

50376
1968
41

50.376
1968
41

N° d'ordre 177

THÈSES

présentées à la

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LILLE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

par

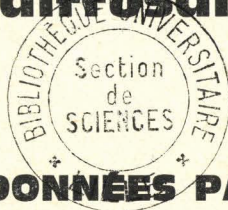
MAURICE HERMAN

Première thèse :

**Contribution
à l'étude du transfert radiatif
dans un milieu diffusant et absorbant**

Deuxième thèse :

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ



soutenues le 9 Juillet 1968 devant la Commission d'Examen

M. BACCHUS, Président

M^{lle} LENOBLE, examinateur - M. BÉCART, examinateur, - M. FRANÇON, invité

UNIVERSITE DE LILLE
FACULTE DES SCIENCES

DOYEN

M. DEFRETIN.

DOYENS HONORAIRES

MM. H. LEFEBVRE, M. PARREAU

PROFESSEURS HONORAIRES

MM. ARNOULT, BEGHIN, BROCHARD, CAU, CHAPPELON, CHAUDRON, CORDONNIER,
DEHEUVELS, DEHORNE, DOLLE, FLEURY, P. GERMAIN, KAMPE DE FERJET, KOURGANOFF,
LAMOTTE, LELONG, Mme LELONG, MM. MAZET, MICHEL NORMANT, PARISELLE, PASCAL,
PAUTHENIER, ROIG, ROSEAU, ROUBINE, ROUELLE, WIEMAN, ZAMANSKY

PROFESSEURS

| NOM - PRENOM | LABORATOIRE |
|----------------------|------------------------------------|
| BACCHUS Pierre | Astronomie et Calcul Numérique |
| BEAUFILS Jean-Pierre | Catalyse |
| BONNEMAN Pierre | Chimie Analytique Industrielle |
| BECART Maurice | Spectroscopie moléculaire |
| BLOCH Vincent | Psychophysiologie |
| BONTE Antoine | Géologie Appliquée |
| BOUGHON Pierre | Mathématiques |
| BOUISSET Simon | Physiologie Générale |
| BOURIQUET Robert | Physiologie Végétale |
| CELET Paul | Géologie Dynamique |
| CONSTANT Eugène | Hyperfréquence et semi-conducteurs |
| CORSIN Pierre | Palynologie Paléontologie Végétale |
| DECUYPER Marcel | Mathématiques |
| DEDECKER Paul | Mathématiques |
| DEFRETIN René | Biologie Marine |
| DEHORS Roger | Automatique et Calcul Analogique |

| | |
|-------------------------|--|
| DELATTRE Charles | Géologie Régionale |
| DELEAU Paul | Sédimentologie |
| DELHAYE Michel | Spectroscopie Raman |
| DESCOMBES Roger | Mathématiques |
| DURCHON Maurice | Endocrinologie des Invertébrés |
| FOURET René | Physique des Solides Rayons X |
| GABILLARD Robert | Géopropagation et Résonances Magnétiques |
| GLACET Charles | Chimie Organique I |
| GONTIER Gérard | Mécanique des Fluides |
| HEIM DE BALSAC Henri | Ecologie des Vertébrés |
| HEUBEL Joseph | Chimie Minérale I |
| HOCQUETTE Maurice | Botanique |
| LEBEGUE André | |
| Mme LEBEGUE Georgette | |
| LEBRUN André | Spectrométrie des Liquides et Mesures Automatiques |
| Mlle LENOBLE Jacqueline | Optique Atmosphérique |
| LIEBAERT Robert | Spectrométrie des Solides et Mesures Automatiques |
| | Génie Electrique |
| LINDER Robert | Cytogénétique |
| LUCQUIN Michel | Chimie de la Combustion |
| MARION Ernest | |
| MARTINOT-LAGARDE André | Mécanique des Fluides |
| Mlle MARQUET Simone | Mathématiques |
| MENNESSIER Guy | |
| MONTARIOL Frédéric | Métallurgie |
| MONTREUIL Jean | Physico-Chimie Biologique |
| MORIAMEZ Michel | Physique des Ultra-Sons |
| MOUVIER Gérard | |
| PARREAU Michel | Mathématiques |
| PEREZ Jean-Pierre | Mécanique des Cristaux |
| PHAM MAU QUAN | Mathématiques |
| POUZET Pierre | Calcul Numérique |

| | |
|---------------------------|---|
| PROUVOST Jean | Minéralogie |
| SAVARD Jean | Catalyse |
| SCHILTZ René | Spectroscopie Générale |
| SCHALLER François | Entomologie |
| Mme SCHWARTZ Marie-Hélène | Mathématiques |
| TILLIEU Jacques | Physique Théorique |
| TRIDOT Gabriel | Chimie Minérale Appliquée |
| VAZART Bernard | |
| VIVIER Emile | Prostitologie et Microscopie Electronique |
| WATERLOT Gérard | Géologie Stratigraphique |
| WERTHEIMER Raymond | Spectroscopie hertzienne et Electronique quantique |

MAITRES DE CONFERENCES

| | |
|----------------------|---|
| BELLET Jean | Spectroscopie hertzienne et Electronique quantique |
| BENABOU Jean | Mathématiques |
| BILLARD Jean | Stases Amisotropes |
| BOILLET Pierre | Spectroscopie Infra-rouge |
| BUI TRONG LIEU | Mathématiques |
| CHERRUAULT Yves | Mathématiques |
| CHEVALIER Alfred | |
| DERCOURT Jean-Michel | Géologie Structurale |
| DEVRAINNE Pierre | Chimie Minérale II |
| Mme DIXMIER Suzanne | |
| Mme DRAN Raymonde | Chimie Organique II |
| DUQUESNOY Alain | |
| GOUDMAND Pierre | Photochimie |
| GUILBAULT Pierre | Physiologie Comparée |
| GUILLAUME Jean | Microbiologie |
| HENRY Lucien | |
| HERZ Jean-Claude | Calcul Numérique |
| HEYMAN Michel | |

| | |
|--------------------------|---|
| HUARD DE LA MARRE Pierre | Calcul Numérique |
| JOLY Robert | Endocrinologie des Arthropodes |
| LABLACHE-COMBIER Alain | Chimie Organique Physique |
| LACOSTE Louis | Cryptogamie |
| LAMBERT Gérard | |
| LANDAIS Jean | Chimie Organique III |
| LEHMANN Daniel | Mathématiques |
| Mme LEHMANN Josiane | Mathématiques |
| LOUCHEUX Claude | Chimie Macromoléculaire |
| MAES Serge | Spectroscopie hertzienne et Electronique quantique |
| METTETAL Christian | |
| MONTEL Marc | Optique des Rayons X |
| NGUYEN PHONG CHAU | |
| PANET Marius | Electrotechnique |
| PARSY Fernand | Mathématiques |
| RACZY Ladislas | Hyperfréquences et semi-conducteurs |
| SAADA Georges | Défauts dans les Cristaux |
| SEGARD Emile | Biochimie Cellulaire |
| TUDO Joseph | |
| VAILLANT Jean | Mathématiques |
| VIDAL Pierre | Automatique Théorique et Appliquée |
| Mme ZINN-JUSTIN Nicole | Mathématiques |

A ma Mère.

