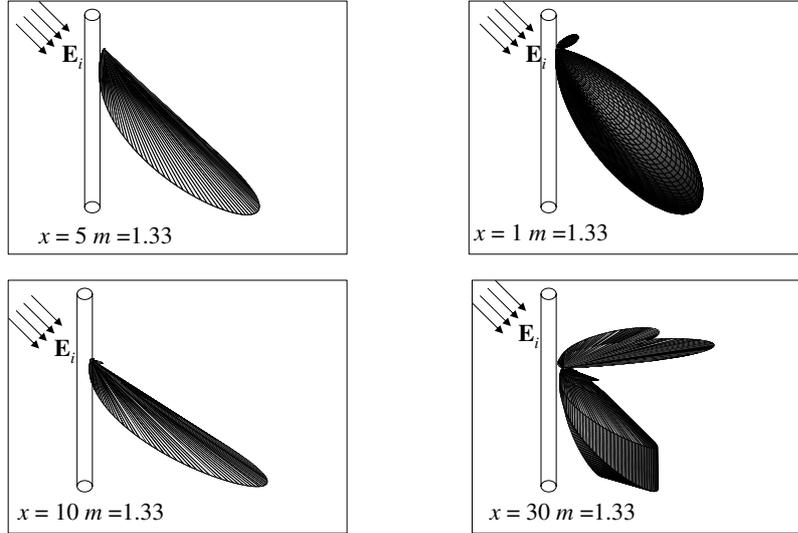


FIGURE 5.2 – fonctions de phase d’un cylindre infini en échelle logarithmique pour différents paramètres de taille

Pour un cylindre infini, l’onde électromagnétique est toujours dispersée de manière privilégiée dans la direction avant (voir figure 5.2). Contrairement à une particule sphérique, la fonction de phase dépend de l’angle azimutal ϕ et de l’angle incident ξ entre la direction incidente et l’axe d’orientation de la particule. On détermine la fonction de phase à partir des éléments J_{ij} de la matrice de Jones :

$$M_{11}^{\xi}(\phi) = \frac{1}{2}(|J_{11}|^2 + |J_{12}|^2 + |J_{21}|^2 + |J_{22}|^2) \quad (5.4)$$

La figure 5.2 représente la fonction de phase en échelle logarithmique d’un cylindre infini d’indice relatif $m = 1, 33$, pour différents paramètres de taille.

La section efficace de dispersion correspond au rapport entre la vitesse d’extinction de l’énergie à travers la particule et l’intensité incidente. La section efficace de dispersion adimensionnée est définie par :

$$Q_{scat}(\xi) = \frac{2}{x} \left[|a_0^{\text{II}}|^2 + |b_0^{\text{I}}|^2 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \left(|a_n^{\text{I}}|^2 + |a_n^{\text{II}}|^2 + |b_n^{\text{I}}|^2 + |b_n^{\text{II}}|^2 \right) \right] \quad (5.5)$$

Et on calcule ainsi la section efficace de dispersion par unité de volume comme étant le rapport suivant : $C_{scat}(\xi)/V = Q_{scat}(\xi)/\pi a$.

Dans un milieu diffusant, une onde électromagnétique subit plusieurs événements de dispersion. On appelle longueur de dispersion $l_s(\xi)$, la distance moyenne entre deux événements de dispersion. Cette grandeur dépend de l'angle ξ entre la direction incidente de l'onde électromagnétique et l'axe d'orientation des particules, de la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m}(\xi)$ par unité de volume et de la fraction volumique en particule ϕ .

$$l_s(\xi) = \frac{V}{\phi C_{scat}} = \frac{\pi a}{\phi Q_{scat}^{x,m}(\xi)} \quad (5.6)$$

Il est ainsi possible de calculer une longueur de dispersion, y compris dans le cas de cylindres très longs. Les formules ci-dessous sont valides pour une longueur de particule L très grandes devant leur rayon a .

On rappelle que la longueur de transport moyenne est la longueur de transport du milieu isotrope équivalent dans lequel toutes les particules sont orientées aléatoirement. Ce paramètre fait le lien entre l'événement local de dispersion et le phénomène de diffusion de lumière dans le milieu.

$$\langle l_{TR} \rangle = \frac{\pi a}{\phi_v \int_0^\pi Q_{scat}^{x,m}(\xi) [1 - g^{x,m}(\xi)] \sin(\xi) d\xi} \quad (5.7)$$

où a est le rayon du cylindre. La longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$ est le paramètre faisant le lien entre l'événement local de dispersion et le phénomène de transport diffusif de lumière moyenne dans l'espace.

5.2 Normalisation des simulations de Monte Carlo

L'utilisation des simulations de Monte Carlo nécessite de normaliser les distances. Cette normalisation permet, en effet, de s'abstraire de l'influence de la fraction volumique en particules ϕ_v [24, 23, 65]. Cependant, comme dans le cas des sphéroïdes, toutes les grandeurs de dispersion telles que la section efficace de dispersion dépendent de l'angle ξ entre l'axe d'orientation de la particule et la direction du photon incident. De ce fait, les distances caractéristiques telle que la longueur de dispersion $l_s(\xi)$ dépendent également de l'angle ξ (relation (5.6)).

Par conséquent, les distances sont normalisées dans nos simulations, comme dans le cas des sphéroïdes, par la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$ définie par la relation (5.7).

5.3 Simulation de Monte Carlo

5.3.1 Généralité sur les simulations de Monte Carlo

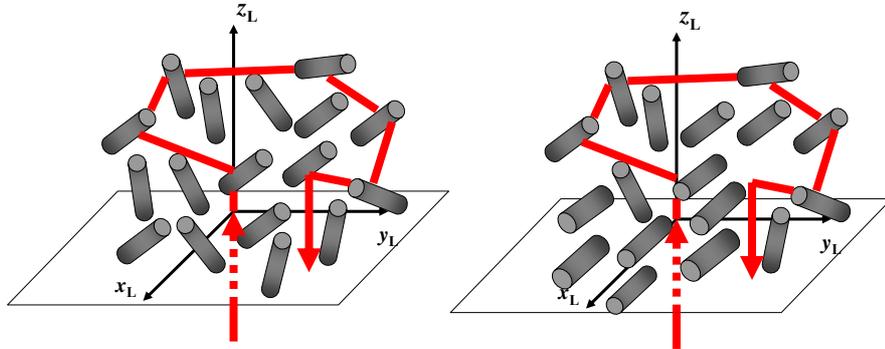


FIGURE 5.3 – Propagation d'un photon dans une collection de particules cylindriques orientées aléatoirement et orientées suivant Ox

Il existe quelques travaux qui portent sur le transport de lumière dans un milieu constitué de particules très anisotropes assimilables à des cylindres infinis. Par exemple, on peut citer les travaux de Kienle *et al.* [43] qui portent sur la caractérisation des matériaux biologiques à l'aide du transport de lumière, et notamment sur la dentine. Ces travaux montrent que la forme tubulaire des filaments de dentine provoquent une modification du transport de lumière, il observe notamment que ce soit expérimentalement ou théoriquement à l'aide de la méthode de Monte Carlo une anisotropie du transport de lumière.

Ainsi, s'inspirant des travaux de [43] et des résultats du chapitre 3, nous allons considérer un milieu constitué d'une collection de particules cylindriques infinis. Tous les photons sont lancés à l'origine de l'espace suivant la direction OZ du repère globale du laboratoire (voir figure 5.3). On suit alors la trajectoire du photon dans le milieu. Après un grand nombre d'événements de dispersion, les photons sortent du milieu. On récupère la position de sortie du photon lorsque celui-ci traverse le plan de rétrodiffusion ($Z = 0$). On obtient à l'issue de la simulation la répartition spatiale d'intensité dans le plan de rétrodiffusion comme pour le cas des sphéroïdes.

5.3.2 Algorithme de Monte Carlo

Une succession d'événements de dispersion se produit lorsque des photons pénètrent un milieu constitué de particules anisotropes ayant une orientation partielle ou totale dans

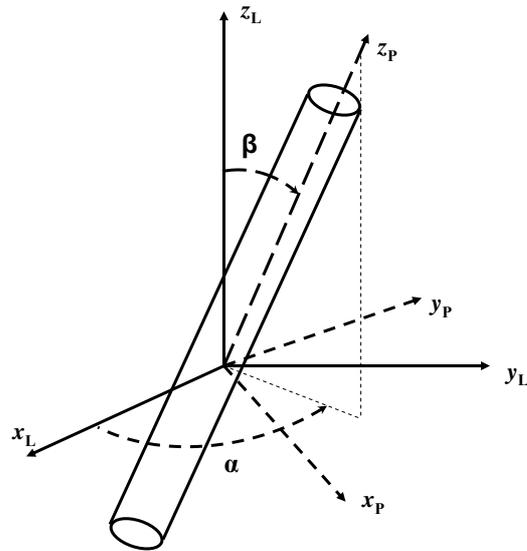


FIGURE 5.4 – cylindre infini dans le repère globale du laboratoire

le milieu. Les particules sont par ailleurs positionnées aléatoirement dans l'espace.

Préambule : choix d'une fonction de distribution d'orientation

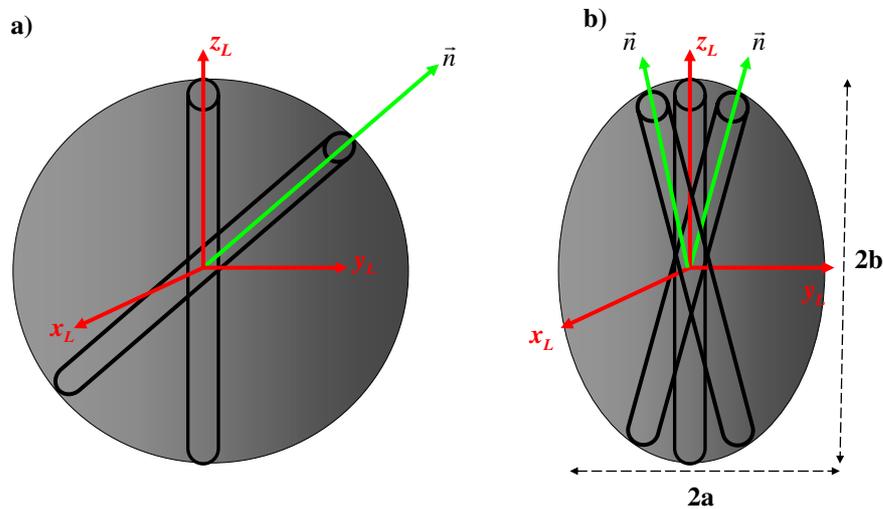


FIGURE 5.5 – distribution statistique du vecteur directeur a) distribution isotrope b) distribution anisotrope

Lorsqu'on souhaite caractériser l'orientation globale d'un ensemble de particules anisotropes, il est nécessaire d'introduire une fonction de distribution. Il existe un grand nombre de fonctions de distribution dans la littérature tels que la fonction de distribution

de Maier-Saupe [48] ou celle d'Onsager [68]. Cependant, toutes les fonctions de distribution que l'on trouve dans la littérature ne sont valables qu'en régime extrêmement dilué.

Cependant, nous décidons dans le cadre de cette thèse d'appliquer la méthode utilisée par Onsager [68] en introduisant un ellipsoïde de confinement comme fonction de distribution. Le principe est le suivant : on distribue statistiquement le vecteur directeur des particules dans un ellipsoïde de rapport d'aspect a/b où a est le demi-petit axe et b est le demi-grand axe de l'ellipsoïde de confinement. Ce paramètre a/b correspond donc à l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement, c'est-à-dire l'orientation moyenne des particules (voir figure 5.5).

En clair, cette approche permet de construire une particule moyenne par convolution de la fonction de distribution d'orientation avec la fonction de phase. Ainsi, si les particules sont orientées aléatoirement, on construit la fonction de phase de l'objet isotrope équivalent en intégrant la fonction de phase de la particule dans toutes les directions de l'espace. On obtient alors la fonction de phase moyenne grâce à la relation suivante :

$$\begin{aligned} \langle P(\xi) \rangle &= \frac{\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi P(\xi, \phi_i, \theta_s, \phi_s) \sin(\xi) d\xi}{\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi \sin(\xi) d\xi} \\ &= \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi P(\xi, \phi_i, \theta_s, \phi_s) \sin(\xi) d\xi \end{aligned} \quad (5.8)$$

En revanche, si la particule possède une orientation moyenne, on choisit de confiner le vecteur orientation dans un ellipsoïde de confinement d'anisotropie a/b . La fonction de distribution de l'orientation dans l'ellipsoïde de confinement est donnée par la relation (5.9) :

$$\text{PDF}(\xi) = \frac{(a/b)}{((a/b)^2 \sin(\xi)^2 + (a/b)^2 \cos(\xi)^2)^{3/2}} \quad (5.9)$$

Et ainsi, on calcule la fonction de phase moyenne à l'aide de la relation (5.10) :

$$\langle P(\xi, \phi_s) \rangle = \frac{a/b}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi_i \int_0^\pi \frac{P(\xi, \phi_i, \theta_s, \phi_s) \sin(\xi)}{(\sin(\xi)^2 + (a/b)^2 \cos(\xi)^2)^{3/2}} d\xi \quad (5.10)$$

Nous choisissons l'axe principal d'orientation des particules alignés dans la direction x_L du repère du laboratoire (voir figure 5.3).

Première étape : Choix de l'orientation de la particule

La première étape de la simulation de Monte Carlo consiste d'abord à choisir l'orientation de la particule dans le repère du laboratoire \vec{u}_L^{objet} . On effectue un tirage aléatoire uniforme de l'angle $\phi_L \in [0; 2\pi[$ et un tirage aléatoire non-uniforme de l'angle $\theta_L \in [0; \pi[$ en effectuant le tirage de deux nombres aléatoires ξ_1 et ξ_2 uniformément distribués sur $]0; 1]$:

$$\begin{aligned}\phi_L &= 2\pi\xi_1 \\ \theta_L &= \arccos(1 - 2\xi_2)\end{aligned}\tag{5.11}$$

On calcule alors le vecteur orientation de la particule dans le repère du laboratoire \vec{u}_L^{objet} à partir de l'ellipsoïde de confinement (voir figure 5.5). En effet, le vecteur orientation décrit un ellipsoïde de révolution et de ce fait, les coordonnées x_L, y_L, z_L du vecteur orientation dans le repère du laboratoire sont les suivantes :

$$\begin{aligned}x_L &= \cos(\theta_L)\sin(\phi_L) \\ y_L &= \frac{a}{b}\sin(\theta_L)\sin(\phi_L) \\ z_L &= \frac{a}{b}\cos(\phi_L)\end{aligned}\tag{5.12}$$

Le paramètre $\frac{a}{b}$ correspond au rapport d'aspect de l'ellipsoïde dans laquelle on confine le vecteur orientation de la particule. Pour un rapport d'aspect égal à 1, les particules sont orientées aléatoirement tandis que pour un rapport d'aspect proche de 0, cela signifie que les particules ont une orientation moyenne dans le repère du laboratoire. Comme les photons sont dispersés par des cylindres infinis suivant une direction incidente \vec{u}_L^{inc} dans le repère du laboratoire, on calcule l'angle ξ correspondant à l'angle entre le vecteur orientation de la particule et la direction incidente du photon dans le repère du laboratoire grâce à la relation suivante :

$$\xi = \arccos\left(\frac{\vec{u}_L^{inc} \cdot \vec{u}_L^{objet}}{\|\vec{u}_L^{objet}\|}\right)\tag{5.13}$$

La fonction de phase des particules cylindriques est calculée dans le repère de la particule tandis que tous les calculs relatifs au transport des photons dans le milieu sont réalisés dans le repère global du laboratoire. Par conséquent, la relation (5.14) permet d'effectuer le passage du repère du laboratoire vers le repère de la particule :

$$\vec{u}_P^{inc} = \mathbf{M} \cdot \vec{u}_L^{inc} \quad (5.14)$$

Le vecteur unitaire \vec{u}_P^{inc} correspond à la direction du photon incident dans le repère de la particule. La matrice $\mathbf{M}(\alpha, \beta, \gamma)$ est la matrice permettant de faire passer un vecteur \vec{U}^L du repère du laboratoire vers le repère de la particule : $\vec{U}^P = \mathbf{M}(\alpha, \beta, \gamma) \cdot \vec{U}^L$. La relation (5.15) permet de calculer cette matrice de passage en fonction des angles d'Euler α, β, γ :

$$\mathbf{M}(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{bmatrix} \cos\alpha\cos\beta\cos\gamma - \sin\alpha\sin\gamma & \sin\alpha\cos\beta\cos\gamma + \cos\alpha\sin\gamma & -\sin\beta\cos\gamma \\ -\cos\alpha\cos\beta\sin\gamma - \sin\alpha\cos\gamma & -\sin\alpha\cos\beta\sin\gamma + \cos\alpha\cos\gamma & -\sin\beta\sin\gamma \\ \cos\alpha\sin\beta & \sin\alpha\sin\beta & \cos\beta \end{bmatrix} \quad (5.15)$$

Deuxième étape : Calcul des angles de dispersion

L'étape suivante consiste à déterminer les angles de dispersion. Contrairement aux sphéroïdes, dans le cas d'un cylindre infini, on effectue le tirage uniquement de l'angle ϕ_{scat} car pour un cylindre $\theta_{scat} = \xi$. Par conséquent, le calcul est nettement plus rapide que dans le cas des sphéroïdes. On calcule la fonction de phase $M_{11}^{\xi}(\phi)$ de la particule connaissant l'angle ξ . La probabilité de présence d'un photon dans l'espace dans une direction $(\theta_{scat}, \phi_{scat})$ est proportionnelle à l'intensité dans cette direction. La fonction de phase $M_{11}^{\xi}(\phi)$ dépend donc de l'angle ξ , et elle est normalisée par son maximum. La dispersion se faisant de manière privilégié dans la direction incidente, on normalise donc la fonction de phase par l'intensité suivant cette direction à l'aide de la relation (5.16) :

$$p^{\xi}(\phi_{scat}) = M_{11}^{\xi}(\phi) / M_{11}^{\xi}(0) \quad (5.16)$$

On effectue ensuite le tirage aléatoire d'un angle test ϕ^{test} sur une sphère homogène en tirant un nombre aléatoire ψ_1 uniformément distribué sur l'intervalle $]0; 1]$. Ce nombre permet ainsi d'effectuer un tirage aléatoire uniforme de l'angle ϕ^{test} :

$$\phi^{test} = 2\pi\psi_1 \quad (5.17)$$

On effectue à nouveau le tirage d'un nombre aléatoire ψ_2 uniformément distribué sur l'intervalle $]0; 1]$. On calcule la fonction de probabilité $p^{\xi}(\phi^{test})$ à l'aide de la relation 5.16.

Ensuite, on applique le critère de réjection ; à savoir si la condition $p^{\xi}(\phi^{test}) \geq \psi_2$ est satisfaite alors les angles de dispersion sont égaux aux angles test : $\theta^{scat} = \xi, \phi^{scat} = \phi^{test} + \phi^{inc}$.

On effectue l'opération $\phi^{scat} = \phi^{test} + \phi^{inc}$ pour pouvoir se replacer dans le repère de la particule car lorsqu'on calcule la fonction de phase $M_{11}^{\xi}(\phi)$, du fait de l'axisymétrie de la particule et pour des raisons de stockage mémoire, on fixe $\phi_{inc} = 0$.