A ma Femme.

Ce travail a été effectué au Laboratoire d'Optique Atmosphérique, de la Faculté des Sciences de Lille, sous la direction de Mademoiselle Lenoble, Professeur. Je suis heureux de lui exprimer ma profonde gratitude pour les constants encouragements et les précieux conseils qu'elle m'a donnés.

Je remercie Monsieur le Professeur Pouzet, ainsi que Messieurs Dilly et Azambre, du Laboratoire de Calcul Numérique de Lille, grâce à qui les calculs intervenant dans ce travail ont pu être menés à bien.

Ma reconnaissance va également à Messieurs les Professeurs Bacchus, Bécart et Françon, qui m'ont fait l'honneur de bien vouloir faire partie de mon Jury.

Je tiens enfin à remercier tous mes collègues de Laboratoire, et particulièrement Monsieur Devaux, dont la collaboration m'a toujours été précieuse.

INTRODUCTION

L'étude du transfert du rayonnement électromagnétique à travers un milieu qui diffuse et absorbe simultanément ce rayonnement a vu, sur le plan théorique, de très nombreux développements principalement axés sur la recherche d'approximations satisfaisantes dans la solution des équations régissant ce transfert. Parallèlement, quantité de mesures, en particulier sous marines et atmosphériques, ont pu apporter de précieux renseignements dans ces domaines. Mais, outre que les mesures "in situ" ont généralement un but purement pratique et ne se proposent pas de vérifier la validité des approximations théoriques, elles ne permettent pas une étude aisée des influences, sur le transfert, des divers paramètres auxquels il est soumis.

Il semble donc intéressant de pouvoir réaliser en laboratoire des modèles réduits de milieux naturels, idéalisables à volonté, et sur lesquels une telle analyse soit possible. A notre connaissance, avant l'utilisation toute récente d'une chambre à brouillard par la Compagnie Sud Aviation, les seules tentatives dans ce sens étaient jusqu'ici celle de Timofeeva, à l'Institut Marin Hydrographique de Moscou en liaison avec les travaux théoriques de Rosenberg [1], et celle de Lenoble [2] entreprise au Muséum de Paris. Encore peut-on regretter que les mesures dirigées par Timofeeva aient été faites sur des milieux optiquement mal définis.

Le travail qui nous était donc proposé par Mademoiselle Lenoble était de tester quantitativement le dispositif expérimental mis au point au Muséum de Paris. Des premières mesures en avaient déjà montré le caractère opérationnel; il restait à chercher avec quelle précision ce dispositif permettait de vérifier la théorie, et à effectuer d'une façon complète et quantitative la comparaison théorie-expérience.

Pour justifier les conditions expérimentales choisies et préciser

.../...

les problèmes à résoudre, rappelons quelques généralités sur le transfert radiatif. La grandeur de base, dont on cherche à déterminer les lois du transfert dans un milieu trouble, est la luminance énergétique monochromatique du rayonnement diffus ($w.m^{-3}.sr^{-1}$). Le rayonnement, généralement polarisé, dépend de quatre paramètres à préciser, et sa luminance sera donc représentée par une matrice colonne à quatre termes, $\underline{I}(M, \vec{s})$, fonction du point M et de la direction de propagation repérée par le vecteur unitaire \vec{s} . Un simple bilan énergétique dans un élément de volume du milieu permet d'établir l'équation intégral-différentielle à résoudre :

$$(1) \quad \frac{\partial \underline{I}(M, \vec{s})}{\partial s} = -K(M) \underline{I}(M, \vec{s}) + \frac{\tilde{\omega}_0(M)}{4\pi} \int_{\text{espace}} K(M) \underline{P}(M, \vec{s}, \vec{s}') \underline{I}(M, \vec{s}') dw$$

$$+ \frac{\tilde{\omega}_0(M)}{4\pi} \sum_{i \text{ sources}} K(M) \underline{P}(M, \vec{s}, \vec{s}_i) \underline{E}_i(M, \vec{s}_i) \exp \left[- \int_{S_i}^M K(P) ds_i \right]$$

Les variables $K(M)$ et $\tilde{\omega}_0(M)$ caractérisent les propriétés d'absorption et de diffusion du milieu au point M. Plus précisément, un faisceau parallèle, d'état de polarisation quelconque et défini par sa matrice éclairement \underline{E}_0 , subit, dans la traversée d'une épaisseur ds du milieu, des pertes $d\underline{E}_a$ par absorption et $d\underline{E}_d$ par diffusion. On définit :

- un coefficient d'absorption b (en m^{-1}) par :

$$(2) \quad d\underline{E}_a = -b ds \underline{E}_0 ,$$

- un coefficient de diffusion k (en m^{-1}) par :

$$(3) \quad d\underline{E}_d = -k ds \underline{E}_0 ;$$

on pose par commodité :

$$(4) \quad K(M) = k(M) + b(M)$$

$$(5) \quad \tilde{\omega}_0(M) = k(M) / K(M).$$

On remarquera que k et b sont ici des scalaires; ce qui signifie qu'on ne s'intéresse pas aux milieux optiquement actifs, d'un intérêt nul dans les problèmes naturels.

La matrice de phase $\underline{P}(M, \vec{s}, \vec{s}')$ est une matrice carrée à 16 termes. Elle caractérise la matrice luminance associée au rayonnement diffusé dans une direction \vec{s}' , par un élément dv de volume diffusant, placé en M et y recevant, dans la direction \vec{s} , un faisceau de matrice éclairement \underline{E}_0 ; soit :

$$(6) \quad \underline{I}'(M, \vec{s}') = \frac{k \, dv}{A \, 4\pi} \underline{P}(M, \vec{s}, \vec{s}') \underline{E}_0(M, \vec{s})$$

où A est la section apparente de dv dans la direction \vec{s}' .

Enfin, on a supposé placées en divers points S_i de l'espace des sources émettant vers M avec les éclairagements respectifs $\underline{E}_i(M, \vec{s}_i)$, les vecteurs unitaires \vec{s}_i étant portés par $S_i M$.

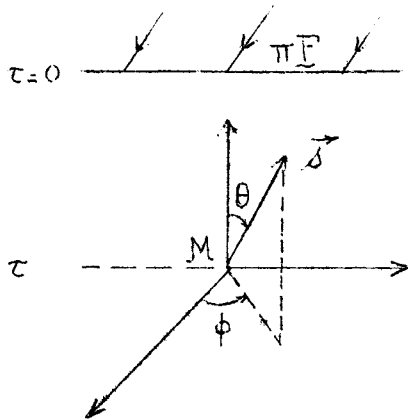
On remarquera que toutes ces grandeurs dépendent de la longueur d'onde. Les équations sont supposées établies pour une radiation monochromatique.

La recherche d'une solution de l'équation (1) dépend avant tout de la forme donnée au noyau $\underline{P}(M, \vec{s}, \vec{s}')$ et de la géométrie du milieu et des sources. La presque totalité de la littérature porte sur le cas idéalisé d'une couche homogène limitée par deux plans parallèles infinis, uniformément éclairée sur sa face supérieure par un faisceau parallèle. Cette géométrie présentant par ailleurs une bonne approximation de nombreux milieux naturels sous l'éclairement solaire, nous avons cherché d'abord à réaliser un modèle de laboratoire s'en approchant, et le dispositif expérimental décrit plus loin aura cette configuration.

Ce premier choix étant fait, l'équation de transfert à vérifier prend la forme classique (3) :

$$(7) \quad \mu \frac{\partial \underline{I}(\tau, \mu, \phi)}{\partial \tau} = \underline{I}(\tau, \mu, \phi) - \frac{\tilde{\omega}_0}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^{+1} \underline{P}(\mu, \phi, \mu', \phi') \underline{I}(\tau, \mu', \phi') \, d\mu' \, d\phi' - \frac{\tilde{\omega}_0}{4\pi} \underline{P}(\mu, \phi, \mu_0, \phi_0) \pi \underline{E} e^{\tau/\mu_0}$$

.../...



Les nouvelles variables introduites sont les angles θ et ϕ repérant la direction de propagation \vec{s} respectivement par rapport à la verticale ascendante et à un axe origine arbitraire dans le plan horizontal. On pose par commodité :

$$(8) \quad \mu = \cos \theta$$

Les variables indicées μ_0 et ϕ_0 correspondent au faisceau incident, de matrice éclairement $\pi \mathbb{F}$.

La position d'un point M est caractérisée uniquement par sa profondeur géométrique h dans la couche, et on appelle profondeur optique la quantité :

$$(9) \quad \tau = (k + b) h .$$

Enfin, le milieu étant supposé homogène, les divers paramètres ne dépendent plus de M , et en particulier la matrice de phase ne dépend plus que de l'angle (θ) entre les directions \vec{s} et \vec{s}' ; on écrira donc :

$$(10) \quad \underline{P}(M, \vec{s}, \vec{s}') = \underline{P}(\theta) = \underline{P}(\mu, \phi; \mu', \phi')$$

Même ainsi simplifié, le problème reste d'une résolution pénible. Dans une première approximation beaucoup d'auteurs ont supposé les phénomènes de polarisation négligeables. Les matrices luminance et éclairement sont alors remplacées par les simples grandeurs scalaires correspondantes, et l'équation (7) se réduit à une seule équation scalaire :

$$(11) \quad \mu \frac{\partial I(\tau, \mu, \phi)}{\partial \tau} = I(\tau, \mu, \phi) - \frac{\tilde{\omega}_0}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^{+1} p(\mu, \phi; \mu', \phi') I(\tau, \mu', \phi') d\mu' d\phi' - \frac{\tilde{\omega}_0}{4\pi} p(\mu, \phi; \mu_0, \phi_0) \pi \mathbb{F} e^{\tau/\mu_0}$$

où $I(\tau, \mu, \phi)$ représente la luminance énergétique et où la fonction de phase $p(\theta)$ remplace la matrice $\underline{P}(\theta)$ dans l'équation scalaire correspondant à (6).

Cette équation simplifiée (11) a été la première résolue. Les principales méthodes qui en donnent une solution approchée adaptée à une forme quelconque de la fonction de phase $p(\theta)$, sont celle des "ordonnées discrètes", développée par Chandrasekhar [3], et celle des "harmoniques sphériques" établie par Mark et développée par Davison [4]. Chandrasekhar a en outre étendu sa méthode à la résolution de l'équation complète (7), mais dans le cas limité de la diffusion Rayleigh, c'est-à-dire de milieux dont les centres diffusants sont de dimensions petites devant la longueur d'onde du rayonnement diffus. En définitive, la généralisation des méthodes précédentes, suggérée par Kuscer [5] et développée par Lenoble [6], semble apte à traiter l'équation (7) de façon générale, et c'est cette méthode à laquelle nous nous sommes attachés. Remarquons que les principes d'invariance, introduits par Ambartsumian [7] et étendus par Chandrasekhar [3], peuvent donner dans certains cas une solution exacte du problème, mais ils sont plutôt adaptés à un calcul du rayonnement sortant de la couche qu'à celui du rayonnement interne, et de plus, leur généralisation à des matrices $\underline{P}(\theta)$, ou même des fonctions $p(\theta)$ un peu compliquées ne semble pas évidente. Il en est de même des diverses méthodes exactes [8, 9, 10] sur lesquelles nous ne nous étendrons pas.

Au stade de l'application pratique de ces formules, la première difficulté réside dans la connaissance du noyau de l'équation intégrale traitée. La plupart des calculs effectués jusqu'ici l'ont donc été pour la diffusion Rayleigh, où l'on connaît ce noyau, ou pour des indicatrices théoriques arbitraires et simples, telles que l'indicatrice isotrope. En ce qui nous concerne, étant donné la suspension réelle de particules diffusantes constituant notre milieu, il fallait que nous puissions déduire, de leurs caractéristiques optiques et géométriques, leurs propriétés diffusantes et exprimer la fonction ou la matrice de phase correspondantes sous les formes mathématiques que leur supposent les théoriciens.

Dans le choix des particules diffusantes, comme dans celui de la géométrie du milieu, on est guidé aussi bien par des considérations théoriques que pratiques. Il apparaît qu'un des rares cas où l'on puisse calculer

théoriquement les caractéristiques de l'onde diffuse est celui d'une particule sphérique; ce problème a été résolu par Mie [11]. Les aérosols naturels ou les suspensions artificielles répondant d'autre part le plus souvent à cette géométrie, un premier problème d'intérêt général est donc de transformer les séries de Mie, qui déterminent entièrement les paramètres de l'onde polarisée diffusée par une particule sphérique, pour les adapter aux formalismes permettant la résolution de l'équation de transfert. Chu, Clark et Churchill [12] avaient déjà résolu le problème dans le cas simplifié où l'on néglige la polarisation, et exprimé sous la forme convenable qu'on verra la fonction de phase $p(\theta)$ régissant la luminance totale. Notre premier travail, de caractère théorique, a donc été de généraliser au cas de la polarisation cette adaptation des séries de Mie. Nous avons effectué cette adaptation dans le formalisme utilisé par Kušcer, en raison de la généralité de sa méthode. Ce travail est décrit dans la première partie.