On calcule la direction de dispersion \vec{u}_P^{scat} grâce à la relation :

$$\vec{u}_P^{scat} = \begin{pmatrix} \sin(\theta^{scat}) \cos(\phi^{scat}) \\ \sin(\theta^{scat}) \sin(\phi^{scat}) \\ \cos(\theta^{scat}) \end{pmatrix} \quad (5.18)$$

A présent que la direction de dispersion \vec{u}_P^{scat} de la particule est connue, on retourne dans le repère globale du laboratoire grâce à la relation (5.19) :

$$\vec{u}_L^{scat} = M^{-1} \cdot \vec{u}_P^{scat} \quad (5.19)$$

Troisième étape : Propagation du photon dans le milieu

La troisième étape du processus consiste à présent à propager le photon dans le milieu sur une distance d . Cette distance d est la distance parcourue par le photon entre deux événements de dispersion et elle obéit à la loi de Beer-Lambert (relation (5.20)) :

$$d = -\frac{l_S(\xi)}{\langle l_{TR} \rangle} \ln(\psi) \quad (5.20)$$

Où le paramètre ψ correspond à un nombre aléatoire uniformément distribué sur l'intervalle $]0; 1]$. Puis on calcule la position du photon \vec{p}_{i+1} dans l'espace à partir de la position précédente \vec{p}_i :

$$\vec{p}_{i+1} = \vec{p}_i + d \cdot \vec{u}_L^{scat} \quad (5.21)$$

Représentation logarithmique de l'image de rétrodiffusion

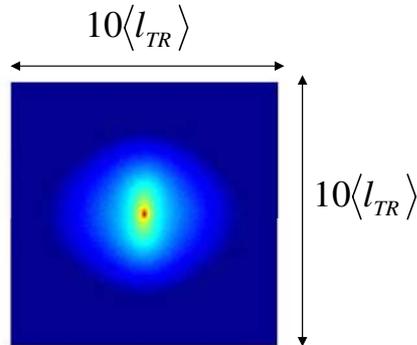


FIGURE 5.6 – Image de rétrodiffusion 2D obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour un cylindre d'indice de réfraction $m = 1.05$, $x = 2.63$ et l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement $a/b = 0.2$

Comme dans le cas des sphéroïdes, on envoie 100 millions de photons dans le milieu. Les photons sortants sélectionnés sont ceux sortants par la face inférieure du milieu (géométrie de rétrodiffusion). On stocke la position de sortie du photon (X, Y) dans le repère du laboratoire. Le plan de rétrodiffusion fait $10\langle l_{TR} \rangle$ de côté et est discrétisé en 500 pixels en coordonnées cartésiennes. On discrétise également le plan de rétrodiffusion en coordonnées polaires avec une résolution angulaire $\Delta = 5^\circ$ et une résolution spatiale $\Delta\rho = \langle l_{TR} \rangle / 1000$. La figure 5.6 est un exemple de représentation logarithmique en fausses couleurs de l'image de rétrodiffusion obtenue par le stockage en coordonnées cartésiennes.

Trois paramètres entrent en jeu dans le cadre de nos simulations : l'indice de réfraction relatif m , le paramètre de taille x , et enfin l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement $\frac{a}{b}$. Nous avons réalisé une base de données comme dans le cas des sphéroïdes. Pour chaque indice de réfraction relatif m , on fait varier x de 0.1 à 10 et l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement de 0 (particules toutes orientées) à 1 (particules orientées aléatoirement). Le code de calcul a été développé en DELPHI (Borland Corp.) comme dans le cas des sphéroïdes.

La figure 5.6 représente un exemple de résultat obtenu grâce aux simulations de Monte Carlo. Il s'agit de la représentation en fausses couleurs de l'image de rétrodiffusion 2D dans le cas d'un milieu constitué d'une collection de particule cylindriques de longueur infini et de paramètre de taille $x = 2.63$, d'indice de réfraction relatif $m = 1.05$ et pour

une anisotropie de l'ellipsoïde de confinement $\frac{a}{b} = 0.2$. L'image de rétrodiffusion obtenue est normalisée par la longueur de transport moyenne définie par l'équation (5.7). Nous cherchons à relier l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion à l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement.

5.3.3 Descriptions qualitatives des images de rétrodiffusion

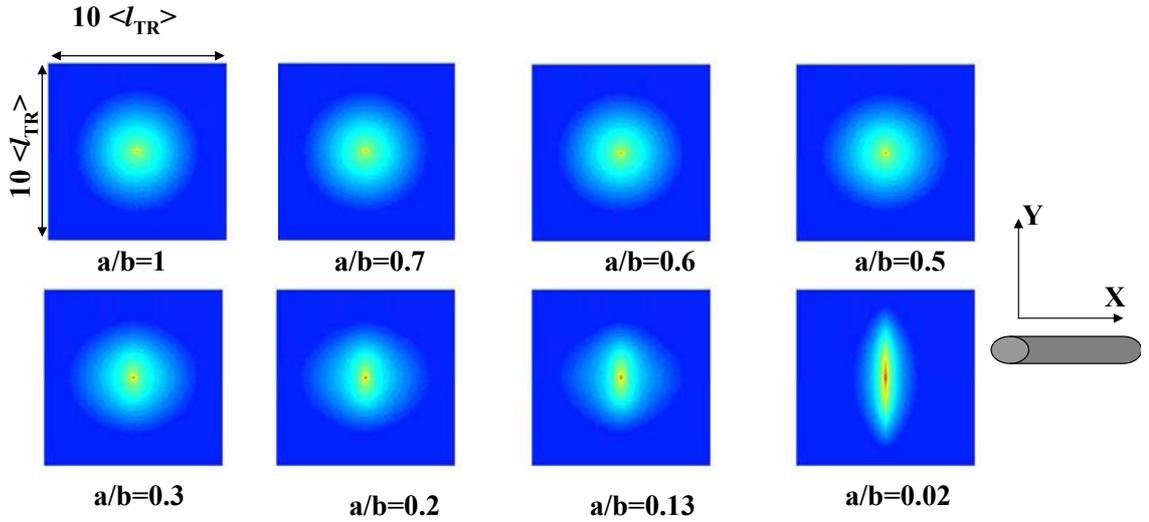


FIGURE 5.7 – Image de rétrodiffusion 2D obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$, $x = 2.63$ pour différents anisotropies de l'ellipsoïde de confinement a/b

La figure 5.7 représente les images de rétrodiffusion 2D obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo. Les intensités sont en échelle logarithmique et en fausses couleurs. Les particules cylindriques ont un indice de réfraction relatif $m = 1,05$ et un paramètre de taille $x = 2.65$. On fait varier l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement de 0 à 1. L'image de rétrodiffusion est isotrope lorsque l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement vaut 1. Puis, lorsqu'on diminue l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement, l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion augmente. L'anisotropie de l'image de rétrodiffusion provient de l'orientation des particules. Par conséquent, une diminution de l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement signifie que les particules s'orientent de plus en plus dans la direction OX.

Par ailleurs, comme dans le cas des sphéroïdes, nous observons une double anisotropie de l'image de rétrodiffusion. Une anisotropie au centre de l'image de rétrodiffusion dans la direction OY ; il s'agit de l'*anisotropie proche*. Une seconde anisotropie loin du centre

de l'image de rétrodiffusion suivant l'axe OX ; il s'agit de l'anisotropie lointaine.

5.4 Etude de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion

5.4.1 Première étape de l'analyse d'image : variation radiale d'intensité

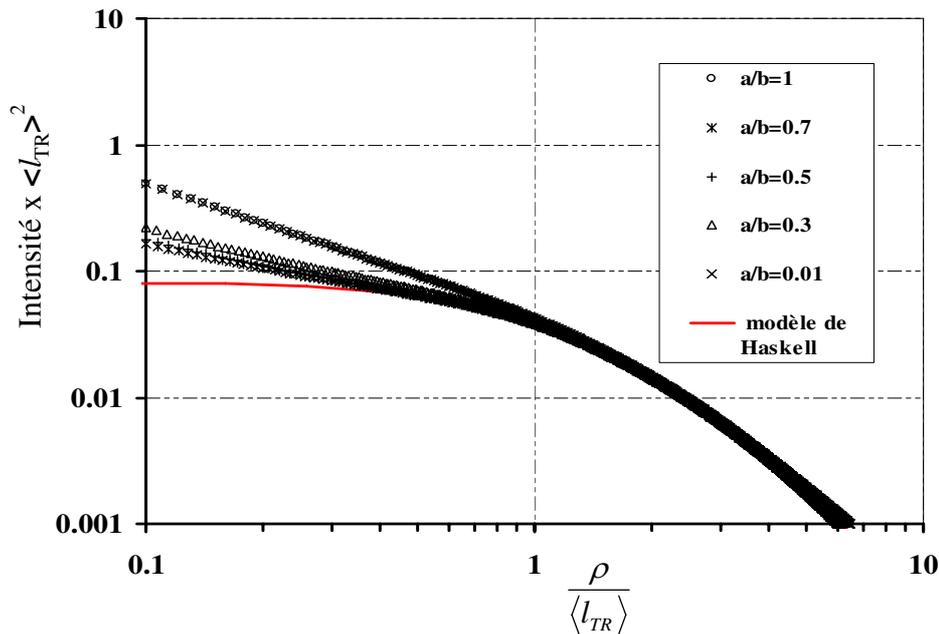


FIGURE 5.8 – Variation radiale d'intensité normalisées pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement ($m = 1.05$, $x = 2.63$)

L'analyse des simulations de Monte Carlo débute par l'analyse des variations radiales moyennes d'intensité. Nous obtenons les variations radiales $I(\rho)$ en faisant la moyenne suivant tous les angles $\theta \in [0..2\pi[$ de l'intensité pour chaque position radiale ρ . Sur la figure 5.8, nous avons représenté les décroissances radiales d'intensité obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement et pour $m = 1.05$ et $x = 2.65$. On obtient alors une courbe d'intensité $I(\rho)$ que l'on peut comparer à l'approximation de diffusion (relation (1.17)). L'intensité est normalisée par $\langle l_{TR} \rangle^2$ et l'espace par $\langle l_{TR} \rangle$.

On observe une bonne correspondance entre les décroissances radiales d'intensité et le modèle de Haskell (relation (1.17)) sur l'intervalle $\rho / \langle l_{TR} \rangle = [1; +\infty[$. Ceci prouve

encore une fois que la notion de longueur de transport moyenne a bien un sens lorsqu'il s'agit d'un milieu anisotrope.

5.4.2 Seconde étape de l'analyse d'image : variation angulaire d'intensité

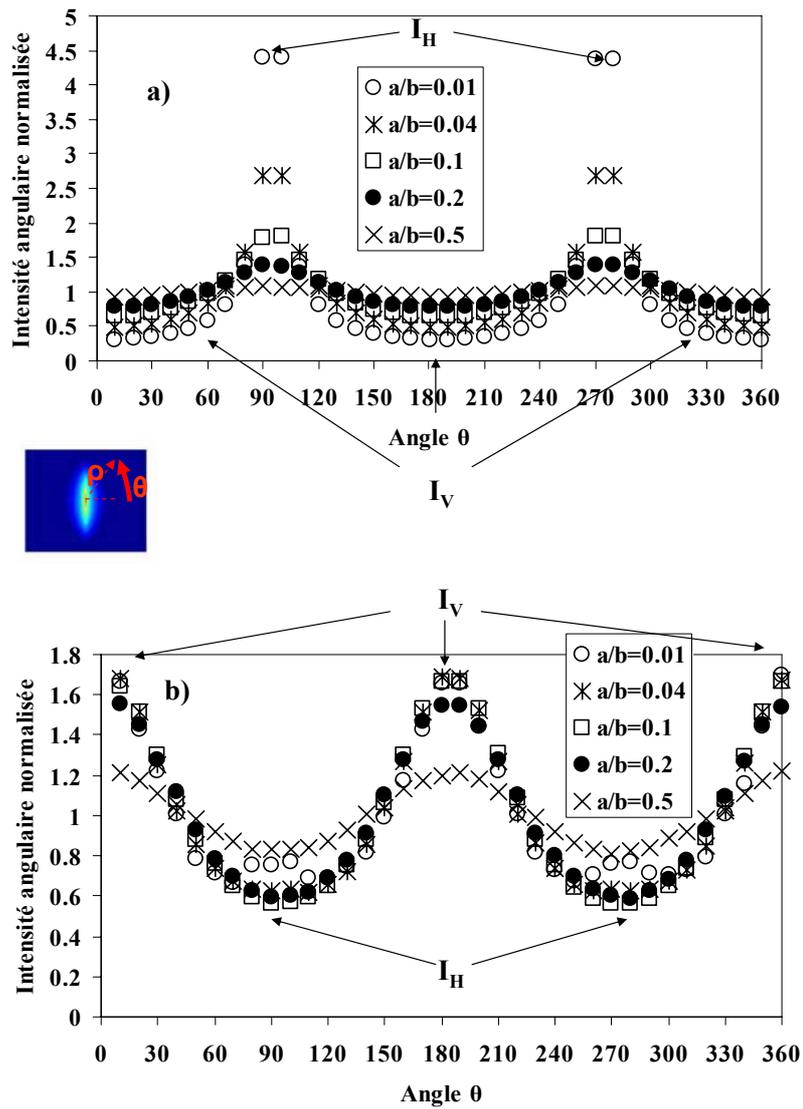


FIGURE 5.9 – a) Variations angulaires d'intensité pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement $m = 1.05$, $x = 2.63$ a) en $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 0.5$ b) $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 8$

La seconde étape de l'analyse des simulations de Monte Carlo consiste à étudier les variations angulaires d'anisotropie. Pour ce faire, on se place à une distance ρ constante

du barycentre de l'image de rétrodiffusion et on mesure la variation angulaire d'intensité. Pour chaque angle θ , on effectue la moyenne de l'intensité sur un élément de surface d'épaisseur 10 pixels à partir de la position $\rho / \langle l_{\text{TR}} \rangle = \text{constante}$.

La figure 5.9a) représente la variation angulaire d'intensité obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$ et $x = 2.68$ et pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement à une distance $\rho / \langle l_{\text{TR}} \rangle = 0,5$. Nous observons un maximum d'intensité en $\theta = 90^\circ$ et en $\theta = 270^\circ$. Il y a donc une anisotropie de l'image de rétrodiffusion suivant l'axe OY. Les variations angulaires de la figure 5.9a) représente donc les variations angulaires d'intensité proche du centre de l'image de rétrodiffusion, soit l'*anisotropie proche*.

La figure 5.9b) représente la variation angulaire d'intensité obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$ et $x = 2.68$ et pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement à une distance $\rho / \langle l_{\text{TR}} \rangle = 8$. Nous observons un maximum d'intensité en $\theta = 0^\circ$, en $\theta = 180^\circ$. Il y a donc une anisotropie de l'image de rétrodiffusion suivant l'axe OX. Les variations angulaires de la figure 5.9b) représente donc les variations d'intensité loin du centre l'image de rétrodiffusion, soit l'*anisotropie lointaine*.

L'augmentation de l'orientation des particules provoque donc une augmentation de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion. Dans le cas des sphéroïdes, l'anisotropie des objets est à l'origine de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion tandis que dans le cas des particules partiellement orientées, c'est l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement qui est à l'origine de l'anisotropie du milieu et donc de l'image de rétrodiffusion.

A partir de la variation angulaire d'intensité, pour chaque position $\rho \in [0; +\infty[$ dans le plan de rétrodiffusion, on mesure une anisotropie radiale définie par la relation (5.22) ;

$$A^{x,m,\frac{a}{b}}(\rho/l_{\text{TR}}) = \frac{I_V - I_H}{I_V + I_H} \quad (5.22)$$

Où I_H est l'intensité angulaire suivant la direction parallèle à l'axe des objets (axe OX) et I_V est l'intensité angulaire suivant la direction perpendiculaire à l'axe des objets (axe OY) à chaque position radiale.

5.4.3 Troisième étape de l'analyse d'image : variation radiale d'anisotropie

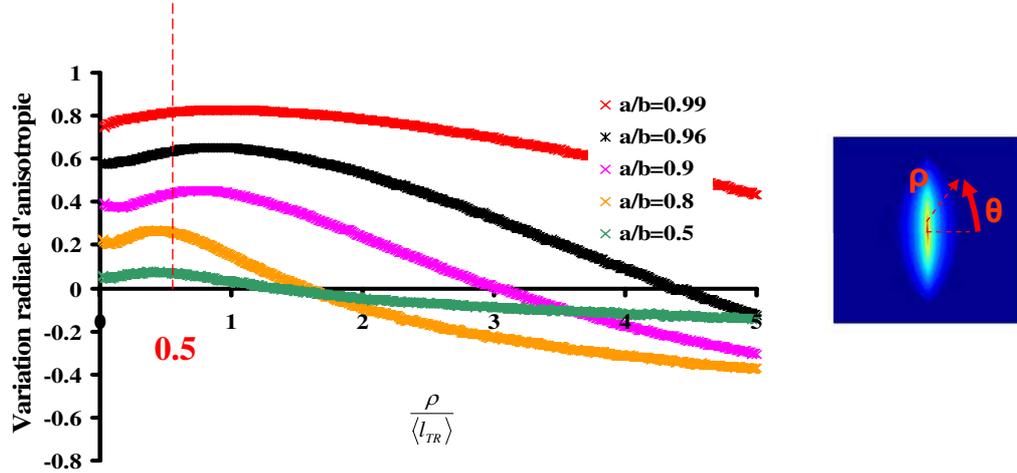


FIGURE 5.10 – variation radiale d’anisotropie pour différentes anisotropies de l’ellipsoïde de confinement ($m = 1.05 ; x = 2.68$)

L’étape suivante de l’analyse consiste à étudier les variations radiales d’anisotropie. La figure 5.10b) représente la variation radiale d’anisotropie pour différentes anisotropies de l’ellipse de confinement obtenues à l’aide des simulations de Monte Carlo pour $x = 2.68$ et $m = 1.05$. La distance radiale est normalisée par la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$.

Comme dans le cas des sphéroïdes, on observe une augmentation de l’anisotropie radiale jusqu’à une valeur maximale située aux alentours de $\rho = \langle l_{TR} \rangle / 2$ puis une décroissance de cette anisotropie jusqu’à atteindre une valeur asymptotique. Comme dans le cas des sphéroïdes déformables, à partir de chaque simulation $(m, x, a/b)$, nous obtenons une image de rétrodiffusion 2D du transport incohérent de lumière dans un milieu anisotrope. Grâce à cette image de rétrodiffusion 2D, nous déterminons la variation radiale d’anisotropie. A partir de ces variations, nous retenons deux grandeurs physiques pour caractériser l’anisotropie de l’image de rétrodiffusion : l’anisotropie proche, perpendiculaire à l’orientation des particules et correspondant à l’anisotropie de l’image en $\rho = \langle l_{TR} \rangle / 2$ et à l’aide de l’ajustement exponentiel (relation 3.24), nous extrayons l’anisotropie lointaine de l’image de rétrodiffusion en $\rho / \langle l_{TR} \rangle \rightarrow \infty$. Une base de donnée a ainsi été constituée pour chaque simulation $(m, x, a/b)$, l’anisotropie lointaine et l’anisotropie proche ont été

extraites de chaque image de rétrodiffusion (voir figures 5.11 et 5.12).

5.4.4 Résultats des simulations de Monte Carlo

La figure 5.11 représente l'évolution de l'anisotropie proche en fonction de l'anisotropie a/b de l'ellipsoïde de confinement pour différents indices de réfraction relatifs m et différents paramètres de taille x . Comme nous l'avons observé sur les figures 5.7, l'anisotropie proche augmente lorsque l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement diminue.

La figure 5.12 représente l'évolution de l'anisotropie lointaine en fonction de l'anisotropie a/b de l'ellipsoïde de confinement pour différents indices de réfraction relatifs m et différents paramètres de taille x . Comme nous l'avons observé sur les figures 5.7, l'anisotropie lointaine augmente lorsque l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement diminue.

Que ce soit pour l'anisotropie proche ou pour l'anisotropie lointaine, nous obtenons une courbe unique reliant l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion à l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement quelque soit le paramètre de taille et le rapport d'indices de réfraction.

En comparant ces résultats aux figures 3.17a) et 3.17b) pour les ellipsoïdes orientés, nous constatons à nouveau l'indépendance de l'anisotropie en fonction du rapport d'indices de réfraction m . En revanche, l'indépendance avec le paramètre de taille x est plus surprenante. Nous pouvons penser que ceci résulte du caractère infini de sa longueur, donc en particulier toujours supérieure à la longueur d'onde incidente. Cette double indépendance de l'anisotropie de l'image avec m et x permet de relier de façon particulièrement simple l'anisotropie du transport diffusif en terme d'orientation moyenne de particules très allongées.