Si nous supposons alors connues les caractéristiques des particules sphériques qui constituent notre milieu expérimental, nous disposons maintenant des coefficients convenables pour résoudre numériquement l'équation (7) ou (11). Bien que ce problème, résolu théoriquement, ne présente plus, a priori, de difficulté, il s'agit en fait d'un travail numérique extrêmement lourd, dès qu'on abandonne les cas particuliers simples de la diffusion Rayleigh ou de la diffusion isotrope. Ce travail est d'ailleurs actuellement en cours au laboratoire, et Guillemot [13] a pu programmer la méthode de Davison dans le cas de l'équation (11). Les difficultés rencontrées, même dans ce cas simplifié, montrent qu'il nous était difficile d'envisager directement une résolution numérique complète du problème, en tenant compte de la polarisation par l'équation (7), et avec une loi de diffusion générale. Nous disposons heureusement d'un cas particulier de transfert, où les équations se simplifient, celui du régime asymptotique. On a en effet prévu depuis longtemps que, dans le cas où la couche diffusante atteint une profondeur optique suffisante, le régime radiatif doit tendre, en grande profondeur, vers une solution ne dépendant plus, en valeurs relatives, des conditions d'éclairement, et caractérisée par une décroissance exponentielle de la luminance et une symétrie de révolution autour de la verticale. Le seul inconvénient expérimental de ce choix (à savoir qu'en grande profondeur

les intensités à détecter seront faibles) est largement compensé par la simplification considérable résultant de la disparition de la variable azimut. C'est donc essentiellement à l'étude de ce cas que nous nous sommes limités; l'étude en polarisation devant permettre, tout d'abord de vérifier l'hypothèse un peu arbitraire suivant laquelle on peut négliger cette polarisation du rayonnement diffus, dans un calcul de sa seule luminance énergétique, et par la suite, de voir si des mesures de polarisation ne sont pas susceptibles de donner des renseignements complémentaires intéressants sur la constitution du milieu. On trouvera dans la seconde partie les méthodes numériques utilisées pour résoudre les équations, et les résultats théoriques obtenus.

Nous passerons ensuite à l'étude expérimentale. Au cours de celle-ci, il nous est apparu très difficile d'obtenir des dispersions de particules sphériques, en quantités suffisantes pour les mesures envisagées, et dont les propriétés diffusantes soient parfaitement définies à partir de la seule connaissance de leurs diamètres et de leur indice. De très nombreux facteurs, mal contrôlables, peuvent en effet, comme on le verra, faire varier ces propriétés, et il nous a semblé indispensable de disposer d'une méthode de mesure permettant de tester la fonction de phase des particules utilisées. Nous résumons dans la troisième partie ce travail expérimental; on remarquera que dans toute l'étude expérimentale, on s'est borné à des mesures de luminance totale, les calculs théoriques de la seconde partie ayant vérifié l'influence négligeable de la polarisation sur cette luminance, dans le cas de transfert étudié.

Enfin, dans la quatrième partie, nous décrivons le dispositif expérimental utilisé pour l'étude du rayonnement diffus, et la méthode de mesure qui nous a semblé la plus valable. On verra que, dans le cas du transfert en profondeur, on a pu vérifier les résultats théoriques avec une bonne précision; ceci permet d'envisager un développement ultérieur des mesures, sur le dispositif expérimental ainsi testé, en passant à l'étude plus générale des phénomènes de polarisation et de milieux de faibles profondeurs optiques.

PREMIERE PARTIE

DEVELOPPEMENT DE LA MATRICE DE DIFFUSION
DEDUITE DE LA THEORIE DE MIE

A - RAPPELS

Etablissons d'abord brièvement, à partir de la théorie de Mie [11] et des conventions de Kušcer [5], la forme sous laquelle se pose le problème envisagé. Considérons une onde plane monochromatique, partiellement polarisée, enpropagation suivant l'axe OZ. En un point, le champ électrique peut se décomposer sous la forme :

$$(I.1) \quad \vec{E} = \text{Re} (E_1 \vec{e}_1 + E_r \vec{e}_r) ,$$

où on introduit les deux vibrations rectilignes \vec{e}_1 et \vec{e}_r , de pulsation ω et d'amplitude 1, perpendiculaires entre elles dans le plan normal à OZ, et les composantes complexes E_1 et E_r de \vec{E} , variables dans le temps, suivant les directions (\vec{i}) et (\vec{r}) .

Ce rayonnement est complètement caractérisé par quatre paramètres donnant par exemple l'éclairement, le taux de polarisation, la direction et la forme de la vibration polarisée, en général elliptique. Si on utilise les paramètres de Stokes [14], on associera au faisceau la matrice colonne d'éclairement :

$$(I.2) \quad \underline{\tilde{E}} = \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \frac{1}{2} c \epsilon \epsilon_0 \begin{pmatrix} \overline{E_1 \tilde{E}_1} + \overline{E_r \tilde{E}_r} \\ \overline{E_1 \tilde{E}_1} - \overline{E_r \tilde{E}_r} \\ \overline{E_1 \tilde{E}_r} + \overline{E_r \tilde{E}_1} \\ \overline{E_1 \tilde{E}_r} - \overline{E_r \tilde{E}_1} \end{pmatrix}$$

où les quantités $\overline{E_i \tilde{E}_j}$ désignent les moyennes dans le temps, \tilde{E}_i étant la quantité complexe conjuguée de E_i .

Lorsque cette onde rencontre une particule sphérique de rayon R, elle donne une onde diffuse sphérique dont l'étude a été faite par Mie. On

sait alors qu'au point D, à une distance r suffisante de la particule S, le champ diffusé est transversal, ce qui permet de l'écrire sous la forme :

$$(I.3) \quad \begin{pmatrix} E'_l \\ E'_r \end{pmatrix} = \frac{\exp i \frac{2\pi}{\lambda} (z+r)}{i \frac{2\pi r}{\lambda}} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_l \\ E_r \end{pmatrix},$$

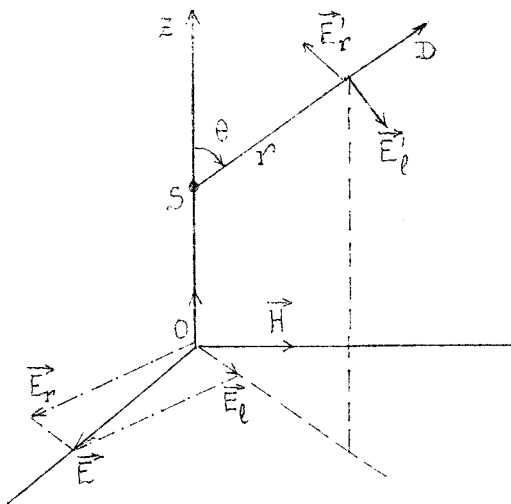


Figure (I.1)

où l'on a décomposé les champs incidents et diffusés suivant deux composantes (l) et (r), respectivement parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion défini par OZ et SD.

Pour une particule sphérique, on a :

$$S_3 = S_4 = 0, \text{ et on posera :}$$

$$(I.4) \quad \begin{aligned} S_1 &= s_1 e^{i\phi_1} \\ S_2 &= s_2 e^{i\phi_2} \\ \delta &= \phi_2 - \phi_1 \end{aligned}$$

Ces quantités, données par les séries classiques de Mie, dépendent de l'angle de diffusion θ , de l'indice m , réel ou complexe, de la particule, et du rapport dimension de la particule - longueur d'onde du rayonnement par le paramètre :

$$(I.5) \quad \alpha = \frac{2\pi R}{\lambda} .$$

On voit donc que la matrice éclaïrement du faisceau diffusé par une particule sphérique, à une distance r de celle-ci, s'exprime avec les paramètres de Stokes par :

$$(I.6) \quad \begin{pmatrix} I' \\ Q' \\ U' \\ V' \end{pmatrix} = \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} \begin{pmatrix} s_1 \tilde{S}_1 + s_2 \tilde{S}_2 & s_2 \tilde{S}_2 - s_1 \tilde{S}_1 & 0 & 0 \\ s_2 \tilde{S}_2 - s_1 \tilde{S}_1 & s_2 \tilde{S}_2 + s_1 \tilde{S}_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & s_2 \tilde{S}_1 + \tilde{S}_2 S_1 & i(s_2 \tilde{S}_1 - \tilde{S}_2 S_1) \\ 0 & 0 & -i(s_2 \tilde{S}_1 - \tilde{S}_2 S_1) & s_2 \tilde{S}_1 + \tilde{S}_2 S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \\ \dots/\dots \end{pmatrix}$$

La matrice carrée du second membre représente la matrice de diffusion $\underline{\underline{F}}(\theta)$, si l'on pose :

$$(I.7) \quad \underline{\underline{E}}'(\theta) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{1}{r^2} \underline{\underline{F}}(\theta) \underline{\underline{E}} .$$

Remarquons que dans l'établissement de l'équation de transfert, on est plutôt amené à relier la luminance diffuse à l'éclairement incident, et puisqu'on a $\underline{\underline{I}}'(\theta) = r^2 A^{-1} \underline{\underline{E}}'(\theta)$, la matrice de phase $\underline{\underline{P}}(\theta)$ définie dans (6) s'écrira :

$$(I.8) \quad \underline{\underline{P}}(\theta) = \frac{\lambda^2}{4\pi k} \underline{\underline{F}}(\theta) .$$

Enfin dans le cas d'une particule sphérique de rayon R, le coefficient de diffusion k est relié au facteur efficace de diffusion K, fonction de R, m et λ , et donné par la théorie de Mie, par la relation :

$$(I.9) \quad k = \pi R^2 K ;$$

la matrice de phase sera finalement définie par :

$$(I.10) \quad \underline{\underline{P}}(\theta) = \frac{\underline{\underline{F}}(\theta)}{\alpha^2 K} .$$

Comme on le verra dans la seconde partie, Kušcer a montré les simplifications importantes apportées à la résolution de l'équation de transfert matricielle en utilisant une représentation différente pour le champ. Au lieu de décomposer l'onde plane sous la forme (I.1), Kušcer la décompose suivant les deux vibrations circulaires inverses :

$$(I.11) \quad \begin{aligned} \vec{e}_+ &= (\vec{e}_r + i\vec{e}_1) / \sqrt{2} \\ \vec{e}_- &= (\vec{e}_r - i\vec{e}_1) / \sqrt{2} \end{aligned}$$

et pose :

$$(I.12) \quad \vec{E} = \text{Re} (E_+ \vec{e}_+ + E_- \vec{e}_-) ,$$

soit :

$$(I.13) \quad \begin{pmatrix} E_+ \\ E_- \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} +1 & -i \\ +i & +1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_l \\ E_r \end{pmatrix}$$

On peut ainsi définir une nouvelle matrice éclairément :

$$(I.14) \quad \underline{E} = \begin{pmatrix} I_2 \\ I_0 \\ I_{-0} \\ I_{-2} \end{pmatrix} = \frac{1}{2} c \epsilon \epsilon_0 \begin{pmatrix} \overline{E_+ E_-} \\ \overline{E_+ E_+} \\ \overline{E_- E_-} \\ \overline{E_- E_+} \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} Q - iU \\ I - V \\ I + V \\ Q + iU \end{pmatrix}$$

où les indices $m = {}^+-2, {}^+-0$, indiquent que dans une rotation des axes de référence (\vec{l}, \vec{r}) d'un angle ψ , les différents paramètres sont simplement multipliés par le facteur $e^{im\psi}$.

Si l'on choisit ces matrices éclairément pour caractériser les rayonnements incident et diffusé, on obtient une nouvelle matrice de phase qui se déduit facilement de (I.6), (I.7), (I.10) et (I.14), soit :

$$(I.15) \quad \underline{P}(\theta) = \begin{pmatrix} P_{+2+2} & P_{+0+2} & P_{-0+2} & P_{-2+2} \\ P_{+2+0} & P_{+0+0} & P_{-0+0} & P_{-2+0} \\ P_{+2-0} & P_{+0-0} & P_{-0-0} & P_{-2-0} \\ P_{+2-2} & P_{+0-2} & P_{-0-2} & P_{-2-2} \end{pmatrix}$$

avec :

$$\begin{aligned}
 (I.16) \quad & p_{+2+2} = p_{+0+0} = p_{-0-0} = p_{-2-2} = (\tilde{S}_2 + \tilde{S}_1)(s_2 + s_1)/\alpha^2 K \\
 & p_{+2+0} = p_{+0+2} = p_{-2-0} = p_{-0-2} = (\tilde{S}_2 - \tilde{S}_1)(s_2 + s_1)/\alpha^2 K \\
 & p_{-2+0} = p_{+0-2} = p_{+2-0} = p_{-0+2} = (\tilde{S}_2 + \tilde{S}_1)(s_2 - s_1)/\alpha^2 K \\
 & p_{-2+2} = p_{+2-2} = p_{-0+0} = p_{+0-0} = (\tilde{S}_2 - \tilde{S}_1)(s_2 - s_1)/\alpha^2 K
 \end{aligned}$$

Kuščer obtient alors dans l'équation de transfert matricielle (7) la séparation des variables θ et ϕ en supposant que les différents éléments de la matrice de phase peuvent se développer sous la forme :

$$(I.17) \quad p_{mn}^1(\mu) = \sum_{l=\sup(|m|, |n|)}^{\infty} \beta_{mn}^1 P_{mn}^1(\mu),$$

les coefficients β_{mn}^1 doivent être déterminés, et les fonctions $P_{mn}^1(\mu)$ sont les fonctions généralisées de Legendre, introduites par Gel'fand et Sapiro [15].