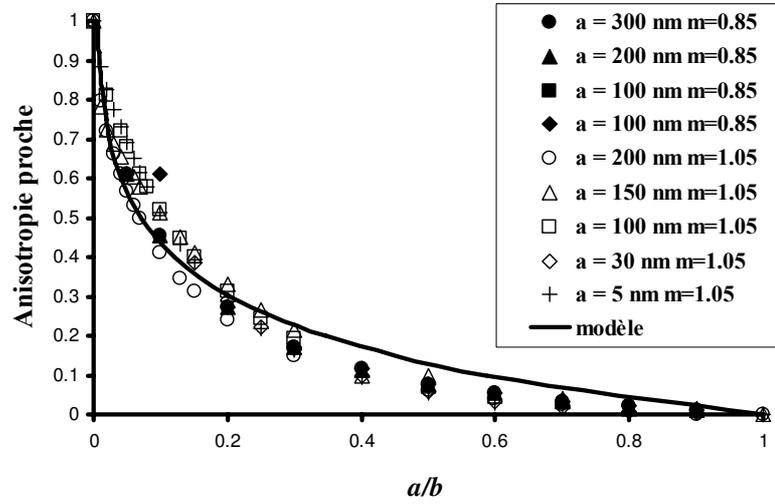


FIGURE 5.11 – Anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion en fonction de la fraction d'objets orientés ($m = 1.05$)

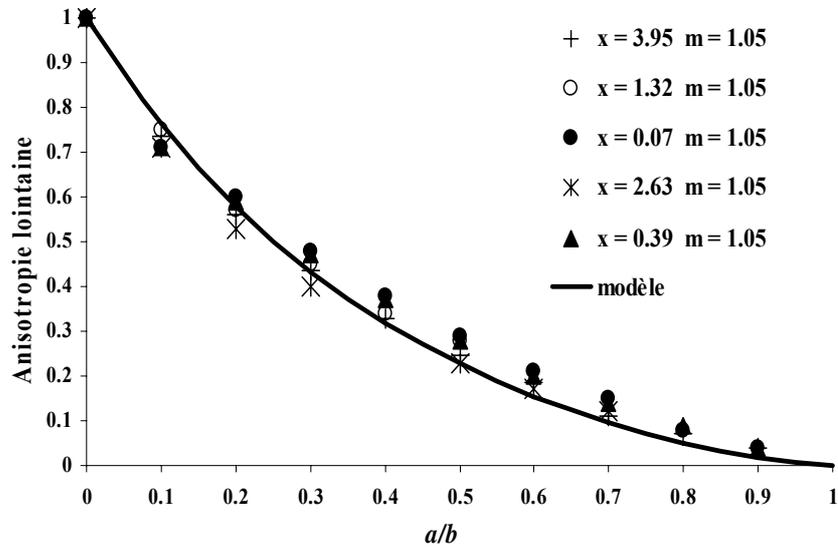


FIGURE 5.12 – Anisotropie lointain de l'image de rétrodiffusion en fonction de la fraction d'objets orientés ($m = 1.05$)

5.5 Inversion du paramètre d'ordre

Pour déterminer l'orientation des objets ε à partir de l'image de rétrodiffusion, soit l'ellipsoïde de confinement du vecteur orientation a/b , la procédure suivante peut être suivie :

1. La première étape consistera à mesurer la décroissance radiale d'intensité $I(\rho)$ obtenue en faisant la moyenne des intensités sur tous les angles θ et de l'ajuster au modèle de Haskell (relation (1.17)) afin de déterminer la longueur de transport moyenne $\langle l_{TR} \rangle$.
2. La seconde étape consistera à déterminer l'anisotropie radiale $A(\rho / \langle l_{TR} \rangle)$ de l'image de rétrodiffusion. A partir de cette courbe, on prélève l'anisotropie proche ou l'anisotropie lointaine de l'image de rétrodiffusion.
3. les figures 5.11 et 5.12 permettent alors d'inverser directement l'anisotropie proche ou lointaine de l'image de rétrodiffusion en terme d'ellipsoïde de confinement du vecteur orientation a/b .

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons modélisé le transport incohérent de lumière non-polarisée dans un milieu constitué de particules très allongées et partiellement orientées. En l'occurrence, les particules sont des cylindres infinis et possèdent une orientation statique partielle dans le milieu considéré. A partir de l'événement local de dispersion, on est en mesure de construire à l'aide de la théorie de Mie sur les cylindres infinis et des simulations de Monte Carlo, le phénomène de diffusion de lumière dans un milieu constitué de particules anisotropes. Le transport de lumière dépend de l'indice de réfraction relative m , du paramètre de taille des particules x , de la fraction d'objets orientés $\frac{a}{b}$ et de la fraction volumique ϕ . Cependant dans nos simulations, on s'affranchit de la dépendance de ce dernier paramètre en normalisant l'intensité par $\langle l_{TR} \rangle^2$ et l'espace par $\langle l_{TR} \rangle$.

L'analyse des simulations montrent qu'on est capable de remonter à l'information que l'on souhaitait obtenir au début de ce chapitre, à savoir l'orientation partielle des particules à partir de l'anisotropie de l'image. Une relation a été trouvée et on constate que cette relation est indépendante de la taille des particules et de l'indice de réfraction relatif des particules du milieu considéré.

A présent, nous allons valider cette technique en l'appliquant à l'étude des micro-tubes de lipides sous cisaillement.

Annexe : Calcul de la l'ellipsoïde de confinement

La problématique est la suivante : on confine un vecteur orientation de la particule dans un ellipsoïde de confinement de rapport d'aspect a/b . On souhaite déterminer la densité de probabilité $\text{PDF}(\theta)$ permettant de confiner le vecteur orientation à l'intérieur de cet ellipsoïde de confinement. La densité de probabilité vérifie en outre la relation suivante :

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi \text{PDF}(\theta) \sin(\theta) d\theta &= 4\pi \\ \frac{1}{2} \int_0^\pi \text{PDF}(\theta) \sin(\theta) d\theta &= 1 \end{aligned} \quad (5.23)$$

On calcule les coordonnées de l'ellipsoïde dans le repère cartésien en fonction des angles θ et ϕ :

$$\begin{aligned} x &= a \cos(\phi) \sin(\theta) \\ y &= a \sin(\phi) \sin(\theta) \\ z &= b \cos(\theta) \end{aligned} \quad (5.24)$$

On détermine les coordonnées x', y', z' de la sphère équivalente dans ce même repère :

$$\begin{aligned} x' &= \cos(\phi') \sin(\theta') \\ y' &= \sin(\phi') \sin(\theta') \\ z' &= \cos(\theta') = \frac{z}{r} = \frac{\cos(\theta)}{\sqrt{\frac{a^2}{b^2} \cos^2(\theta) + \sin^2(\theta)}} \end{aligned} \quad (5.25)$$

On définit la norme r par la relation suivante : $r = b \sqrt{\frac{a^2}{b^2} \cos^2(\theta) + \sin^2(\theta)}$
Par définition, on calcule la fonction de distribution cumulative $\text{CDF}(\theta)$:

$$\text{CDF}(\theta) = \frac{1}{2} \int_0^\theta \text{PDF}(\theta') \sin(\theta') d\theta' \quad (5.26)$$

Cependant, la densité de probabilité d'une sphère uniforme est égale à 1 et comme en changeant de référence, on conserve la distribution angulaire alors :

$$\begin{aligned} \text{CDF}(\theta) &= \frac{1}{2} \int_0^\theta \sin(\theta') d\theta' \\ &= \frac{1}{2} \int_0^\theta \text{PDF}(\theta) \sin(\theta) d\theta \end{aligned} \quad (5.27)$$

Soit :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \text{PDF}(\theta) \sin(\theta) &= -\frac{1}{2} \frac{d(\cos(\theta'))}{d\theta} \\ &= -\frac{1}{2} \frac{d}{d\theta} \left(\frac{\cos(\theta)}{\sqrt{\frac{a^2}{b^2} \cos(\theta)^2 + \sin(\theta)^2}} \right) \end{aligned} \quad (5.28)$$

On trouve ainsi le résultat suivant :

$$\text{PDF}(\theta) = \frac{a/b}{\left[\frac{a^2}{b^2} \sin(\theta)^2 + \cos(\theta)^2 \right]^{3/2}} \quad (5.29)$$

Chapitre 6

Caractérisation de l'orientation par diffusion de la lumière

Sommaire

6.1	Système étudié : les microtubes de lipides	162
6.2	Orientation sous cisaillement par diffusion de lumière	170
6.3	Orientation sous cisaillement par diffusion des rayons-X aux petits angles	178
6.4	Influence de la température sur le cisaillement	184
6.5	Conclusion	186

Dans ce chapitre, nous présenterons le principe de mesure de l'orientation moyenne par diffusion multiple de la lumière sur une suspension de microtubes de lipides sous écoulement. Puis, nous réaliserons une confrontation des données obtenues par diffusion multiple de la lumière avec des données obtenues par dispersion des rayons-X aux petits angles (SAXS)

6.1 Système étudié : les microtubes de lipides

6.1.1 Analyse par microscopie

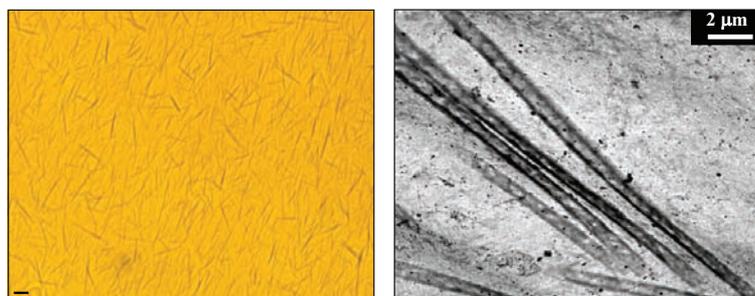


FIGURE 6.1 – Images de tubes lipidiques (dispersion aqueuse à 1% du sel d'éthanolamine de l'acide 12-hydrostéarique) observées à température ambiante a) par microscopie optique en contraste de phase (barre d'échelle : $10\mu m$) b) par microscopie électronique à transmission [26]

Le système que nous avons étudié est constitué de supramolécules amphiphiles. Les supramolécules amphiphiles présentent un intérêt croissant car elles ont la capacité à former des structures variées. Douliez *et al.* [27, 26] ont mis au point un système constitué de supramolécules amphiphiles capables de se structurer de manière à avoir une structure tubulaire avec un coeur et une enveloppe extérieure hydrophile. Le système étudié est constitué de sels d'éthanolamine de l'acide 12-hydroxy-stéarique et s'avère capable (sous forme de dispersion aqueuse) de former des tubes creux de plusieurs dizaines de microns de long et dont le diamètre extérieur varie de 600 nm à $5\mu m$ selon la température appliquée (voir figure 6.1). Les échantillons sont préparés en mélangeant une masse connue de poudre d'acides gras 12-hydroxy-stéarique (Aldrich, pure à 98%) dans de l'eau pure. Puis on mélange la solution obtenue avec la solution de sels d'éthanolamine (Sigma, pur à 98%). On chauffe jusqu'à $75\text{ }^\circ\text{C}$, ce qui permet de dissoudre la totalité des composants de la solution. La solution est alors fluide et transparente. Puis, on laisse refroidir la solution à température ambiante. La solution obtenue devient turbide et pour des concentrations supérieures à 50 mg/ml on obtient un gel.

Douliez *et al.* [26] étudient l'état d'organisation de la phase lipidique sous forme de tubes creux à l'aide de diverses techniques notamment la technique de diffusion des neutrons aux petits angles (SANS). Les mesures de SANS ont été réalisées sur un échantillon à 1% en fraction volumique d'acide 12-hydroxystéarique dans une solution d'éthanolamine.

L'échantillon est placé dans une cellule de quartz rectangulaire. Les expériences de SANS ont montré que les microtubes sont constitués de plusieurs couches concentriques séparées les unes des autres par plusieurs couches d'eau. Les microtubes ont une longueur de $L \approx 10 \mu m$ et un diamètre $D \approx 400 \mu m$. La distance entre les couches est d'environ $35 nm$.

Douliez *et al.* [27] étudient ensuite l'évolution du diamètre en fonction de la température à l'aide d'un microscope à contraste de phase. Les études sont menées sur des échantillons à 1% et à 10% en fraction volumique d'acide 12-hydroxystéarique dans une solution d'éthanolamine. Il observe alors une augmentation du volume des tubes de $4 \mu m$ en moyenne jusqu'à $50^\circ C$.

6.1.2 Etude structurale par diffusion des rayons-X

Rappels sur la diffusion des rayons-X

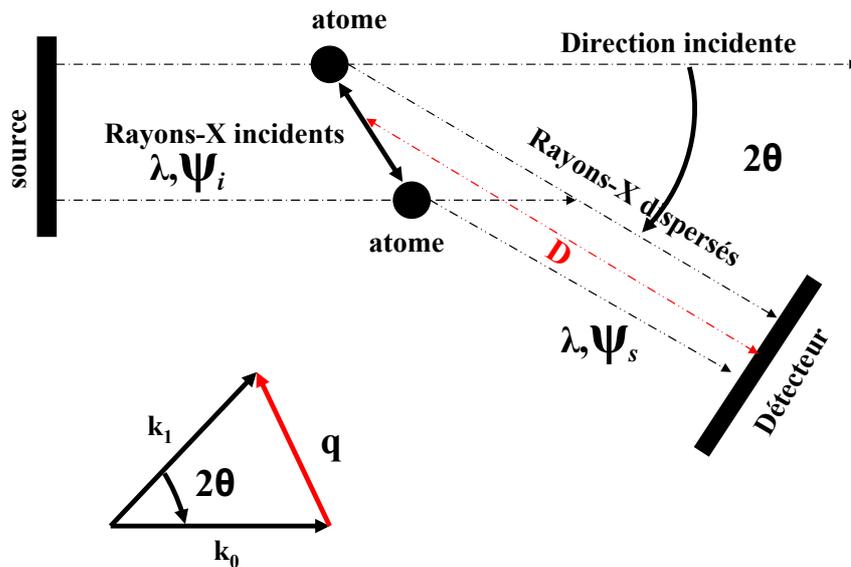


FIGURE 6.2 – Schéma de principe de la diffusion des rayons-X

La technique basée sur la diffusion aux petits angles des rayons-X ("Small Angle X-rays Scattering") permet de caractériser les dispersions concentrées en particules de façon précise, non-destructive et nécessite très peu d'échantillon. On réduit la longueur d'onde de la source de manière significative ($\lambda = 0.1 nm$) afin de rendre le milieu optiquement mince. Le principe de la technique consiste à irradier un échantillon à l'aide d'une source de rayons-X. On place le détecteur de rayons-X à une distance définie de l'échantillon.

L'angle entre la direction du faisceau incident et la direction du faisceau dispersé définit l'angle de dispersion θ . Un système optique permet de focaliser le faisceau lumineux. Le dispositif appelé beam stop permet de protéger le détecteur de la brillance du faisceau incident. La source de rayons-X peut provenir soit d'un réacteur de rayons-X mais le temps d'exposition de l'échantillon au rayonnement pour l'acquisition d'une image est de plusieurs heures; soit d'un synchrotron avec un temps d'exposition au rayonnement de quelques millièmes de secondes à quelques dixièmes de secondes. Le synchrotron est plus adapté pour des expériences en dynamique.

Les rayons-X constituent une onde électromagnétique. Lors de la diffusion élastique, une onde électromagnétique plane $\psi_i(x, t) = \psi_0 \cdot e^{i(\omega t - k_0 x)}$ ($k_0 = 2\pi/\lambda$ vecteur d'onde, ω pulsation) éclaire un échantillon. Ils interagissent avec les nuages électroniques des atomes. On parle de **diffusion élastique** lorsque les rayons-X rebondissent sur le nuage électronique et sont diffusés dans toutes les directions de l'espace en conservant leur énergie et leur longueur d'onde. L'onde diffusée ψ_s est sphérique et son amplitude varie comme l'inverse de la distance D au centre du diffuseur.

$$\psi_s = \psi_0 \frac{b}{D} e^{i(\omega t - k_0 D)} \quad (6.1)$$

Où b est la longueur de diffusion.

Lorsque les rayons-X traversent la matière, ils sont dispersés par chacun des atomes de l'échantillon. Les rayons dispersés interfèrent entre eux. Si les atomes sont ordonnés, c'est-à-dire placés à des intervalles réguliers comme dans les cristaux, ces interférences vont être constructives dans certaines directions (c'est-à-dire qu'ils s'additionnent) et destructrices dans d'autres directions (c'est-à-dire qu'ils s'annulent). On parle alors de phénomène de diffraction.

Par rapport à l'origine O , l'onde électromagnétique de vecteur d'onde \vec{k}_1 diffusée par un atome situé en M tel que $\vec{OM} = \vec{r}$ est déphasée de $\vec{r}(\vec{k}_1 - \vec{k}_0) = \vec{r} \cdot \vec{q}$. Le vecteur \vec{q} est le vecteur de diffusion, de norme $q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta)$ où 2θ est l'angle de diffusion. Si $\psi(0, t)$ est l'onde diffusée par l'origine alors l'onde diffusée par l'atome en M est définie par la relation (6.2) :

$$\psi(r, t) = \psi(0) e^{i\vec{r} \cdot \vec{q}} \quad (6.2)$$

L'onde diffusée ψ par les n atomes de l'échantillon est la somme des ondes ψ_i diffusées par chaque atome. Dans le cas où le détecteur est situé à une distance nettement plus

grande que la taille de l'échantillon alors le détecteur voit les atomes sous le même angle et la relation (6.3) définit l'onde diffusée par les n atomes :

$$\Psi(r, t) = \frac{\Psi(0)}{D} \sum_{j=1}^n b_j e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}_j} \quad (6.3)$$

La relation (6.4) permet de calculer l'intensité diffusée $I(q)$:

$$I(q) = \Psi^2 = \Psi \cdot \Psi^* = \frac{\Psi(0)^2}{D^2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n b_i b_j e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}_i - \vec{r}_j)} \propto \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n b_i b_j e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r}_i - \vec{r}_j)} \quad (6.4)$$

Lorsque les atomes sont regroupés en molécules de petite taille comparée à q^{-1} , les ondes diffusées par les différents atomes d'une molécule sont en phase et leur amplitude s'ajoute. La molécule se comporte comme un **diffuseur élémentaire** dont la longueur de diffusion est la somme des longueurs de diffusion des atomes qui la constituent.

L'analyse de la décroissance angulaire d'intensité $I(q)$ de l'image de diffusion permet de déterminer la forme des particules, la taille moyenne des particules ainsi que la concentration en particules. La technique permet d'analyser des dispersions de particules dont la gamme de taille est comprise entre 1 nm et 50 nm pour les très faibles angles (typiquement pour des angles compris entre 0.1° et 10°). Le facteur de forme des objets $P(q)$ contient l'information concernant les corrélations entre les positions des diffuseurs élémentaires d'un même objet tandis que le facteur de structure $S(q)$ contient les informations sur les corrélations entre les positions des centres de gravités des objets. L'intensité diffusée est proportionnelle au produit de ces deux paramètres :

$$I(q) \approx P(q) \times S(q) \quad (6.5)$$

Analyses des spectres de diffusion

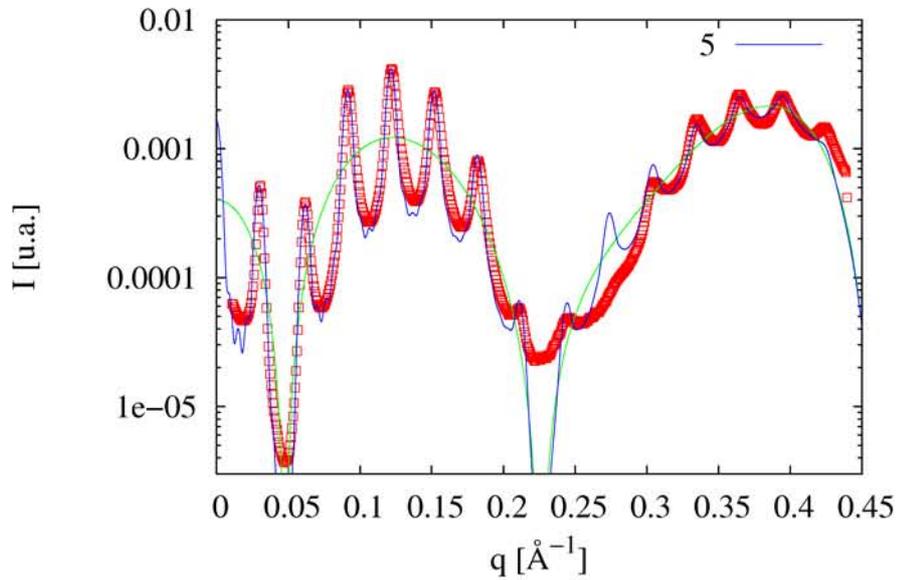


FIGURE 6.3 – Variations radiales d'intensité $I(q)$ à $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$ et à une température de 31 °C pour l'échantillon à 28 mg/ml

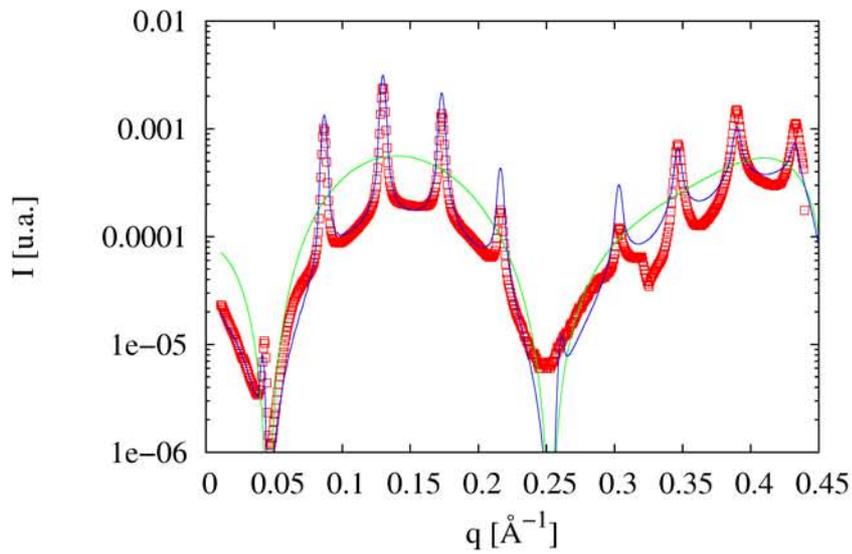


FIGURE 6.4 – Variations radiales d'intensité $I(q)$ à $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$ et à une température de 53 °C pour l'échantillon à 28 mg/ml

Sur les figures 6.3 et 6.4, on a représenté les intensités $I(q)$ obtenues pour un échantillon à 28 mg/ml à une température de 31 °C et à une température de 53 °C pour un

cisaillement $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$.

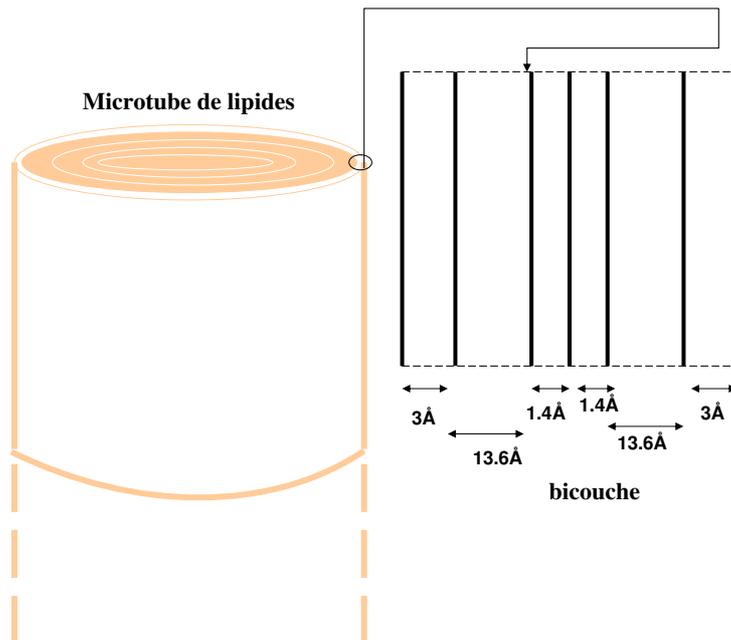


FIGURE 6.5 – structure d'un microtube de lipides

L'analyse de ces courbes d'intensité permet d'obtenir des informations sur la structure des microtubes de lipides. Le professeur Nallet (Centre de recherche Paul Pascal, Pessac-France) montre ainsi que la structure des microtubes de lipides est une structure en multicouches périodiques et plus précisément un empilement de couches périodiques. Les courbes en vert correspondent à la modélisation du facteur de forme tandis que les courbes en bleu correspondent à la modélisation du facteur de structure.

La première structure multicouche est une bicouche de 36 angströms d'épaisseur. La figure 6.5 indique la répartition des sous-couches de la bicouche. Au total, il y a 11 bicouches et la distance entre chaque bicouche est d'environ 171 angströms. Le rayon de chaque microtube de lipides est alors d'environ 220 *nm*.

6.1.3 Etude structurale par diffusion de lumière

Evolution de la longueur de transport en fonction de la concentration

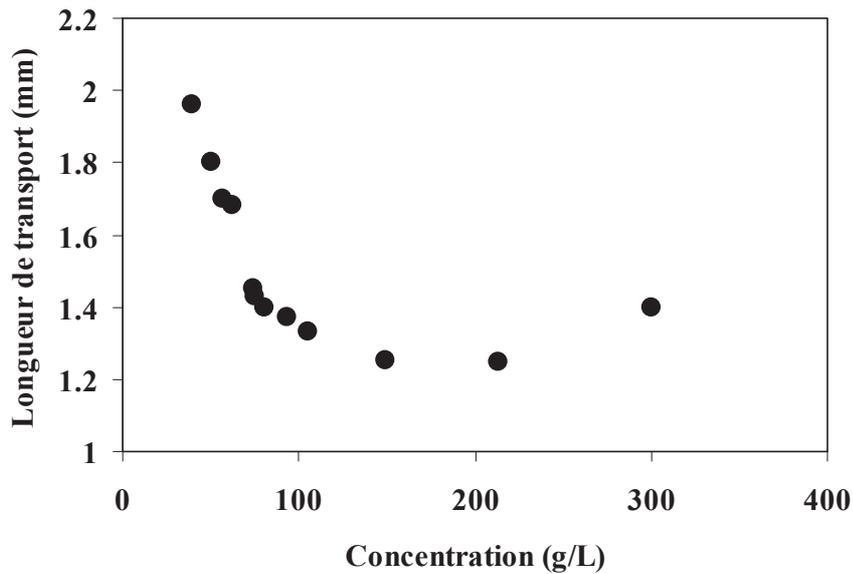


FIGURE 6.6 – longueur de transport en fonction de la concentration

Sur la figure 6.6, nous avons représenté l'évolution de la longueur de transport en fonction de la concentration. Nous observons deux zones distinctes sur cette figure. Dans un premier temps, nous observons que la longueur de transport diminue en fonction de la concentration jusqu'à une concentration limite qui se situe à environ 100 mg/ml . A partir de cette valeur de concentration, la longueur de transport augmente à nouveau en fonction de la concentration. Lorsque la concentration est très élevée, on est en régime de diffusion dépendante. Dans ce régime, chaque particule agit sur ses voisines car la distance moyenne entre les particules est proche de la longueur d'onde. Les événements de dispersion successifs deviennent de plus dépendants les uns des autres en régime de diffusion dépendante. Le régime de diffusion dépendante peut être estimé par une approximation de type potentiel d'interaction entre les particules. Dans la suite, nous nous intéresserons uniquement aux échantillons dont la concentration est inférieure à 100 mg/ml .

Mesure de la taille par polarisation

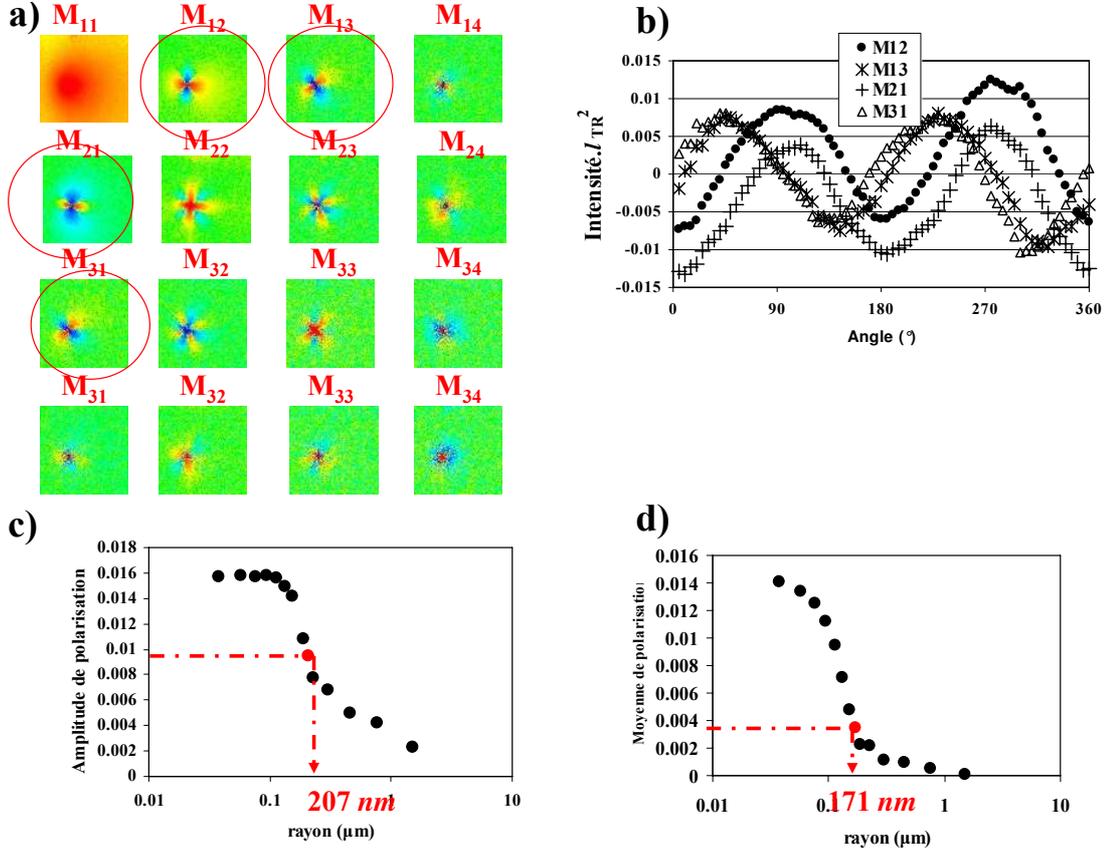


FIGURE 6.7 – Matrice de Mueller d’une suspension de microtubes de lipides

Nous décidons d’analyser les matrices de Mueller obtenues à l’aide des échantillons à 75 mg/ml pour déterminer une taille de particule moyenne.

L’analyse des matrices de Mueller débute par la mesure de la longueur de transport moyenne obtenue par ajustement du modèle de Haskell (relation (1.17)) sur l’élément M_{11} . La figure 6.7 correspond à la matrice de Mueller acquise en milieu épais. A partir des effets de polarisation en $\rho = \langle l_{TR} \rangle$ sur les éléments M_{12} , M_{21} , M_{31} et M_{13} , nous déterminons une taille moyenne de particules. Nous effectuons les inversions en taille avec les simulations de Monte Carlo correspondant à un paramètre d’indice $m = 1.44/1.33$ (les microtubes étant constitué de lipides d’indice de réfraction $N_p = 1.44$). L’amplitude de polarisation et la moyenne de polarisation donne un rayon moyen de 200 nm en parfait accord avec le résultat obtenu précédemment avec la diffusion des rayons-X.

6.2 Orientation sous cisaillement par diffusion de lumière

6.2.1 Résultats des expériences de diffusion de lumière

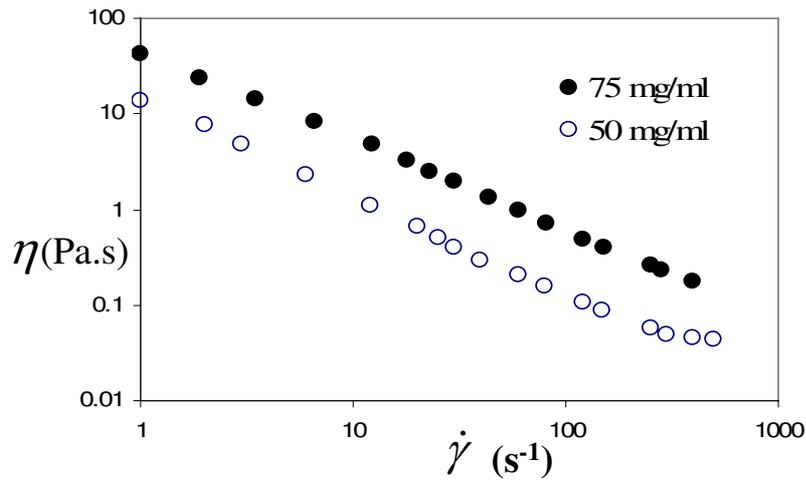


FIGURE 6.8 – Viscosité en fonction du cisaillement pour les deux échantillons

Les expériences de diffusion ont été réalisées à l'aide du dispositif basé sur le transport incohérent de lumière couplé à un rhéomètre plan-plan. L'entrefer est d'environ 3 mm. On acquiert la matrice de Mueller à l'aide du dispositif optique et simultanément, on effectue des mesures de viscosités.

Deux types d'échantillons ont été analysés : un premier à 50 mg/ml et un second échantillon à 75 mg/ml. On réalise des paliers de cisaillements de 5 minutes entre 1 s^{-1} et 500 s^{-1} . Pour chaque palier de cisaillement, on effectue l'acquisition d'une matrice de Mueller. Cependant, comme dans le cas de la déformabilité, nous nous intéressons seulement à l'élément M_{11} de la matrice de Mueller. Nous n'avons pas encore les éléments nécessaires pour interpréter la totalité de la matrice de Mueller pour un milieu anisotrope. Le système a un comportement rhéofluidifiant comme on peut le voir sur la figure 6.8 car la viscosité diminue lorsqu'on augmente le gradient de vitesse.

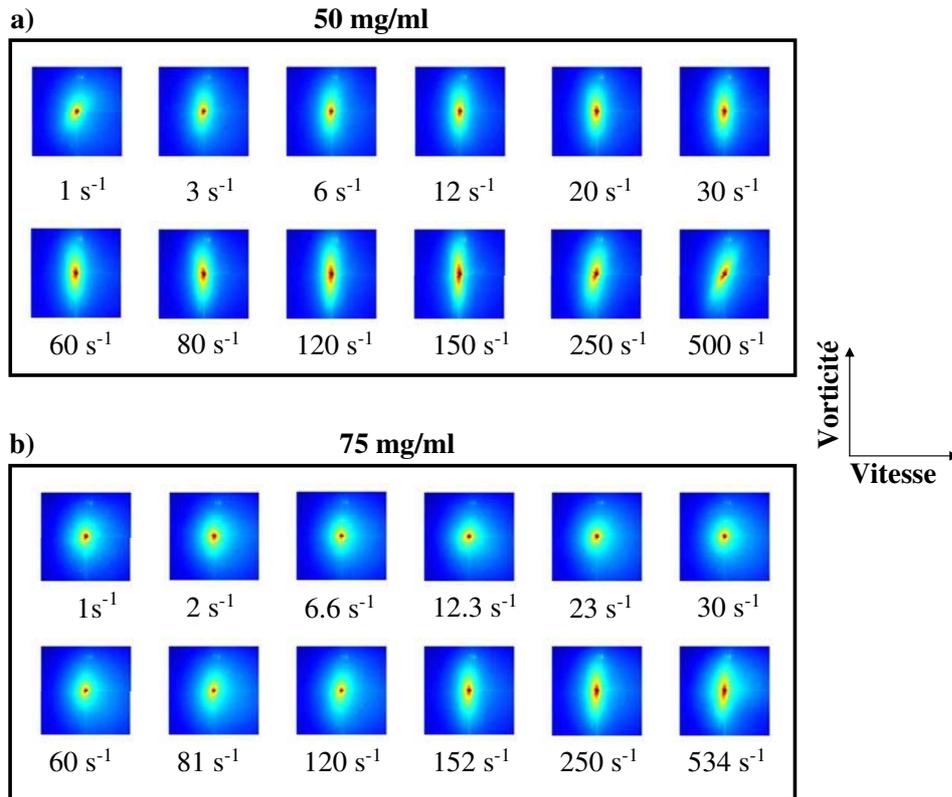


FIGURE 6.9 – a) Evolution de l'image de rétrodiffusion en fonction du cisaillement a) pour l'échantillon à 50 *mg/ml* b) pour l'échantillon à 75 *mg/ml*

Sur la figure 6.9, nous avons représenté l'évolution de l'image de rétrodiffusion en fonction du cisaillement pour les deux échantillons étudiés. On constate que l'image de rétrodiffusion devient de plus en plus anisotrope lorsque le cisaillement augmente. Il est faiblement anisotrope pour les faibles cisaillements (inférieurs à 1 s^{-1}) puis extrêmement anisotrope pour les cisaillements élevés. L'anisotropie proche (anisotropie au centre de l'image) est nettement plus élevée que dans le cas des émulsions. Et il semble d'ailleurs que la longueur de transport reste identique quelque soit le cisaillement.

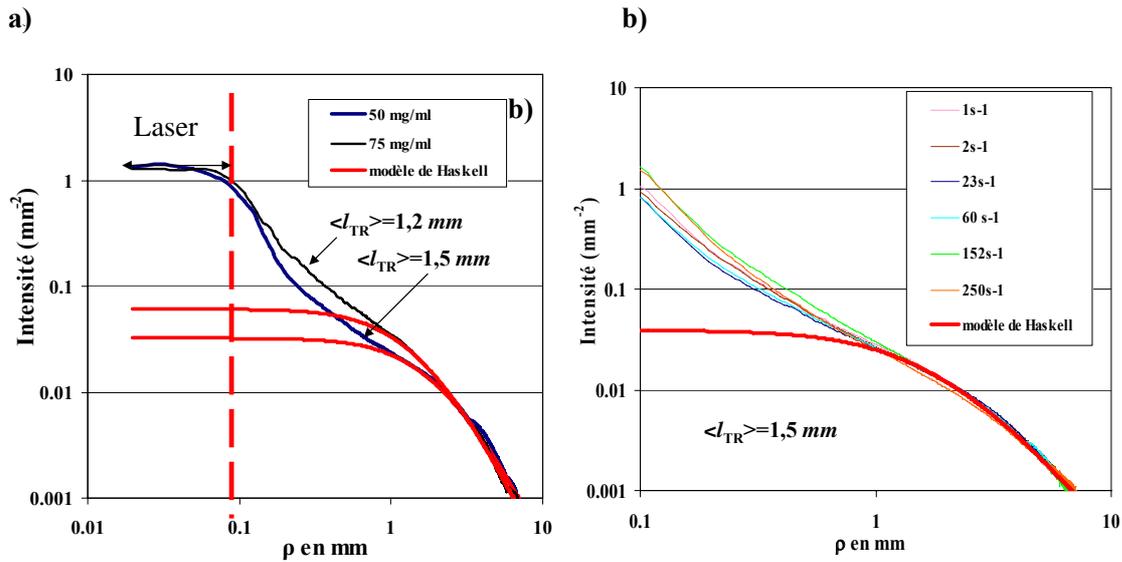


FIGURE 6.10 – a) variation radiale d'intensité des deux échantillons à 75 *mg/ml* et à 50 *mg/ml* à un cisaillement $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ b) variation radiale d'intensité de l'échantillon à 75 *mg/ml* à un cisaillement $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$

A partir des images de rétrodiffusion de la figure 6.9, nous décidons d'étudier l'évolution de la longueur de transport moyenne en fonction du cisaillement.

Sur la figure 6.10a), on a représenté la variation angulaire d'intensité des deux échantillons à 75 *mg/ml* et à 50 *mg/ml* à un cisaillement constant. Les longueurs de transport de deux échantillons sont respectivement de 1.2 *mm* pour l'échantillon à 75 *mg/ml* et de 1.5 *mm* pour l'échantillon à 50 *mg/ml*. La figure 6.10b) représente l'évolution de la décroissance radiale d'intensité en fonction du cisaillement pour l'échantillon à 75 *mg/ml*. La longueur de transport moyenne par ajustement de la variation radiale d'intensité sur le modèle de Haskell *et al.* [33]. Quelque soit le cisaillement, la longueur de transport n'évolue pas. On en conclut donc que la longueur de transport moyenne n'évolue pas en fonction du cisaillement. L'anisotropie de l'image de rétrodiffusion observée sur la figure 6.9 provient d'un pur effet d'orientation des particules sous cisaillement.