Rappelons que :

$$(I.18) \quad P_{mn}^1(\mu) = \frac{(-1)^{l-m}}{2^l(1-m)} \sqrt{\frac{(1-m)!(1+n)!}{(1+m)!(1-n)!}} (1-\mu)^{-\frac{n-m}{2}} (1+\mu)^{-\frac{n+m}{2}} \frac{d^{l-n}}{d\mu^{l-n}} \left[(1-\mu)^{1-m} (1+\mu)^{1+m} \right]$$

On a donc :

$$\begin{aligned}
 (I.19) \quad & P_{+m+n}^1(\mu) = P_{-n-m}^1(\mu) = (-1)^{m-n} P_{+n+m}^1(\mu) \\
 & P_{\pm m \pm 0}^1(\mu) = P_{\pm 0 \pm m}^1(\mu) = P_m^1(\mu) \quad : \text{fonctions associées de Legendre} \\
 & P_{\pm 0 \pm 0}^1(\mu) = P_1(\mu) \quad : \text{polynômes de Legendre.}
 \end{aligned}$$

Toutes ces fonctions sont utilisées ici avec la norme 2 / (2l+1), soit :

$$(I.20) \quad \int_{-1}^{+1} \left[P_{mn}^1(\mu) \right]^2 d\mu = \int_{-1}^{+1} \left[P_m^1(\mu) \right]^2 d\mu = \int_{-1}^{+1} \left[P_1(\mu) \right]^2 d\mu = 2 / (2l+1)$$

Le développement (I.17) est pleinement justifié, les systèmes de polynômes et de fonctions $P_1(\mu)$, $P_m^1(\mu)$ et $P_{mn}^1(\mu)$ étant tous complets pour les fonctions continues à développer sur l'intervalle $[-1,+1]$. Le fait que les fonctions $P_2^1(\mu)$, $P_{+2+2}^1(\mu)$ et $P_{+2-2}^1(\mu)$ s'annulent aux extrémités de l'intervalle pourrait poser des difficultés de sommabilité en ces points. Mais ce problème sera évité puisque ces fonctions interviennent dans les développements de quantités justement nulles aux bornes $\theta = 0$ et π , comme le montrent les expressions (I.16) en remarquant que $S_1(\theta) = S_2(\theta)$ si $\theta = 0$ ou π .

B - CALCUL THEORIQUE DES COEFFICIENTS

Nous cherchons donc ici à déduire de la théorie de Mie les expressions exactes de ces coefficients β_{mn}^1 [16], de façon à pouvoir les calculer numériquement pour une étude ultérieure de l'équation de transfert.

Les relations (I.16) et (I.19) permettent d'établir pour ces coefficients les relations de symétrie suivantes :

$$\begin{aligned}
 \beta_{+2+2}^1 &= \beta_{-2-2}^1 \\
 \beta_{+0+0}^1 &= \beta_{-0-0}^1 \\
 \beta_{+2-2}^1 &= \beta_{-2+2}^1 \\
 \beta_{-0+0}^1 &= \beta_{+0-0}^1 \\
 \beta_{+2+0}^1 &= \beta_{+0+2}^1 = \beta_{-0-2}^1 = \beta_{-2-0}^1 \\
 \beta_{-2+0}^1 &= \beta_{+0-2}^1 = \beta_{-0+2}^1 = \beta_{+2-0}^1
 \end{aligned}
 \tag{I.21}$$

Il ne reste donc que six coefficients à exprimer, et l'on sait que seuls quatre d'entre eux seront linéairement indépendants. On remarquera d'autre part que l'équation de transfert donne, dans le cas qui nous intéresse du régime asymptotique, quatre équations intégral-différentielles dont des combinaisons permettent de revenir aux paramètres de Stokes, de signification physique immédiate. Dans les équations concernant ces paramètres, ce ne sont plus les β_{mn}^1 eux-mêmes qui apparaissent, mais six combinaisons linéaires qu'on notera :

$$\begin{aligned}
 \beta_1 &= \beta_{+0+0}^1 + \beta_{+0-0}^1 & ; & & \delta_1 &= \beta_{+0+0}^1 - \beta_{+0-0}^1 \\
 \text{(I.22)} \quad \gamma_1 &= \beta_{+0+2}^1 + \beta_{+0-2}^1 & ; & & \epsilon_1 &= (\beta_{+0+2}^1 - \beta_{+0-2}^1) i & \quad (i = \sqrt{-1}) \\
 \alpha_1 &= \beta_{+2+2}^1 + \beta_{+2-2}^1 & ; & & \zeta_1 &= \beta_{+2+2}^1 - \beta_{+2-2}^1
 \end{aligned}$$

Ce sont ces coefficients dont nous avons préféré établir les expressions. Ils étaient mieux adaptés au problème particulier envisagé et leur développement se révélait plus aisé. Ceci n'enlève rien à la généralité du travail, puisqu'on déduirait facilement, à partir des coefficients tabulés ici, les coefficients β_{mn}^1 requis pour une étude plus générale.

Si nous comparons maintenant les expressions (I.16), (I.17) et (I.22), nous obtenons :

$$\text{(I.23)} \quad \sum_{l=0}^{\infty} \beta_1 P_1(\mu) = 2 (S_2 \tilde{S}_2 + S_1 \tilde{S}_1) / \alpha^2 K = 2 f^\beta(\mu) / \alpha^2 K$$

$$\text{(I.24)} \quad \sum_{l=2}^{\infty} \gamma_1 P_2^1(\mu) = 2 (S_2 \tilde{S}_2 - S_1 \tilde{S}_1) / \alpha^2 K = 2 f^\gamma(\mu) / \alpha^2 K$$

$$\text{(I.25)} \quad \sum_{l=0}^{\infty} \delta_1 P_1(\mu) = 2 (\tilde{S}_2 S_1 + S_2 \tilde{S}_1) / \alpha^2 K = 2 f^\delta(\mu) / \alpha^2 K$$

$$\text{(I.26)} \quad \sum_{l=2}^{\infty} \epsilon_1 P_2^1(\mu) = 2 i (\tilde{S}_2 S_1 - S_2 \tilde{S}_1) / \alpha^2 K = 2 f^\epsilon(\mu) / \alpha^2 K$$

Ces relations posent directement le problème à résoudre pour les quatre séries de coefficients β_1 , γ_1 , δ_1 et ϵ_1 . On verra plus loin comment

déduire les coefficients α_1 et ζ_1 non indépendants. Nous avons déjà signalé que les coefficients β_1 , qui interviennent seuls lorsqu'on néglige la polarisation, avaient été calculés précédemment par Chu, Clarck et Churchill [12]. Notre méthode étant différente de la leur, les expressions finales obtenues sont dissemblables, mais la comparaison des valeurs numériques de ces β_1 , pour des mêmes valeurs de α et de m , nous a fourni une précieuse vérification numérique.