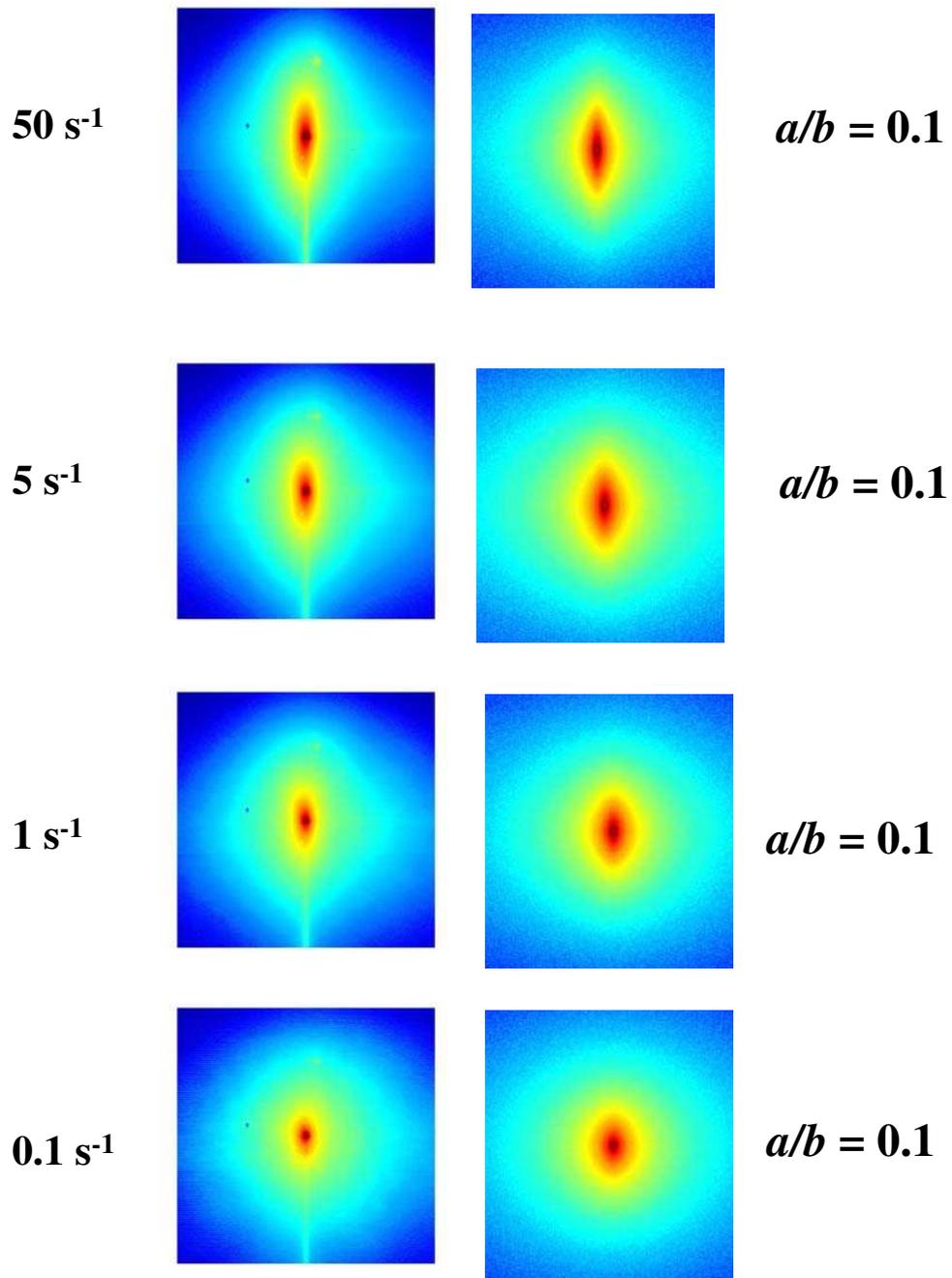


FIGURE 6.11 – Comparaison entre des images de rétrodiffusion pour l'échantillon à 28 *mg/ml*

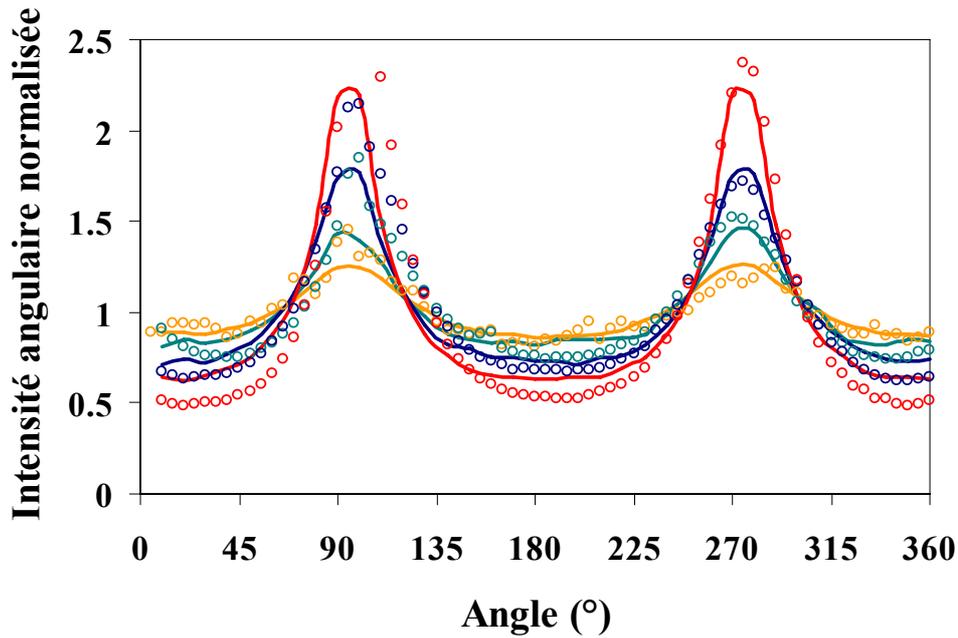


FIGURE 6.12 – Comparaison entre les variations angulaires d'intensité expérimentales pour l'échantillon à 85 mg/ml et les variations angulaires d'intensité obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$ en $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 0.5$

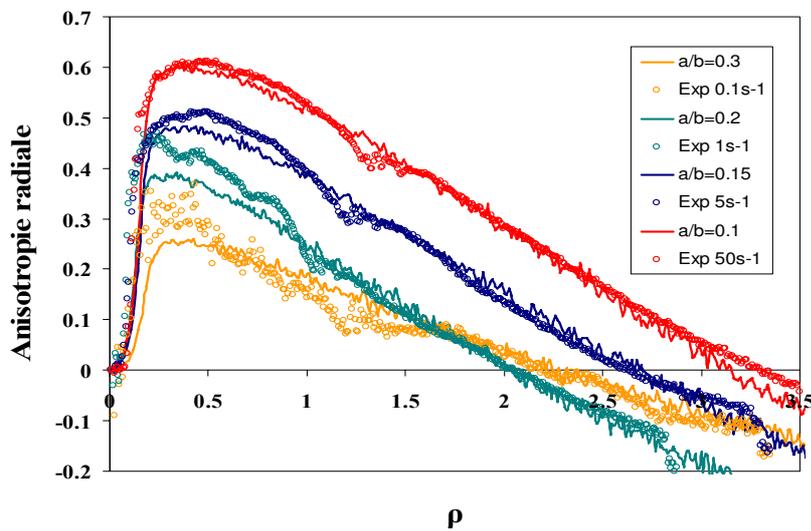


FIGURE 6.13 – Comparaison entre les variations radiales d'anisotropie expérimentales pour l'échantillon à 85 mg/ml et les variations radiales d'anisotropie obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$

6.2.2 Analyse de la variation angulaire d'intensité

Nous allons à présent nous intéresser à la variation angulaire d'intensité en fonction du gradient de vitesse. La figure 6.12 représente l'évolution de la variation angulaire d'intensité en fonction du gradient de vitesse pour un échantillon à 85 mg/ml . Nous nous apercevons que l'amplitude de la variation angulaire augmente lorsque le gradient de vitesse augmente. Nous observons un maximum en $\theta = 90^\circ$ et en $\theta = 270^\circ$ en $\rho/l_{\text{TR}} = 0.5$. Cela traduit une orientation globale des particules sous cisaillement dans la direction de l'écoulement et l'image de rétrodiffusion est anisotrope dans la direction perpendiculaire à la direction d'orientation des particules.

Sur la figure 6.12, on compare également les variations radiales d'intensité expérimentales aux variations angulaires d'intensité obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo. On obtient une bonne correspondance entre les variations expérimentales et les variations obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo. L'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement a/b est le paramètre ajustable pour obtenir une bonne correspondance entre les données expérimentales et les données obtenues par simulation de Monte Carlo avec un paramètre de taille $x = 0.65$ et un indice de réfraction relatif $m = 1.05$ (les lipides ont pour indice de réfraction relatif $m = 1.44$).

Lorsque le gradient de vitesse augmente l'amplitude des variations angulaires d'intensité augmente et le paramètre a/b qui correspond à l'anisotropie de l'ellipse de confinement augmente. Par conséquent, l'augmentation de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion correspond à une augmentation du taux d'orientation des particules.

6.2.3 Analyse de la variation radiale d'anisotropie

Nous allons à présent nous intéresser à la variation radiale d'anisotropie. Sur la figure 6.13, on a représenté les variations radiales d'anisotropie pour différents cisaillements dans le cas d'un échantillon à 85 mg/ml . La variation radiale d'anisotropie augmente jusqu'à atteindre un maximum en ρ/l_{TR} , puis elle décroît. Nous observons que lorsque le gradient de vitesse augmente, la variation radiale d'anisotropie augmente.

Sur la figure 6.13, on a également comparé les variations radiales d'anisotropie expérimentales pour un échantillon à 85 mg/ml avec les variations radiales d'anisotropie obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo. On obtient alors une bonne correspondance entre les variations radiales expérimentales et les simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$. Le seul paramètre ajustable sur ces courbes demeurent l'anisotropie de l'ellipse

de confinement du vecteur directeur. On s'aperçoit ainsi que lorsque le gradient de vitesse augmente, l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement diminue. Nous allons à présent nous intéresser à l'anisotropie proche et étudier l'évolution de l'anisotropie proche en fonction du cisaillement.

6.2.4 Mesure de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion

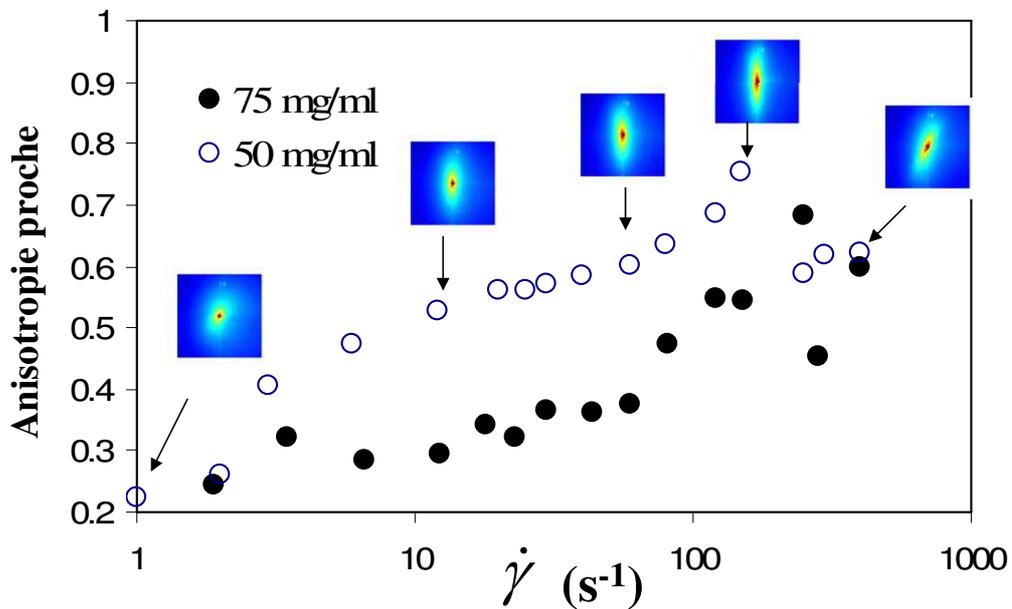


FIGURE 6.14 – Evolution de l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion en fonction du cisaillement pour les deux échantillons à 75 mg/ml et à 50 mg/ml

Sur la figure 6.14, on a représenté la variation de l'anisotropie proche qui correspond à la valeur de l'anisotropie radiale en ρ/l_{TR} en fonction du cisaillement. Lorsque le cisaillement augmente, l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion augmente car les particules s'orientent de plus en plus sous l'effet du cisaillement. A partir d'un gradient de vitesse de 150 s⁻¹, l'anisotropie proche décroît, ceci est dû à un effet de rotation de l'image de rétrodiffusion que l'on peut observer sur la figure 6.14.

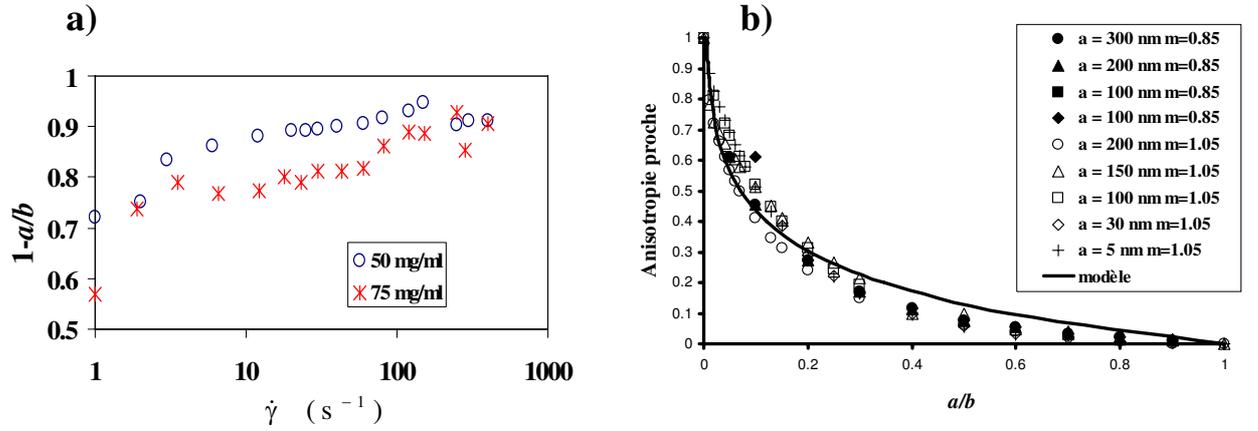


FIGURE 6.15 – Evolution de l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement en fonction du cisaillement

A partir de l’anisotropie proche, nous décidons de déterminer l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement du vecteur orientation des particules. Pour ce faire, on se sert de la relation (6.6) qui relie l’anisotropie proche de l’image de rétrodiffusion à l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement :

$$a/b = -\frac{1}{5.4} \text{Ln}(A^{\text{proche}}) \quad (6.6)$$

Sur la figure 6.15, on a représenté l’évolution de l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement du vecteur orientation en fonction du gradient de vitesse. Nous observons que l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement est plus élevée pour l’échantillon à 50 mg/ml que l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement de l’échantillon à 75 mg/ml . La dissipation visqueuse étant plus élevée dans le cas de l’échantillon à 75 mg/ml qu’à 50 mg/ml , les particules s’orientent moins facilement pour une concentration à 75 mg/ml que pour la concentration à 50 mg/ml .

Dans la suite, nous allons valider notre technique en comparant nos résultats avec ceux obtenus avec la technique de diffusion des rayons-X aux petits angles. Pour ce faire, nous allons déterminer l’anisotropie de l’ellipsoïde de confinement en fonction du gradient de vitesse grâce à la diffusion des rayons-X aux petits angles et les comparer avec ceux obtenus par diffusion de lumière.

6.3 Orientation sous cisaillement par diffusion des rayons-X aux petits angles

6.3.1 Bibliographie sur la caractérisation de l'orientation d'objets anisotropes par diffusion des rayons-X

La diffusion des rayons-X aux petits angles apporte également des informations sur l'orientation de particules anisotropes. Castelletto *et al.* [18] observent ainsi l'orientation de micelles sous cisaillement. Le faisceau de rayons traverse une cellule d'écoulement capillaire. Le pattern de diffusion est anisotrope dans la direction de l'écoulement. Pople *et al.* [71, 70] en étudiant l'effet du cisaillement sur une suspension concentrée de particules anisotropes dans une cellule de Couette observent également une image de diffusion anisotrope perpendiculaire à la direction de l'écoulement lorsque le faisceau de rayons-X est radial à la cellule de Couette.

Deutsch [20] caractérise l'anisotropie de l'image de diffusion à l'aide du paramètre d'ordre P_2 défini par la relation (6.7) :

$$P_2 = 1 - \frac{1}{\int_0^{\pi/2} I(\phi) d\phi} \frac{3}{2} \int_0^{\pi/2} I(\phi) \left[\sin^2(\phi) + (\sin(\phi)\cos^2(\phi)) \ln\left(\frac{1 + \sin(\phi)}{\sin(\phi)}\right) \right] d\phi \quad (6.7)$$

Où $I(\phi)$ est l'intensité de dispersion dans la direction azimutal ϕ . Ce paramètre varie entre 0 (orientation aléatoire, pattern isotrope) et 1 (orientation des particules anisotropes, pattern anisotrope dans l'axe $\phi = 0$) ou -0.5 (orientation des particules anisotropes, image de diffusion anisotrope dans l'axe $\phi = \pi/2$). Lemaire *et al.* [48] caractérisent l'orientation d'une suspension de fibres d'argiles à l'aide de la fonction de distribution de Maier-Saupe [48].

$$f(\theta) = \frac{1}{Z} e^{m \cos(\theta)^2} \quad (6.8)$$

Où m est la paramètre de la fonction de distribution de Maier-Saupe et Z est la constante de normalisation.

Grâce à cette fonction de distribution, Lemaire *et al.* [48] montrent qu'il est possible de modéliser l'image de rétrodiffusion obtenue par diffusion de rayons-X aux petits angles sur une suspension de fibres d'argiles

6.3.2 Description du dispositif de Rheo-SAXS de la ligne ID02

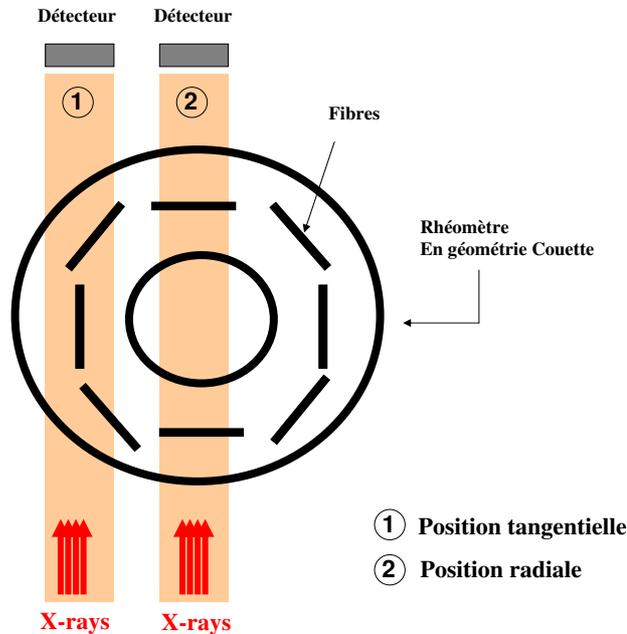


FIGURE 6.16 – Dispositif Rheo-SAXS de l'ESRF

Les expériences de SAXS ont été réalisées à l'European Synchrotron Radiation Facility (Grenoble) sur le montage Rheo-SAXS de la ligne ID02. La cellule de Couette transparente en polycarbonate possède un diamètre intérieur de 20 mm , un diamètre extérieur de 22 mm et une hauteur de 40 mm . Le dispositif est également muni d'un plan peltier permettant de contrôler la température de la cellule de Couette. La température peut varier entre 5°C et 80°C . On observe l'orientation des particules suivant deux plans : un plan parallèle à la direction du cisaillement (position radiale) et un plan perpendiculaire à la direction du cisaillement (position tangentielle). Le rhéomètre utilisé est un rhéomètre Haake RS300 à contrainte imposée. Le détecteur est positionné à une distance $D = 1\text{ m}$ et la longueur d'onde $\lambda = 0.0995\text{ nm}$.

Deux séries d'expériences sont réalisées : la première série d'expériences consiste à cisailer les échantillons entre 1 s^{-1} et 1000 s^{-1} à une température de 25°C et la seconde série d'expériences consiste à cisailer les échantillons à un gradient de vitesse constant de 100 s^{-1} et à faire varier la température entre 20°C et 80°C .

6.3.3 Images de diffusion aux rayons-X

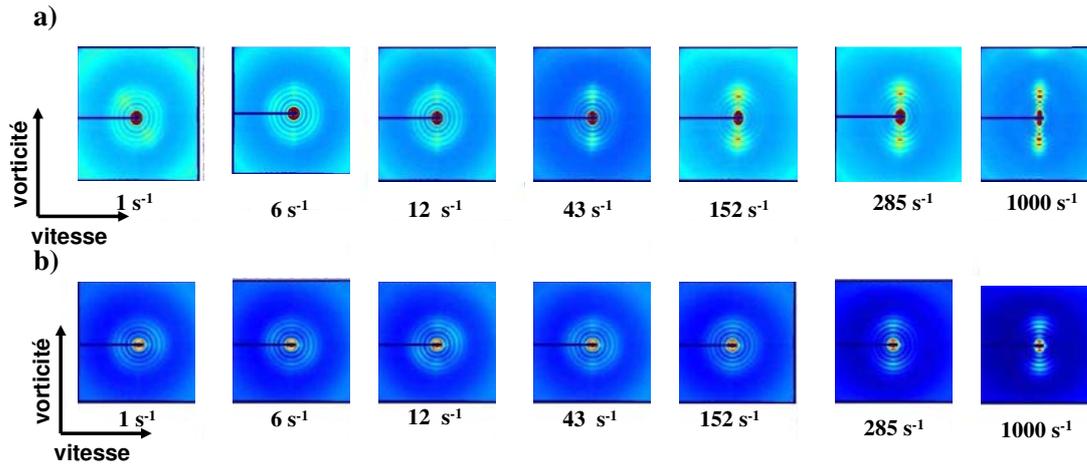


FIGURE 6.17 – a) Images de dispersion de SAXS en position radiale pour l'échantillon à 75 mg/ml b) Images de dispersion de SAXS en position tangentielle pour l'échantillon à 75 mg/ml

Lorsqu'une suspension est constituée de particules anisotropes, l'image de SAXS devient anisotrope lorsque les particules s'orientent. Une fois que l'échantillon est inséré dans la cellule de Couette, il est cisailé entre 1 s^{-1} et 1000 s^{-1} . La figure 6.17a) représente les images de dispersion en position radiale et en position tangentielle pour différents cisaillements pour l'échantillon à 75 mg/ml. On observe sur ces figures de dispersion une anisotropie verticale de l'image de dispersion en position radiale. Cette anisotropie provient de l'alignement horizontal des microtubes de lipides dans le plan de cisaillement. En position tangentielle, l'image demeure circulaire excepté pour des gradients de vitesse élevés comme on peut le voir sur la figure 6.17b). On observe une augmentation de l'anisotropie de l'image de dispersion lorsque le cisaillement augmente. Cela signifie que les microtubes s'alignent de plus en plus le long de l'axe des vitesses.

6.3.4 Influence du cisaillement sur la dispersion aux rayons-X

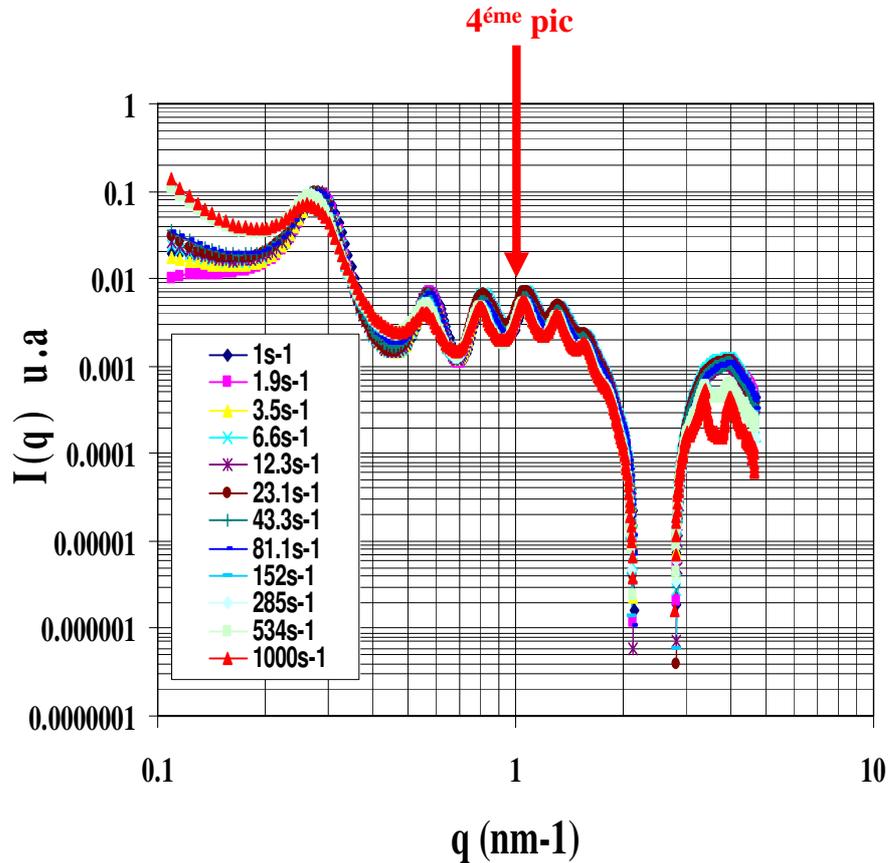


FIGURE 6.18 – Variations radiales d'intensité $I(q)$ à différents cisaillements et à température constante $T=25^{\circ}\text{C}$ pour l'échantillon à 75 mg/ml

Sur la figure 6.18, nous avons représenté la décroissance radiale d'intensité $I(q)$ en position radiale pour l'échantillon à 75 mg/ml à différents cisaillements et à température constante $T=25^{\circ}\text{C}$. Nous n'observons pas de modification de l'intensité radiale $I(q)$ en fonction du cisaillement. Les positions des pics restent inchangés par conséquent les distances interparticulaires également et ainsi le facteur de structure du matériau également. Les microtubes de lipides ne sont pas modifiés par le cisaillement par conséquent l'anisotropie de l'image de diffusion provient effectivement d'une l'orientation des particules sous écoulement.

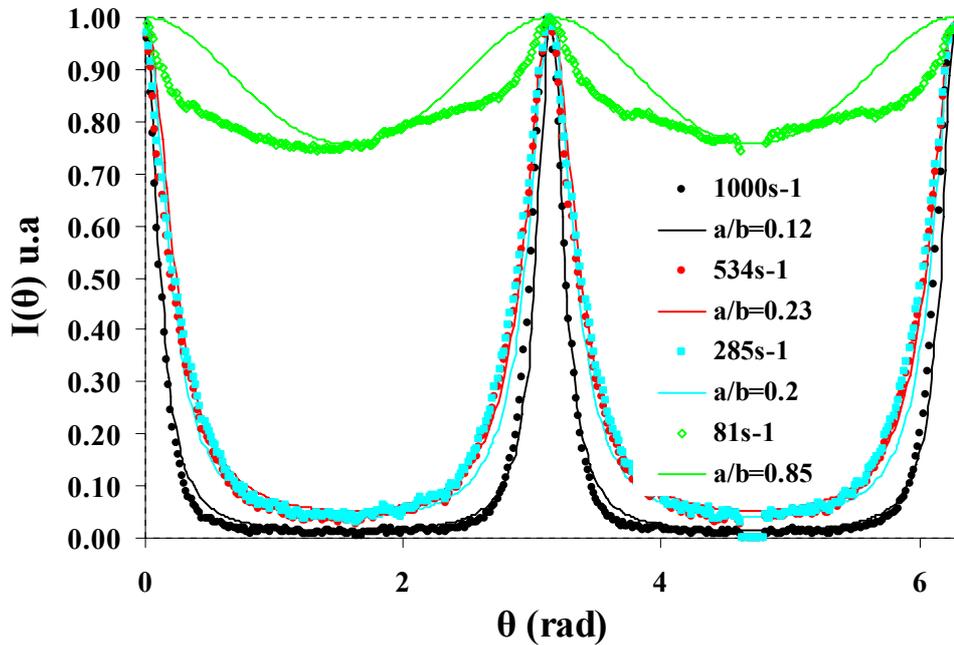


FIGURE 6.19 – a) variations radiales d'intensité $I(q)$ pour différents cisaillements b) comparaison entre la variation angulaire d'intensité et la fonction de distribution $\text{PDF}(\theta)^{\text{ellipse}}$

6.3.5 Comparaison entre diffusion aux rayons-X et diffusion de lumière

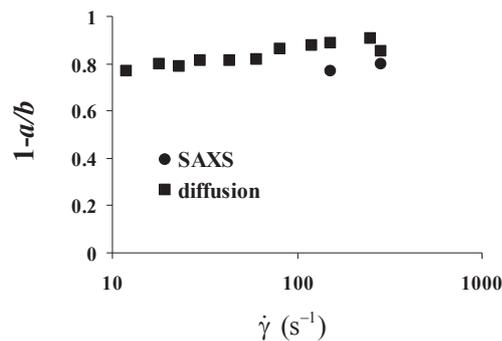


FIGURE 6.20 – Comparaison entre les mesures de diffusion et celles de SAXS

Afin de comparer les résultats obtenus en diffusion de lumière avec les résultats obtenus en diffusion aux rayons-X, il est nécessaire de déterminer l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement en SAXS. La relation 6.9 donne l'expression de l'intensité angulaire $I(q, \phi)$ en fonction de la fonction de distribution.

$$I(q, \phi) = P(q)S(q)\text{PDF}(\phi) \quad (6.9)$$

En se plaçant sur un pic q_i , on s'abstient de l'influence du facteur de structure et du facteur de forme et ainsi nous avons $I(q_i, \phi) \approx \text{PDF}(\phi)$. La position du pic est donc essentielle.

Nous nous plaçons donc sur le quatrième pic de la variation radiale d'intensité $I(q)$. On mesure sur ce pic la variation angulaire d'intensité et on interpole cette variation angulaire avec la fonction de distribution de l'ellipse. On choisit l'ellipse à l'ellipsoïde de confinement car en SAXS la dispersion se fait suivant un plan de dispersion, or la projection de l'ellipsoïde de confinement dans un plan parallèle est une ellipse de même rapport d'aspect. La relation (6.11) donne l'expression de la fonction de distribution de l'ellipse de confinement.

$$\text{PDF}(\theta)^{\text{ellipse}} = \frac{(a/b)^2}{((a/b)^2 \sin(\theta)^2 + \cos(\theta)^2)^{1/2}} \quad (6.10)$$

Sur la figure 6.19b), on a représenté les variations angulaires $I(\theta)$ sur le 4ème pic pour différents cisaillements. Nous avons également superposé la fonction de distribution de l'ellipse de confinement (relation (6.11)). Nous observons dans les deux cas, une bonne correspondance entre les variations angulaires et la fonction de distribution. Nous décidons alors de comparer la variation de l'anisotropie de l'ellipse de confinement en fonction de la température obtenue à l'aide des expériences de SAXS avec la variation de l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement en fonction de la température obtenue à l'aide de la diffusion.

Sur la figure 6.20, nous avons donc comparé les résultats obtenus avec les deux techniques lorsqu'on modifie le cisaillement à température ambiante constante. On observe dans les deux cas que l'anisotropie de l'ellipse de confinement obtenue à l'aide du SAXS est identique à l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement obtenue à l'aide de la diffusion de lumière. La technique basée sur la diffusion de lumière dans un milieu anistrophe permet donc de caractériser l'orientation des particules d'une suspension de particules anisotropes.

6.4 Influence de la température sur le cisaillement

6.4.1 Influence de la température sur la dispersion aux rayons-X

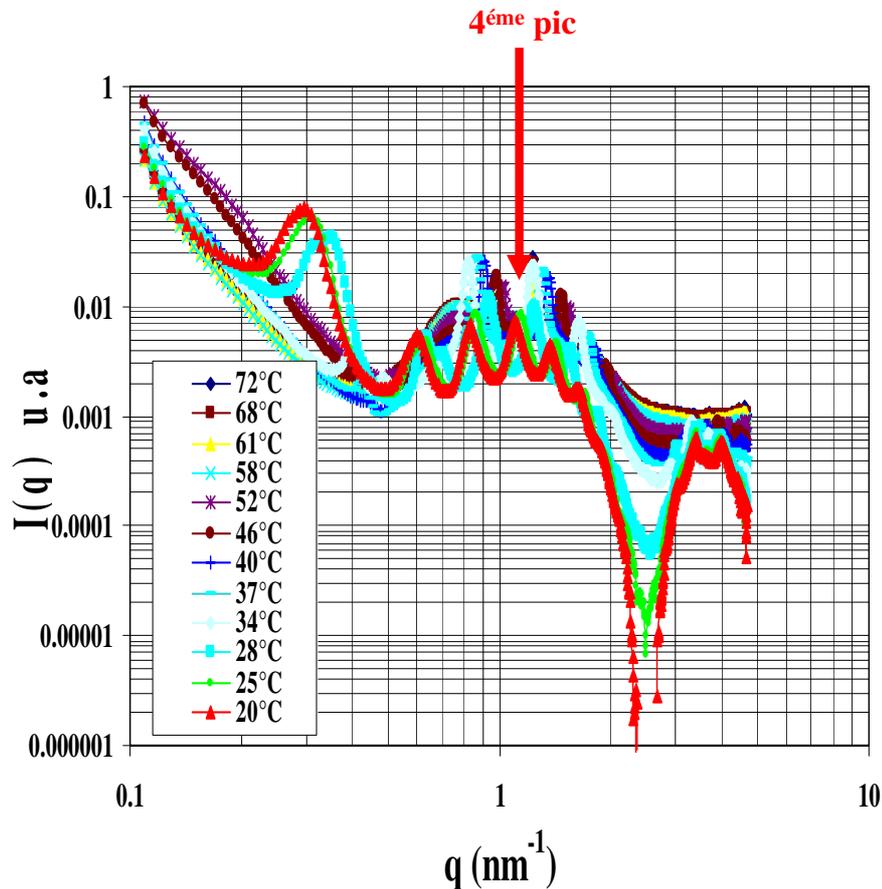


FIGURE 6.21 – Variations radiales d'intensité $I(q)$ à différentes températures et à cisaillement constant pour l'échantillon à 75 mg/ml

Sur la figure 6.21, nous avons représenté la décroissance radiale d'intensité $I(q)$ en position radiale pour l'échantillon à 75 mg/ml à différentes températures et à un gradient de vitesse constant ($\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$).

On observe une légère modification de l'intensité radiale $I(q)$ en fonction de la température. Les positions des pics changent quelque peu avec la température. Cependant, la forme de la courbe de l'intensité $I(q)$ ne semble pas changer avec la température, le facteur de forme ainsi que le facteur de structure ne sont pas modifiés par la température. On en conclut donc que l'anisotropie de l'image de diffusion observée provient uniquement de

l'orientation des particules sous cisaillement.

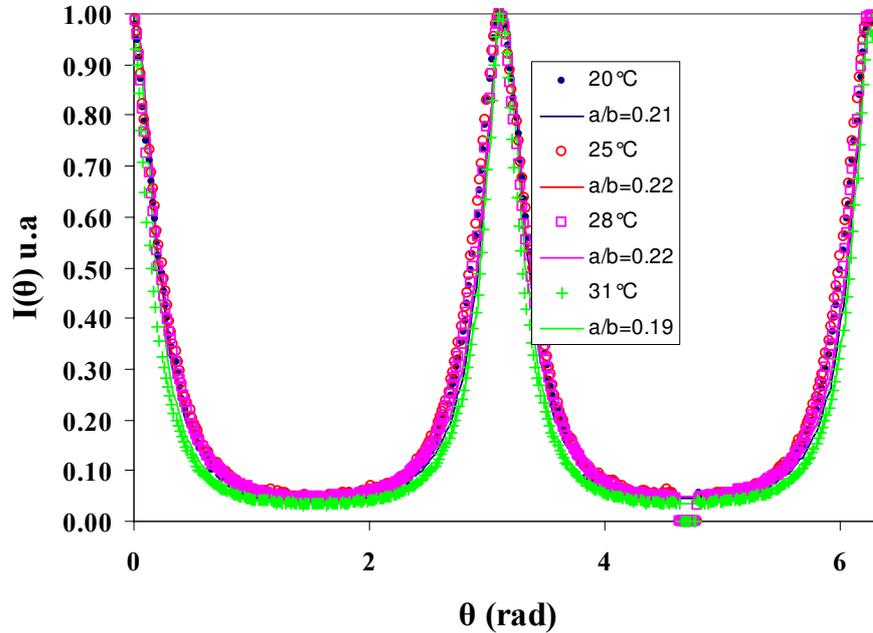


FIGURE 6.22 – a) variations radiales d'intensité $I(q)$ pour différentes températures b) comparaison entre la variation angulaire d'intensité et la fonction de distribution $\text{PDF}(\theta)^{\text{ellipse}}$

6.4.2 Comparaison entre diffusion aux rayon-X et diffusion de lumière

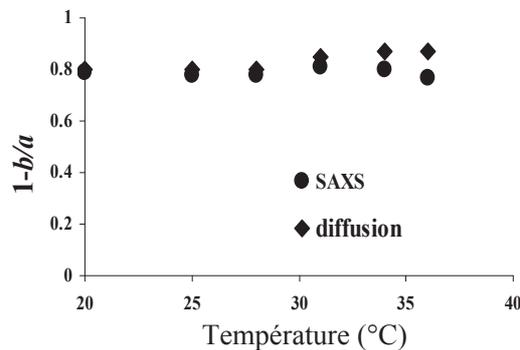


FIGURE 6.23 – comparaison entre les mesures de diffusion et celles de SAXS

Comme précédemment, en se plaçant sur un pic q_i , on s'abstient de l'influence du facteur de structure et du facteur de forme et ainsi nous avons $I(q_i, \phi) \approx \text{PDF}(\phi)$. Nous

nous plaçons donc sur le quatrième pic de la variation radiale d'intensité $I(q)$. On mesure sur ce pic la variation angulaire d'intensité et on interpole cette variation angulaire avec la fonction de distribution de l'ellipse. On choisit l'ellipse à l'ellipsoïde de confinement car en SAXS la dispersion se fait suivant un plan de dispersion, or la projection de l'ellipsoïde de confinement dans un plan parallèle est une ellipse de même rapport d'aspect.

$$\text{PDF}(\theta)^{\text{ellipse}} = \frac{(a/b)^2}{((a/b)^2 \sin(\theta)^2 + \cos(\theta)^2)^{1/2}} \quad (6.11)$$

Sur la figure 6.22b), nous avons également représenté les variations angulaires $I(\theta)$ sur le quatrième pic pour différentes températures à un cisaillement constant. Nous avons également superposé la fonction de distribution de l'ellipse de confinement (relation (6.11)). Nous observons dans les deux cas, une bonne correspondance entre les variations angulaires et la fonction de distribution. Nous décidons alors de comparer la variation de l'anisotropie de l'ellipse de confinement en fonction du température obtenue à l'aide des expériences de SAXS avec la variation de l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement en fonction de la température obtenue à l'aide de la diffusion.

Sur la figure 6.23, nous avons donc comparé les résultats obtenus avec les deux techniques lorsqu'on modifie la température à cisaillement constant. On observe dans les deux cas que l'anisotropie de l'ellipse de confinement obtenue à l'aide du SAXS est identique à l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement obtenue à l'aide de la diffusion de lumière. La technique basée sur la diffusion de lumière dans un milieu anistrophe permet donc de caractériser l'orientation des particules d'une suspension de particules anisotropes.

6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'orientation d'une suspension des microtubes de lipides sous cisaillement. Dans un premier temps, nous avons étudié l'évolution de l'orientation ds microtubes à l'aide de la diffusion de la lumière. Grâce aux images de rétrodiffusion, nous avons mesuré l'anisotropie proche de cette image et déterminé l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement correspondant. Dans un deuxième temps, nous avons étudié l'orientation des particules de la suspension de microtubes de lipides à l'aide de la diffusion aux rayons-X. Grâce aux images de diffusion, nous avons déterminé l'anisotropie de l'ellipse de confinement. Et enfin, en comparant les résultats des deux expériences, nous avons observé des résultats identiques. Nous avons, par conséquent, validé notre technique

et montrer qu'il est possible de caractériser l'orientation des particules d'une suspension de particules anisotropes.

Conclusions et perspectives

Nous concluons ce mémoire en rappelant que la technique de diffusion est une technique qui jusqu'à présent permettait de déterminer la taille et la concentration en particule des suspensions concentrées en particules connaissant l'indice de réfraction relatif de la suspension.

Nous avons cherché ici à étendre cette technique à la détermination de la déformabilité des particules et l'orientation de particules anisotropes assimilables à des cylindres infinis par transport incohérent de lumière. Jusqu'à présent, seules les technologies basées sur la diffusion de rayonnement aux petits angles permettaient d'y parvenir. Cependant, ces techniques ne permettent pas de caractériser des milieux dispersif dont les tailles de particules sont supérieures à 100 *nm*. L'alternative que nous proposons est d'utiliser la technique basée sur la diffusion de lumière pour caractériser l'anisotropie des suspensions de particules. Nous avons en effet observé une anisotropie du transport de lumière lorsque les particules s'orientent dans la même direction et se déforment ou lorsque les particules s'orientent partiellement sous cisaillement. Nous nous sommes donc servis de cette propriété diffusives que possèdent les milieux turbides pour caractériser leur anisotropie.

Ainsi, à partir de l'image de rétrodiffusion anisotrope, nous avons pu déceler deux informations essentielles : la présence d'une anisotropie proche au centre de l'image de rétrodiffusion parallèle perpendiculaire à l'axe d'orientation des particules et une anisotropie lointaine loin du centre de l'image de rétrodiffusion et parallèle à l'axe d'orientation des particules.