I - Développements des quantités $f^\beta(\mu)$, $f^\gamma(\mu)$, $f^\delta(\mu)$ et $f^\epsilon(\mu)$ en séries de $P_1(\mu)$.

Rappelons que les séries de Mie (cf. par exemple Van de Hulst [17]) sont le plus souvent données sous la forme :

$$(I.27) \quad S_1(\theta') = i \sum_{n=1}^{\infty} (A_n \Pi_n + B_n T_n)$$

$$(I.28) \quad S_2(\theta') = -i \sum_{n=1}^{\infty} (A_n T_n + B_n \Pi_n)$$

- . l'angle θ' est le supplément de l'angle de diffusion θ ,
- . les quantités complexes A_n et B_n , fonctions de α et m , et largement tabulées pour diverses valeurs de m et α [13], s'expriment à partir de fonctions de Bessel (Voir Appendice I).
- . enfin on a posé, avec $v = \cos \theta'$:

$$\Pi_n = P'_n(v)$$

$$T_n = v P'_n(v) - (1-v^2) P''_n(v)$$

où $P'_n(v)$ et $P''_n(v)$ désignent, et désigneront par la suite, les dérivées première et seconde par rapport à v des polynômes $P_n(v)$.

Développons d'abord en séries de polynômes de Legendre $P_n(v)$ les

quantités $S_1(\theta')$, $S_2(\theta')$ et leurs quantités complexes conjuguées. On utilisera les relations de récurrence classiques :

$$(I.29) \quad (1-v^2) P_n''(v) = 2 v P_n'(v) - n(n+1) P_n(v)$$

$$(I.30) \quad v P_n'(v) = n P_n(v) + P_{n-1}'(v)$$

$$(I.31) \quad P_n'(v) = (2n-1) P_{n-1}(v) + P_{n-2}'(v)$$

et la relation qui s'en déduit :

$$(I.32) \quad P_n'(v) = \sum_{p=0}^{[(n-1)/2]} (2n-4p-1) P_{n-2p-1}(v) ,$$

le symbole $[x]$, utilisé comme borne de sommation, désignant le plus grand entier inférieur à x .

On aura donc :

$$\begin{aligned} \Pi_n &= \sum_{p=0}^{[\frac{n-1}{2}]} (2n-4p-1) P_{n-2p-1}(v) \\ T_n &= n(n+1) P_n(v) - P_n'(v) = n^2 P_n(v) - P_{n-1}'(v) \\ &= n^2 P_n(v) - \sum_{p=0}^{[\frac{n-2}{2}]} (2n-4p-3) P_{n-2p-2}(v) \end{aligned}$$

En substituant dans (I.28), on aura, après regroupement des polynômes de même degré :

$$(I.33) \quad S_2(\theta') = -i \sum_{n=0}^{\infty} P_n(v) [n^2 A_n + (2n+1) \sum_{p=0}^{\infty} (B_{n+2p+1} - A_{n+2p+2})] = -i \sum_{n=0}^{\infty} D_n P_n(v);$$

et

$$(I.34) \quad S_1(\theta') = +i \sum_{n=0}^{\infty} P_n(v) [n^2 B_n + (2n+1) \sum_{p=0}^{\infty} (A_{n+2p+1} - B_{n+2p+2})] = +i \sum_{n=0}^{\infty} C_n P_n(v)$$

.../...

la seconde relation s'obtenant à partir de la première en permutant A_n et B_n et en changeant le signe, pour passer de S_2 à S_1 .

Il reste alors à développer en séries de polynômes $P_n(v)$ les produits $S_i \tilde{S}_j$ qui apparaissent dans les équations (I.23) à (I.26). Aux coefficients près, tous ces produits sont du type :

$$(I.35) \quad Z = \left(\sum_{n=0}^{\infty} X_n P_n(v) \right) \left(\sum_{n=0}^{\infty} Y_n P_n(v) \right).$$

On sera toujours amené à utiliser la décomposition de Neumann :

$$(I.36) \quad P_n(v) P_m(v) = \sum_{r=0}^n P_{m+n-2r}(v) b_{m,n,r} \quad \text{pour } m > n,$$

avec :

$$(I.37) \quad b_{m,n,r} = \frac{2m + 2n - 4r + 1}{2m + 2n - 2r + 1} \cdot \frac{H_{m-r} H_{n-r} H_r}{H_{m+n-r}},$$

où :

$$(I.38) \quad H_s = \frac{(2s)!}{2^s (s!)^2} = 1.3.5 \dots (2s-1) = (2s)!! \quad (\text{factorielle double}).$$

Simplement, le regroupement de la double série produit (I.35) peut s'effectuer d'une infinité de façons. Nous avons choisi de poser, en suivant un travail similaire de Sekera [19] :

$$(I.39) \quad Z = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{p=0}^n L_p P_{n-p}(v) P_{n+p}(v) + M_p P_{n-p}(v) P_{n+p+1}(v)$$

Ce qui donne :

$$(I.40) \quad L_p = \left[X_{n-p} Y_{n+p} + X_{n+p} Y_{n-p} \right] (1 + \delta_{op}) \quad \text{où } \delta_{op} \begin{cases} = +1 & \text{si } p=0 \\ = 0 & \text{si } p \neq 0 \end{cases}$$

$$(I.41) \quad M_p = [X_{n-p} Y_{n+p+1} + X_{n+p+1} Y_{n-p}]$$

Développons alors dans (I.39) les produits $P_i P_j$ suivant (I.36). On aura après simplifications :

$$(I.42) \quad Z = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{p=0}^n \left[L_p \sum_{k=p}^n P_{2k}(\nu) a_{n,k} b_{p,k} + M_p \sum_{k=p}^n P_{2k+1}(\nu) c_{n,k} d_{p,k} \right]$$

où l'on a posé :

$$(I.43) \quad a_{n,k} = \frac{4k+1}{2n+2k+1} \quad ; \quad b_{p,k} = \frac{H_{k+p} H_{k-p} H_{n-k}}{H_{n+k}}$$

$$(I.44) \quad c_{n,k} = \frac{4k+3}{2n+2k+3} \quad ; \quad d_{p,k} = \frac{H_{k+p+1} H_{k-p} H_{n-k}}{H_{k+n+1}}$$

Soit enfin, après une permutation convenable des ordres de sommation dans la série triple, le développement cherché :

$$(I.45) \quad Z = \sum_{k=0}^{\infty} p_k P_k(\nu) ,$$

avec :

$$(I.46) \quad p_{2k} = \sum_{n=k}^{\infty} \sum_{p=0}^k a_{n,k} b_{p,k} L_p$$

$$(I.47) \quad p_{2k+1} = \sum_{n=k}^{\infty} \sum_{p=0}^k c_{n,k} d_{p,k} M_p .$$