Grâce aux simulations de Monte Carlo, nous avons pu modéliser le transport incohérent de lumière dans un milieu anisotrope. Dans un premier temps, nous avons considéré un milieu constitué de particules de forme sphéroïdale de facteur de forme a/b (où a est le demi-petit axe et b est le demi-grand axe). Ces particules sont toutes orientées suivant l'axe OX du plan de rétrodiffusion. Nous avons montré qu'il existait une relation entre l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion et le facteur de forme a/b pour des particules

déformées. Dans un deuxième temps, nous avons considéré des particules anisotropes de forme cylindrique ayant une orientation moyenne. Nous avons montré qu'il existait une relation entre l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion et l'orientation moyenne lorsqu'il s'agit de particules anisotropes ayant une orientation partielle. Nous avons par ailleurs pu expliquer les phénomènes physiques à l'origine de la double anisotropie observée. L'anisotropie proche a pu être directement reliée à l'anisotropie de l'évènement local d'interaction entre une particule isolée et le rayonnement incident, dont l'intensité est dispersée de façon privilégiée perpendiculairement à l'axe principal d'anisotropie de la particule. L'anisotropie lointaine a été reliée aux propriétés radiative du milieu, dont l'anisotropie principale suit l'orientation ou l'anisotropie des particules.

Ainsi, la technique basée sur le transport incohérent de lumière non-polarisée permet de faire le lien entre l'anisotropie d'une suspension de particules (déformation ou orientation des particules) et le comportement macroscopique de la suspension en écoulement. Notre technique s'applique in-situ, de façon non-intrusive et nécessite un investissement peu conséquent du point vue expérimental. Par ailleurs, elle peut être considérée comme complémentaire aux techniques de caractérisation basées sur la diffusion des rayons-X ou des Neutrons aux petits angles qui ne permettent pas de caractériser les suspensions de particules dont la taille est supérieure à 100 *nm*.

Cependant, dans cette étude, nous nous sommes uniquement intéressé à un seul élément de la matrice de Mueller caractérisant l'intensité et nous ne sommes a priori pas en mesure de distinguer une anisotropie du transport de lumière provoquée par une orientation de particules anisotropes ou par une déformation des particules ou provoquée par les deux phénomènes en même temps. Par conséquent, la perspective serait de réaliser des simulations de Monte Carlo du transport incohérent de lumière polarisée dans un milieu constitué de particules non sphériques. L'étude des simulations devrait permettre de fournir des informations permettant de distinguer la morphologie des particules de leur champ orientationnel.

Table des figures

1.1	Onde électromagnétique avec une polarisation linéaire rectiligne	10
1.2	Etat de polarisation d'une onde électromagnétique plane dans le formalisme de Jones	11
1.3	Les états de polarisation usuels de la lumière	12
1.4	Dispersion d'une onde électromagnétique plane (OEM) par une sphère . . .	13
1.5	Représentation de l'équation du transfert radiatif; Rouge : Le flux perdu dans la direction \vec{s} par dispersion et absorption, Bleu : Le flux reçu dans la direction \vec{s} par dispersion depuis la direction \vec{s}'	16
1.6	Positionnement d'un point M dans l'espace ρ, θ, z et de la source de photons diffusives en $(\rho = 0, z = l_{TR})$	18
1.7	Condition à l'interface entre deux milieux d'indices de réfraction différents	19
1.8	Positionnement des sources de photons diffusives en $(\rho = 0, z = l_{TR})$ et $(\rho = 0, z = 0)$	21
1.9	Variation de α avec $p(\pi)$ pour différents m et différents x pour des suspensions monodisperses.	22
1.10	Dispositif d'acquisition du transport incohérent de lumière polarisée	22
1.11	a) Matrice intensité expérimentale d'une émulsion huile/eau de rayon moyen 222 nm , $l_{TR} = 0.668$ b) Matrice de Mueller expérimentale d'une émulsion huile/eau de rayon moyen 222 nm , $l_{TR} = 0.908 \text{ mm}$	24
1.12	Discrétisation d'une image de rétrodiffusion en coordonnées polaires (représentation en fausses couleurs)	24
1.13	Modélisation de la variation radiale d'intensité d'une émulsion huile/eau. o : Données Expérimentales. Rouge : Modèle de Haskell avec $l_{TR} = 0.668$ mm. Bleu : Modèle double source avec $l_{TR} = 0.668$ mm et $\alpha = 0.1449$. . .	27
1.14	Variations angulaires d'intensité des éléments M_{ij} de la matrice de Mueller en l_{TR} pour l'émulsion huile/eau (concentration 2 %, rayon moyen 220 nm)	29

1.15	Mesure de la taille par analyse des effets de polarisation pour l'émulsion huile/eau a) Amplitude de polarisation b) Moyenne de polarisation (● Simulation de Monte Carlo; □ Émulsion huile/eau)	30
1.16	Images de rétrodiffusion anisotrope d'un échantillon de microtubes de lipides à 50 mg/ml pour différents cisaillements	32
2.1	Événement de dispersion : interaction entre une onde électromagnétique plane et une particule de forme sphéroïdale	38
2.2	Repère global du laboratoire	43
2.3	Influence du facteur de forme sur la fonction de phase d'une particule de forme sphéroïdale (prolate) d'indice de réfraction $m = 0.66$, de paramètre de taille $x = 1$ (gauche) et $x = 5$ (droite) à incidence parallèle.	52
2.4	Influence du facteur de forme sur la fonction de phase d'une particule de forme sphéroïdale (prolate) d'indice de réfraction $m = 0.66$, de paramètre de taille $x = 1$ (gauche) et $x = 5$ (droite) à incidence normale.	53
2.5	Fonctions de phase de la figure 2.4 dans le plan Oxy pour différents paramètres de taille	54
2.6	Evolution de la section efficace de dispersion $C_{scat}^{x,m,\varepsilon}(\xi)$ en fonction de l'orientation ξ de la particule pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$ et un paramètre de $x = 1$ a) et $x = 5$ b).	55
2.7	a)Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du paramètre de taille x à incidence normale $\xi = 90^\circ$, b)Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du paramètre de taille x à incidence oblique $\xi = 0^\circ$, c)Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du facteur de forme ε à incidence normale $\xi = 90^\circ$, d)Evolution de la section efficace de dispersion adimensionnée en fonction du facteur de forme. ε à incidence oblique	56
2.8	a)Evolution de la section efficace de dispersion moyenne adimensionnée en fonction du paramètre de taille x pour une particule d'indice de réfraction $m = 0.66$, b)Evolution de la section efficace de dispersion moyenne adimensionnée en fonction du paramètre de taille x pour une particule d'indice de réfraction $m = 1.1$	57
3.1	Milieu constitué de particules sphéroïdales orientées suivant la même direction Berdnik <i>et al.</i> [11]	64
3.2	Transformation du repère global du laboratoire L {X, Y, Z} au repère local de la particule P {x, y, z}	66
3.3	Propagation d'un photon dans un milieu anisotrope	69

3.4	Conventions de repères pour les axes et les angles	70
3.5	Image de rétrodiffusion obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 0.66$, $x = 5$ et $\varepsilon = 0.2$	74
3.6	Images de rétrodiffusion obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 0.66$ a) $x = 5$ b) $x = 1$	76
3.7	Images de rétrodiffusion obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $\varepsilon = 0.2$ pour différents paramètres de taille x et différents indices de réfraction	77
3.8	Variation radiale d'intensité pour $m = 0.66$ a) pour des particules sphériques de différents paramètres de taille b) pour une particule de paramètre de taille $x = 5$ différents facteurs de forme	78
3.9	Exemples d'ajustements du modèle à double source	79
3.10	a)Variation de α (déterminé par ajustement sur des simulations de Monte Carlo) avec $p(\pi)$ (calculé par la théorie de Mie) pour différents m et différents x b)Variation de α (déterminé par ajustement sur des simulations de Monte Carlo) avec $p(\pi)$ (calculé à l'aide du code T-matrix) pour différents m , différents x et différents ε	80
3.11	Variations angulaires d'intensité pour différents facteurs de forme pour $m = 0.9$ et $x = 5$ à différents positions radiales a) $\rho / < l_{TR} > = 0.5$ b) $\rho / < l_{TR} > = 8$	83
3.12	Variations angulaires d'intensité pour différents paramètres de taille pour $m = 0.66$ et $\varepsilon = 0.4$ à différents positions radiales a) $\rho / < l_{TR} > = 0.5$ b) $\rho / < l_{TR} > = 8$	84
3.13	Variation radiale d'anisotropie pour différents facteurs de forme pour $m = 0.9$ et $x = 5$	85
3.14	b)Variation radiale d'anisotropie pour différents indices de réfraction relative pour $\varepsilon = 0.1$ et $x = 1$	86
3.15	Variation radiale d'anisotropie pour différents paramètres de taille $m = 1.1$ et $\varepsilon = 0.4$	87
3.16	Variation radiale d'anisotropie et ajustements exponentiels pour $m = 1.1$ et $x = 2$	88
3.17	Evolution de l'anisotropie de l'image de rétrodiffusion en fonction du facteur de forme pour différents paramètres de taille et différents indices de réfraction relatif a) Anisotropie proche. b) Anisotropie lointaine	89
3.18	Anisotropie lointaine en fonction de l'anisotropie proche pour différents paramètres de taille x et différents indices de réfraction relatifs m et différents facteurs de forme ε	90

3.19	Premier événement de dispersion à incidence normale	92
3.20	Correlation entre l'anisotropie proche et l'anisotropie de la fonction de phase. courbe en trait plein : modèle en loi de puissance de la relation 3.27	93
3.21	Variation de l'anisotropie proche en fonction du facteur de forme ϵ . Courbe en trait plein : modèle correspondant à la relation (3.35)	94
3.22	Interaction entre obstacle rectangulaire opaque et une onde électromagnétique plane dans en diffraction	95
3.23	Gauche : longueur de transport moyenne dans le cas où la particule est orientée suivant l'axe OX, Droite : longueur de transport moyenne dans le cas où la particule est orientée suivant l'axe OZ	97
3.24	Anisotropie lointaine en fonction de l'anisotropie de la longueur de transport $\langle l_{TR} \rangle$	98
3.25	Variation de l'anisotropie lointain en fonction du facteur de forme ϵ . Courbe en trait plein : modèle correspondant à la relation (3.41)	99
4.1	Gouttelette soumise à un écoulement de cisaillement simple	104
4.2	Structure moléculaire de la galactomannane \mathbf{n} = Degrée de polymérisation, \mathbf{X} = Degrée de substitution de galactose	108
4.3	a)Viscosités des différentes émulsions AK500 N°7, AK500 N°4 et AK500 N°9 en fonction de la contrainte b)Viscosité pour différents pourcentages massiques en guar en fonction de la contrainte	109
4.4	Images de rétrodiffusion expérimentales à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°7, b) pour l'émulsion AK500 N°4 c) pour l'émulsion AK500 N°9	111
4.5	Différences d'images de rétrodiffusion expérimentales à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°7, b) pour l'émulsion AK500 N°4 c) pour l'émulsion AK500 N°9 d)Différences d'images de rétrodiffusion pour différents facteurs de forme obtenus à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.1$, $x = 10$	111
4.6	Variations radiales d'intensité normalisées en milieu épais des différents échantillons	112
4.7	Matrices de Mueller expérimentales à différents cisaillements pour l'émulsion AK500 N°9	114
4.8	variations angulaires d'intensité à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°4 b) pour l'émulsion AK500 N°7 c) pour l'émulsion AK500 N°9 d) Exemples d'images de rétrodiffusion expérimentales	115

4.9	variations radiales d'anisotropie à différents cisaillements a) pour l'émulsion AK500 N°4 b) pour l'émulsion AK500 N°7 c) pour l'émulsion AK500 N°9 d) Exemples d'images de rétrodiffusion expérimentales	116
4.10	a) Comparaison des variations angulaires d'intensité obtenue par simulation ($m=1.1, x=10, \varepsilon=0.8$) et obtenues expérimentalement b) Comparaison des variations radiales d'intensité obtenue par simulation ($m=1.1, x=10, \varepsilon=0.8$) et obtenues expérimentalement	117
4.11	a) Anisotropie proche en fonction de la contrainte.Rayon b) Déformabilité proche en fonction de la contrainte.Rayon	118
4.12	a) Schéma de fonctionnement du dispositif de bandes parallèles (M) : Moteurs (P) Poulie de déflexion (S) Ressorts (B) Bande (D) Gouttelette	120
4.13	Comparaison entre la déformabilité obtenue à l'aide de la diffusion avec la déformabilité obtenue avec le dispositif de bandes parallèles	121
4.14	Photographie de globules rouges par microscopie électronique à balayage	123
4.15	Dispositif de mesure de la déformabilité des globules rouges : Rhéoscope développé par Dobbe <i>et al.</i> [25]	124
4.16	Dispositif de mesure de la déformabilité des globules rouges : ectacymètre développé par Groner <i>et al.</i> [31]	125
4.17	Images de diffraction obtenues à l'aide de l'ectacytomètre de Groner <i>et al.</i> [31] a) vitesse de cisaillement $< 50 \text{ s}^{-1}$ b) vitesse de cisaillement $= 50 \text{ s}^{-1}$ c) vitesse de cisaillement $> 100 \text{ s}^{-1}$	125
4.18	Dispositif de mesure de la déformabilité des globules rouges : ectacymètre développé par Shin et al. [79]	127
4.19	Principe de mesure du module de cisaillement d'un globule rouge par Evans <i>et al.</i> [29]	128
4.20	Schéma de principe du dispositif de mesure de la déformabilité de Thom <i>et al.</i> [85]. \mathbf{E}_x correspond au champ électrique et \mathbf{F}_x à la force d'interaction.	129
4.21	Images de rétrodiffusion (haut) et différences d'images (bas) de l'échantillon N°7 composé de discoïdes non-durcis à différents cisaillements	131
4.22	Différences d'images de rétrodiffusion pour différents facteurs de forme obtenus à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.1, x = 10$	131
4.23	Images de rétrodiffusion de l'échantillon N°7 composé de discoïdes non-durcis à différents cisaillements	132
4.24	Variations radiales d'intensité à 1000 s^{-1} pour l'échantillon N°1 (sphéroïdes non-durcis) et pour l'échantillon N°7(discoïdes non-durcis)	133

4.25	Variations angulaires d'intensité à différents cisaillements a) pour l'échantillon N°1 (sphéroïdes non-durcis) b) pour l'échantillon N°7(discoïdes non-durcis)	134
4.26	a) Variations radiale d'anisotropie à différents cisaillements pour l'échantillon N°1 (sphéroïdes non-durcis)	135
4.27	a)Anisotropie proche en fonction du cisaillement b) Déformation en fonction du cisaillement	136
5.1	cylindre infini dans un repère fixe	140
5.2	fonctions de phase d'un cylindre infini en échelle logarithmique pour différents paramètres de taille	142
5.3	Propagation d'un photon dans une collection de particules cylindriques orientées aléatoirement et orientées suivant Ox	144
5.4	cylindre infini dans le repère globale du laboratoire	145
5.5	distribution statistique du vecteur directeur a) distribution isotrope b)distribution anisotrope	145
5.6	Image de rétrodiffusion 2D obtenue à l'aide des simulations de Monte Carlo pour un cylindre d'indice de réfraction $m = 1.05$, $x = 2.63$ et l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement $a/b = 0.2$	150
5.7	Image de rétrodiffusion 2D obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$, $x = 2.63$ pour différents anisotropies de l'ellipsoïde de confinement a/b	151
5.8	Variation radiale d'intensité normalisées pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement ($m = 1.05$, $x = 2.63$)	152
5.9	a)Variations angulaires d'intensité pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement $m = 1.05$, $x = 2.63$ a)en $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 0.5$ b) $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 8153$	
5.10	variation radiale d'anisotropie pour différentes anisotropies de l'ellipsoïde de confinement ($m = 1.05$; $x = 2.68$)	155
5.11	Anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion en fonction de la fraction d'objets orientés ($m = 1.05$)	157
5.12	Anisotropie lointain de l'image de rétrodiffusion en fonction de la fraction d'objets orientés ($m = 1.05$)	157
6.1	Images de tubes lipidiques (dispersion aqueuse à 1% du sel d'éthanolamine de l'acide 12-hydrostéarique) observées à température ambiante a)par microscopie optique en contraste de phase (barre d'échelle : $10\mu m$) b)par microscopie électronique à transmission [26]	162
6.2	Schéma de principe de la diffusion des rayons-X	163

6.3	Variations radiales d'intensité $I(q)$ à $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$ et à une température de 31 °C pour l'échantillon à 28 <i>mg/ml</i>	166
6.4	Variations radiales d'intensité $I(q)$ à $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$ et à une température de 53 °C pour l'échantillon à 28 <i>mg/ml</i>	166
6.5	structure d'un microtubule de lipides	167
6.6	longueur de transport en fonction de la concentration	168
6.7	Matrice de Mueller d'une suspension de microtubes de lipides	169
6.8	Viscosité en fonction du cisaillement pour les deux échantillons	170
6.9	a) Evolution de l'image de rétrodiffusion en fonction du cisaillement a) pour l'échantillon à 50 <i>mg/ml</i> b) pour l'échantillon à 75 <i>mg/ml</i>	171
6.10	a)variation radiale d'intensité des deux échantillons à 75 <i>mg/ml</i> et à 50 <i>mg/ml</i> à un cisaillement $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ b)variation radiale d'intensité de l'échantillon à 75 <i>mg/ml</i> à un cisaillement $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$	172
6.11	Comparaison entre des images de rétrodiffusion pour l'échantillon à 28 <i>mg/ml</i>	173
6.12	Comparaison entre les variations angulaires d'intensité expérimentales pour l'échantillon à 85 <i>mg/ml</i> et les variations angulaires d'intensité obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$ en $\rho / \langle l_{TR} \rangle = 0.5$.	174
6.13	Comparaison entre les variations radiales d'anisotropie expérimentales pour l'échantillon à 85 <i>mg/ml</i> et les variations radiales d'anisotropie obtenues à l'aide des simulations de Monte Carlo pour $m = 1.05$	174
6.14	Evolution de l'anisotropie proche de l'image de rétrodiffusion en fonction du cisaillement pour les deux échantillons à 75 <i>mg/ml</i> et à 50 <i>mg/ml</i> . . .	176
6.15	Evolution de l'anisotropie de l'ellipsoïde de confinement en fonction du cisaillement	177
6.16	Dispositif Rheo-SAXS de l'ESRF	179
6.17	a)Images de dispersion de SAXS en position radiale pour l'échantillon à 75 <i>mg/ml</i> b) Images de dispersion de SAXS en position tangentielle pour l'échantillon à 75 <i>mg/ml</i>	180
6.18	Variations radiales d'intensité $I(q)$ à différents cisaillements et à température constante $T=25^{\circ}C$ pour l'échantillon à 75 <i>mg/ml</i>	181
6.19	a)variations radiales d'intensité $I(q)$ pour différents cisaillements b) comparaison entre la variation angulaire d'intensité et la fonction de distribution $PDF(\theta)^{ellipse}$	182
6.20	Comparaison entre les mesures de diffusion et celles de SAXS	182
6.21	Variations radiales d'intensité $I(q)$ à différentes températures et à cisaillement constant pour l'échantillon à 75 <i>mg/ml</i>	184

6.22	a) variations radiales d'intensité $I(q)$ pour différentes températures b) comparaison entre la variation angulaire d'intensité et la fonction de distribution $PDF(\theta)^{ellipse}$	185
6.23	comparaison entre les mesures de diffusion et celles de SAXS	185

Bibliographie

- [1] S. André, C. Baravian, N. Renault, and C. Cunat. In situ mechanical characterization of polymers with the association of three optical techniques. *Applied Physics Letters*, 91(7), 2007.
- [2] S. Asano. Light scattering properties of spheroidal particles. *Appl. Opt.*, 18(5), 1979.
- [3] S. Asano and G. Yamamoto. Light scattering by a spheroidal particle. *Appl. Opt.*, 14(1), 1975.
- [4] C. Baravian, S. André, N. Renault, N. Moumini, and C. Cunat. Optical techniques for in situ dynamical investigation of plastic damage. *Rheologica Acta*, 47(5-6) :555–564, 2008.
- [5] C. Baravian, F. Caton, and J. Dillet. Steady light diffusion application to rheology : a new tool for characterization of concentrated suspensions. *Rheol. Acta*, 43, 2004.
- [6] C. Baravian, F. Caton, J. Dillet, and J. Mougel. Steady light transport under flow : Characterization of evolving dense random media. *Phys. Rev. E*, 71, 2005.
- [7] C. Baravian, F. Caton, J. Dillet, G. Toussaint, and P. Flaud. Incoherent light transport in an anisotropic random medium : A probe of human erythrocyte aggregation and deformation. *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, 76(1), 2007.
- [8] C. Baravian, J. Mougel, and F. Caton. Characterization of dynamical emulsification process in concentrated conditions. *AIChE*, 53, 2007.
- [9] C. Baravian, J. Mougel, F. Caton, and A. Durand. Characterization of dynamical emulsification process in concentrated conditions. *AIChE Journal*, 53(8) :1994–2000, 2007.
- [10] S. Bartel and A. Hielscher. Monte carlo simulations of the diffusive backscattering meuller matrix for highly scattering media. *Appl. Opt.*, 39, 2000.
- [11] V. Berdnik and V. Loiko. Radiative transfer in a layer with oriented spheroidal particles. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 63(2-6) :369–382, 1999.

- [12] M. Bessis, N. Mohandas, and C. Feo. Automated ektacytometry : A new method of measuring red cell deformability and red cell indices. *Blood cells*, 6(3) :315–327, 1980. Cited By (since 1996) : 49.
- [13] T. Binzoni, C. Courvoisier, R. Giust, G. Tribillon, T. Gharbi, J.C. Hebden, T.S. Leung, J. Roux, and D.T. Delpy. Anisotropic photon migration in human skeletal muscle. *Phys. Med. Biol.*, 51, 2006.
- [14] B. H. Birkhofer, J. . Eischen, D. Megias-Alguacil, P. Fischer, and E. J. Windhab. Computer-controlled flow cell for the study of particle and drop dynamics in shear flow fields. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 44(17) :6999–7009, 2005.
- [15] C.F. Bohren and D.R Huffman. *Absorption and Scattering of light by small particles*. Wiley and Sons, New York, 1983.
- [16] A. Bransky, N. Korin, Y. Nemirovski, and U. Dinnar. An automated cell analysis sensing system based on a microfabricated rheoscope for the study of red blood cells physiology. *Biosensors and Bioelectronics*, 22(2) :165–169, 2006.
- [17] A. Braun. *Rheology of Two-phase Bio-polymer System with Droplet Morphology*. PhD thesis, Swiss Federal Institute of Technology (ETH) Zurich, 1988.
- [18] V. Castelletto and I. W. Hamley. Capillary flow behavior of worm-like micelles studied by small-angle x-ray scattering and small angle light scattering. *Polymers for Advanced Technologies*, 17(3) :137–144, 2006.
- [19] F. Caton, C. Baravian, and J. Mougél. The influence of the microscopic characteristics of a random medium on incoherent light transport. *Optics Express*, 15(6) :2847–2872, 2007.
- [20] M. Deutsch. Orientational order determination in liquid crystals by x-ray diffraction. *Physical Review A*, 44(12) :8264–8270, 1991.
- [21] H. DeVoe. Optical properties of molecular aggregates. ii. classical theory of the refraction, absorption, and optical activity of solutions and crystals. *The Journal of chemical physics*, 43(9) :3199–3208, 1965.
- [22] Y. Deyrail, A. Michel, and P. Cassagnau. Morphology in immiscible polymer blends during solidification of an amorphous dispersed phase under shearing. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 80(6) :1017–1027, 2002.
- [23] J. Dillet, C. Baravian, F. Caton, and A. Parker. Size determination by use of two-dimensional mueller matrices backscattered by optically thick random media. *Appl. Opt.*, 45, 2006.
- [24] Jérôme Dillet. *Caractérisation de milieux diffusants en écoulement par transport incohérent de lumière polarisée*. PhD thesis, Université Henri Poincaré, 2007.

-
- [25] J.G.G. Dobbe, M.R. Hardeman, G.J. Streekstra, J. Strackee, C. Ince, and C.A. Grimbergen. Analyzing red blood cell-deformability distributions. *Bloods Cells, Molecules and Diseases*, 28, 2002.
- [26] J. Douliez, C. Gaillard, L. Navailles, and F. Nallet. Novel lipid system forming hollow microtubes at high yields and concentration. *Langmuir*, 22(7) :2942–2945, 2006.
- [27] J. Douliez, B. Pontoire, and C. Gaillard. Lipid tubes with a temperature-tunable diameter. *ChemPhysChem*, 7(10) :2071–2073, 2006.
- [28] Bruce T. Draine and Piotr J. Flatau. Discrete-dipole approximation for scattering calculations. *Journal of the Optical Society of America A : Optics and Image Science, and Vision*, 11(4) :1491–1499, 1994.
- [29] E. A. Evans. New membrane concept applied to the analysis of fluid shear and micropipette deformed red blood cells. *Biophysical journal*, 13(9) :941–954, 1973.
- [30] Harold P. Grace. Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. *Chemical Engineering Communications*, 14(3-6) :225–277, 1982.
- [31] W. Groner, N. Mohandas, and M. Bessis. New optical technique for measuring erythrocyte deformability with the ektacytometer. *Clin. Chem.*, 26, 1980.
- [32] S. Guido and M. Villone. Measurement of interfacial tension by drop retraction analysis. *Journal of colloid and interface science*, 209(1) :247–250, 1999.
- [33] Richard C. Haskell, Lars O. Svaasand, Tsong-Tseh Tsay, Ti-Chen Feng, Matthew S. McAdams, and Bruce J. Tromberg. Boundary conditions for the diffusion equation in radiative transfer. *Journal of the Optical Society of America A : Optics and Image Science, and Vision*, 11(10) :2727–2741, 1994.
- [34] J. Heino, S. Arridge, J. Sikora, and E. Somersalo. Anisotropic effects in highly scattering media. *Phys. Rev. E*, 68, 2003.
- [35] S. Hénon, G. Lenormand, A. Richert, and F. Gallet. A new determination of the shear modulus of the human erythrocyte membrane using optical tweezers. *Biophysical journal*, 76(2) :1145–1151, 1999.
- [36] J.W. Hovenier, K. Lumme, M.I. Mishchenko, D. W. Mackowski, and J. Rahola. Computations of scattering matrices of four types of non-spherical particles using diverse methods. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 55, 1996.
- [37] A. Ishimaru. *Wave propagation and Scattering in Random Media*. New Jersey and Oxford University Press, Piscataway, 1997.

- [38] J. J. M. Janssen, A. Boon, and W. G. M. Agterof. Influence of dynamic interfacial properties on droplet breakup in plane hyperbolic flow. *AICHE Journal*, 43(6) :1436–1447, 1997.
- [39] P. M. Johnson, B. P. J. Bret, J. G. Rivas, J. J. Kelly, and A. Lagendijk. Anisotropic diffusion of light in a strongly scattering material. *Physical Review Letters*, 89(24) :2439011–2439014, 2002.
- [40] P.M. Johnson, S. Faez, and A. Lagendijk. Full characterization of anisotropic diffuse light. *Opt. Exp.*, 16, 2008.
- [41] F. M. Kahnert. Numerical methods in electromagnetic scattering theory. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 79-80, 2003.
- [42] M. H. Kao, K. A. Jester, A. G. Yodh, and P. J. Collings. Observation of light diffusion and correlation transport in nematic liquid crystals. *Physical Review Letters*, 77(11) :2233–2236, 1996.
- [43] A. Kienle. Light guiding in biological tissue due to scattering. *Phys. Rev. L*, 97, 2006.
- [44] A. Kienle. Anisotropic light diffusion : An oxymoron? *Phys. Rev. L*, 98, 2007.
- [45] A. Kienle, F. K. Forster, R. Diebolder, and R. Hibst. Light propagation in dentin : influence of microstructure. *Phys. Med. Biol.*, 48, 2003.
- [46] N. Korin, A. Bransky, and U. Dinnar. Theoretical model and experimental study of red blood cell deformation in microchannels. *J. of Biomech.*, 40, 2007.
- [47] B. Krishnan, A. Deepthy, L. Irimpan, V. J. Dann, and V. P. N. Nampoore. Back scattering from nano-sized zno colloids. *Physica E : Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, 35(1) :23–26, 2006.
- [48] B. J. Lemaire, P. Panine, J. C. P. Gabriel, and P. Davidson. The measurement by saxs of the nematic order parameter of laponite gels. *Europhysics Letters*, 59(1) :55–61, 2002.
- [49] G. Lenormand, S. Hénon, A. Richert, J. Siméon, and F. Gallet. Direct measurement of the area expansion and shear moduli of the human red blood cell membrane skeleton. *Biophysical journal*, 81(1) :43–56, 2001. Cited By (since 1996) : 51.
- [50] Y. Li, C. Wen, H. Xie, A. Ye, and Y. Yin. Mechanical property analysis of stored red blood cell using optical tweezers. *Colloids and Surfaces B : Biointerfaces*, 70(2) :169–173, 2009.
- [51] Y. P. Liu, C. Li, and A. C. K. Lai. Experimental study on the deformation of erythrocytes under optically trapping and stretching. *Materials Science and Engineering A*, 423(1-2) :128–133, 2006.

-
- [52] T. Matsuyama, H. Yamamoto, and B. Scarlett. Transformation of diffraction pattern due to ellipsoids into equivalent diameter distribution for spheres. *Particle and Particle Systems Characterization*, 17(2) :41–46, 2000.
- [53] D. Megías-Alguacil, P. Fischer, and E. J. Windhab. Experimental determination of interfacial tension by different dynamical methods under simple shear flow conditions with a novel computer-controlled parallel band apparatus. *Journal of colloid and interface science*, 274(2) :631–636, 2004.
- [54] D. Megias-Alguacil and E. J. Windhab. Viscosity of a newtonian fluid calculated from the deformation of droplets covered with a surfactant under a linear shear flow. *Rheologica Acta*, 46(2) :223–229, 2006.
- [55] G. Mie. Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen. *Annalen Der Physik*, 25 :377–445, 1908.
- [56] F. Mighri and M. A. Huneault. In situ visualization of drop deformation, erosion, and breakup in high viscosity ratio polymeric systems under high shearing stress conditions. *Journal of Applied Polymer Science*, 100(4) :2582–2591, 2006.
- [57] K. B. Migler, E. K. Hobbie, and F. Qiao. In line study of droplet deformation in polymer blends in channel flow. *Polymer Engineering and Science*, 39(11) :2282–2291, 1999.
- [58] M. Mishchenko. Calculation of the amplitude matrix for a nonspherical particle in fixed oriented. *Appl. Opt.*, 39(6), 2000.
- [59] M. Mishchenko, J. W. Hovenier, and D. W. Mackowski. Single scattering by a small volume element. *J. Opt. Soc. Am.*, 21(1), 2008.
- [60] M. Mishchenko and L. D. Travis. Capabilities and limitations of a current fortran implementation of the t-matrix method for randomly oriented, rotationally symmetric scatterers. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 60(3), 1998.
- [61] M. Mishchenko, L. D. Travis, and A. Macke. Scattering of light by polydisperse, randomly oriented, finite circular cylinder. *App. Opt.*, 35(24), 1996.
- [62] M. I. Mishchenko. T-matrix codes for computing electromagnetic scattering by nonspherical and aggregated particles. <http://www.giss.nasa.gov/staff/mmishchenko/Tmatrix.htm>.
- [63] M. I. Mishchenko. Light scattering by randomly oriented axially symmetric particles. *J. Opt. Soc. Am.*, 8(6), 1991.
- [64] M. I. Mishchenko, L. D. Travis, and A. A. Travis. *Scattering, Absorption, and Emission of Light by Small Particles*. CAMBRIDGE UNIVERSITY PRESS, 2002.

- [65] Julien Mougel. *Rhéo-optique. Transport incohérent de lumière dans les milieux aléatoires; application à la caractérisation dynamique d'émulsions concentrées*. PhD thesis, Université Henri Poincaré, 2006.
- [66] N. Moumini and C. Baravian. Incoherent light transport in anisotropic media : Form factor influence for oriented prolate ellipsoids. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(14-16), 2009.
- [67] S. Nickell, M. Hermann, and M. Essenpreis. Anisotropy of light propagation in human skin. *Phys. Med. Biol.*, 45, 2000.
- [68] L. Onsager. The effects of shape on the interaction of colloidal particles. *Ann. NY Acad. Sci*, 59(1) :55–61, 1949.
- [69] D. J. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin, and E. Herbolzheimer. Diffusing wave spectroscopy. *Physical Review Letters*, 60(12), 1988.
- [70] J. A. Pople, I. W. Hamley, J. P. A. Fairclough, A. J. Ryan, and C. Booth. Orientational ordering of a poly(oxyethylene)-poly(oxybutylene) diblock copolymer gel under steady shear flow. *Macromolecules*, 31(9) :2952–2956, 1998.
- [71] J. A. Pople, I. W. Hamley, N. J. Terrill, J. P. A. Fairclough, A. J. Ryant, G. . Yu, and C. Booth. Shear-induced orientational order in the hexagonal phase of oxyethylene/oxybutylene diblock copolymer gels. *Polymer*, 39(20) :4891–4896, 1998.
- [72] S.A Prahl. *light transport in tissue*. PhD thesis, University of Texas, 1988.
- [73] J. M. Rallison. Deformation of small viscous drops and bubbles in shear flows. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 16 :45–66, 1984.
- [74] R. P. Rand and A. C. Burton. Mechanical properties of the red cell membrane : I. membrane stiffness and intracellular pressure. *Biophysical journal*, 4(2) :115–135, 1964.
- [75] COX RG. Deformation of a drop in a general time-dependent fluid flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 37(pt 3) :601–623, 1969.
- [76] L. F. Rojas-Ochoa, S. Romer, F. Scheffold, and P. Schurtenberger. Diffusing wave spectroscopy and small-angle neutron scattering from concentrated colloidal suspensions. *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, 65(5), 2002.
- [77] R. Sapienza, D. S. Wiersma, and D. Delande. Anisotropic weak localization of light : From isotropic scattering to ordered nematic liquid crystals. *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, 429 :193–212, 2005.
- [78] B. Schauf, B. Aydeniz, R. Bayer, and D. Wallwiener. The laser diffractoscope-a new and fast system to analyse red blood cell flexibility with high accuracy. *Lasers Med. Sci.*, 18, 2003.

-
- [79] S. Shin, Y. Ku, M.S. Park, and J.S Suh. Rapid cell-deformability sensing system based on slit-flow laser diffractometry with decreasing pressure differential. *Biosensors and Bioelectronics*, 20, 2005.
- [80] V. Sibillo, G. Pasquariello, M. Simeone, V. Cristini, and S. Guido. Drop deformation in microconfined shear flow. *Physical Review Letters*, 97(5), 2006.
- [81] I. Sigillo, L. Di Santo, S. Guido, and N. Grizzuti. Comparative measurements of interfacial tension in a model polymer blend. *Polymer Engineering and Science*, 37(9) :1540–1549, 1997.
- [82] C. H. Song and A. I. Isayev. Lcp droplet deformation in fiber spinning of self-reinforced composites. *Polymer*, 42(6) :2611–2619, 2001.
- [83] G. I. Taylor. The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid. *Proc.R.Soc.London, Ser.A*, 138 :41–48, 1932.
- [84] G. I. Taylor. The formation of emulsions in definable fields of flow. *Proc.R.Soc.London, Ser.A*, 146 :501–523, 1934.
- [85] F. Thom and H. Gollek. Calculation of mechanical properties of human red cells based on electrically induced deformation experiments. *Journal of Electrostatics*, 64(1) :53–61, 2006.
- [86] G. Toussaint. *Dynamique de structuration des milieux complexes : Caractérisations rhéologiques et optique des milieux dispersés concentrés*. PhD thesis, Paris 7, 2006.
- [87] L. Tsang, J. A. Kong, K. H. Ding, and C. O. Ao. *Scattering of Electromagnetic Waves, Vol.2 : Numerical Simulation*. New York, 2000.
- [88] X. Tuang, Z. Chun-Ping, C. Gui-Ying, T. Jian-Guo, Z. Guang-Yin, and Z. Cheng-Mei. Theoretical and experimental study of the intensity distribution in biological tissues. *CHin. Phys. Soc.*, 14, 2005.
- [89] H.C Van de Hulst. *Light Scattering by Small Particles*. Dover Publications, New York, 1981.
- [90] B. A. Van Tiggelen, R. Maynard, and A. Heiderich. Anisotropic light diffusion in oriented nematic liquid crystals. *Physical Review Letters*, 77(4) :639–642, 1996.
- [91] J. Viamontes, S. Narayanan, A.R.. Sandy, and J.X. Tang. Orientational order parameter of nematic liquid crystalline phase of f-actin. *Phys. Rev. E*, 73, 2006.
- [92] H. K. M. Vithana, L. Asfaw, and D. L. Johnson. Coherent backscattering of light in a nematic liquid crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 70(23) :3561–3564, 1993.
- [93] N. V. Voshchinnikov, V.B. Il'in, Th. Henning, B. Michel, and V.G. Farafonov. Extinction and polarization of radiation by absorbing spheroids : shape/ size effects and benchmark results. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 65, 2000.

- [94] L. Wang, S. L. Jacques, and L. Zheng. Mcml - monte carlo modeling of light transport in multi-layered tissues. *Computer methods and programs in biomedicine*, 47(2) :131–146, 1995.
- [95] P.C Waterman. Symmetry, unitary, and geometry in electromagnetic scattering. *Phys. Rev. D*, 3, 1971.
- [96] D. J. WIELAARD, M. Mishchenko, A. Macke, and B. E. Carlson. Improved t-matrix computations for large, nonabsorbing and weakly absorbing nonspherical particles and comparison with geometrical-optics approximation. *App. Opt.*, 36(18), 1997.
- [97] D. S. Wiersma, A. Muzzi, M. Colocci, and R. Righini. Time-resolved anisotropic multiple light scattering in nematic liquid crystals. *Physical Review Letters*, 83(21) :4321–4324, 1999.
- [98] P.E. Wolf and G. Maret. Weak localization and coherent backscattering of photons in disordered media. *Phys. Rev. Lett.*, 55(24) :2696–2699, 1985.
- [99] T. Wriedt and U. Comberg. Comparison of computational scattering methods. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 60(3) :411–423, 1998.
- [100] T. Xu, M. T. Shaw, and R. A. Weiss. Rheo-optical studies of the effect of shear flow on the structure of elastomer blends. *Journal of Polymer Science, Part B : Polymer Physics*, 42(9) :1725–1738, 2004.
- [101] K. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell equations in isotropic media. *IEEE Trans. Antenna Propagation*, 302 :1977, 1966. Cited By (since 1996) : 1.

Résumé

Pour construire le lien entre l'organisation structurale des milieux dispersés concentrés et leurs propriétés mécaniques, il est nécessaire de pouvoir identifier leur structure à l'échelle microscopique. En particulier, il faut être capable mesurer la taille des particules ou des amas de particules, leur concentration et les éventuelles anisotropies liées à une déformation ou une orientation (globale ou partielle) dans le cas de particules anisotropes (fibres par exemple) ou déformables (émulsions, globules rouges,...). La difficulté majeure est que ces systèmes composés de particules micrométriques sont généralement opaques à la lumière visible (produits agroalimentaires tels que les laitages, fluides biologiques tels que le sang, matériaux liés au bâtiment tels que les ciments, les argiles ou les peintures,...). Nous avons ainsi mis au point une technique optique basée sur la diffusion multiple de la lumière. Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons plus particulièrement à la caractérisation des milieux constitués d'objets anisotropes. Sous l'action d'un champ de cisaillement, on observe une orientation privilégiée ou une déformation globale des particules.

L'objectif de cette thèse est donc à la fois d'étudier les mécanismes qui sont à l'origine de la déformation et/ou l'orientation des particules et également de mesurer ces anisotropies à l'échelle microscopique. On s'appuie pour mener cette étude sur un dispositif développé au laboratoire basé sur le transport incohérent de lumière couplé à un rhéomètre. Il s'agit d'un dispositif constitué d'une source laser focalisée à la surface d'un échantillon et d'une caméra CCD permettant l'acquisition d'une image rétrodiffusée loin du point d'impacte du laser. Parallèlement, une base de données de simulation de Monte Carlo a été réalisé et permet par l'analyse des images rétrodiffusées anisotropes, de remonter à l'information sur l'anisotropie réelle des particules (facteur de forme) leur champ d'orientation (paramètre d'ordre). En effet, en confrontant les données expérimentales aux données numériques, nous sommes en mesure de déterminer le taux d'orientation moyen de particules très anisotropes ou de caractériser la déformation des particules. Une application à la déformation des rouges sous cisaillement pour du sang en concentration physiologique (40 à 50% en volume) sera présentée. D'autres applications, notamment à l'endommagement des plastiques et à l'orientation de suspensions de fibres seront discutées.

Mots-clés: Diffusion de lumière, Transport incohérent de lumière, Suspensions aniso-

tropes, Déformation, Orientation,