Il nous reste à repasser à l'angle de diffusion classique θ (pour cela il suffit de changer le signe des termes impairs), et à remplacer par leur valeur les coefficients X_n et Y_n . Pour les diverses fonctions $f^x(\mu)$, où $x = \beta, \gamma, \delta$ et ϵ , on obtient les relations cherchées avec :

$$(I.48) \quad f^X(\mu) = \sum_{k=0}^{\infty} P_k^X P_k(\mu)$$

$$(I.49) \quad P_{2k}^X = \sum_{n=k}^{\infty} \frac{(4k+1)}{(2n+2k+1)} \frac{(2n-2k)!!}{(2n+2k)!!} \sum_{p=0}^k (2p+2k)!! (2k-2p)!! (1+\delta_{op}) W_{pn}^X$$

$$(I.50) \quad P_{2k+1}^X = \sum_{n=k}^{\infty} \frac{(4k+3)}{(2n+2k+3)} \frac{(2n-2k)!!}{(2n+2k+2)!!} \sum_{p=0}^k (2k+2p+1)!! (2k-2p)!! V_{pn}^X$$

où, suivant l'indice x, on a :

$$(I.51) \quad W_{pn}^{\beta} = +2 [R(D_{n-p}) \cdot R(D_{n+p}) + I(D_{n-p}) \cdot I(D_{n+p}) + R(C_{n-p}) \cdot R(C_{n+p}) + I(C_{n-p}) \cdot I(C_{n+p})]$$

$$(I.52) \quad W_{pn}^{\gamma} = +2 [R(D_{n-p}) \cdot R(D_{n+p}) + I(D_{n-p}) \cdot I(D_{n+p}) - R(C_{n-p}) \cdot R(C_{n+p}) - I(C_{n-p}) \cdot I(C_{n+p})]$$

$$(I.53) \quad W_{pn}^{\delta} = -2 [R(C_{n-p}) \cdot R(D_{n+p}) + I(C_{n-p}) \cdot I(D_{n+p}) + R(C_{n+p}) \cdot R(D_{n-p}) + I(C_{n+p}) \cdot I(D_{n-p})]$$

$$(I.54) \quad W_{pn}^{\epsilon} = +2 [I(C_{n-p}) \cdot R(D_{n+p}) + I(C_{n+p}) \cdot R(D_{n-p}) - R(C_{n-p}) \cdot I(D_{n+p}) - R(C_{n+p}) \cdot I(D_{n-p})]$$

Les V_{pn}^X se déduisent des W_{pn}^X correspondant en changeant le signe devant le crochet et en remplaçant les indices (n+p) par (n+p+1), les indices (n-p) restant inchangés. Enfin, dans ces expressions, R et I désignent les parties réelle et imaginaire des quantités complexes C_k et D_k , définies par (I.33) et (I.34) en fonction des coefficients A_n et B_n de Mie, soit :

$$(I.55) \quad C_k = k^2 B_k + (2k+1) \sum_{p=0}^{\infty} (A_{k+2p+1} - B_{k+2p+2})$$

$$(I.56) \quad D_k = k^2 A_k + (2k+1) \sum_{p=0}^{\infty} (B_{k+2p+1} - A_{k+2p+2})$$

Les formules (I.48) à (I.56) résolvent donc entièrement le problème du développement pour les coefficients β_1 et δ_1 introduits dans (I.23) et (I.25). Pour expliciter les autres coefficients, il reste à passer des polynômes $P_1(\mu)$ aux fonctions $P_2^1(\mu)$ ou $P_{+2+2}^1(\mu)$.

II - Développements de $P_1(\mu)$ en séries de $P_2^1(\mu)$ et $P_{+2+2}^1(\mu)$

Nous établirons d'abord les développements inverses, plus simples, de $P_2^1(\mu)$ et $P_{+2+2}^1(\mu)$ en polynômes $P_1(\mu)$, et reviendrons ensuite aux développements cherchés à l'aide des propriétés d'orthonormalité de ces fonctions et polynômes.

1) Cas de $P_2^1(\mu)$

Puisque par définition :

$$(I.57) \quad P_2^1(\mu) = \sqrt{\frac{(1-2)!}{(1+2)!}} (1-\mu^2) P_1^1(\mu)$$

on a facilement, comme précédemment pour T_n , le développement :

$$(I.58) \quad P_2^1(\mu) = \sqrt{\frac{(1-2)!}{(1+2)!}} \left[-1(1+1) P_1(\mu) + \sum_{q=1}^{[1/2]} (41-8q+2) P_{1-2q}(\mu) \right] .$$

Ecrivons d'autre part :

$$(I.59) \quad P_m(\mu) = \sum_{l=2}^{\infty} \phi_l^{(m)} P_2^1(\mu) .$$

Les relations d'orthogonalité donneront :

- par (I.59) :

$$\int_{-1}^{+1} P_m(\mu) P_2^1(\mu) d\mu = \int_{-1}^{+1} \sum_{p=2}^{\infty} \phi_p^{(m)} P_p(\mu) P_2^1(\mu) d\mu = \frac{2}{21+1} \phi_1^{(m)}$$

- par (I.58) :

$$\int_{-1}^{+1} P_2^1(\mu) P_m(\mu) d\mu = 0 \quad \text{si } m > 1 \text{ ou } m \neq 1-2q$$

$$" \quad = -\frac{2}{2l+1} \sqrt{\frac{1(1-1)}{(1+1)(1+2)}} \quad \text{si } m = 1$$

$$" \quad = 4 \sqrt{\frac{(1-2)!}{(1+2)!}} \quad \text{si } m = 1-2q$$

D'où, en substituant dans (I.59) les valeurs de $\phi_1^{(m)}$ ainsi obtenues, le développement :

$$(I.60) \quad P_1(\mu) = -\sqrt{\frac{1(1-1)}{(1+1)(1+2)}} P_2^1(\mu) + \sum_{p=1}^{\infty} (4l+8p+2) \sqrt{\frac{(1+2p-2)!}{(1+2p+2)!}} P_2^{1+2p}(\mu) .$$

2) Cas de $P_{2-2}^1(\mu)$

On a vu (équation (I.18)) que :

$$(I.61) \quad P_{+2-2}^1(\mu) = \frac{(1-\mu^2)}{2^1(1+2)!} \frac{d^{1+2}}{d\mu^{1+2}} \left[(\mu+1)^{1+2}(\mu-1)^{1-2} \right] ,$$

et :

$$P_{+2+2}^1(\mu) = \frac{(1+\mu)^2}{2^1(1+2)!} \frac{d^{1+2}}{d\mu^{1+2}} \left[(\mu-1)^{1+2}(\mu+1)^{1-2} \right] ;$$

on a donc :

$$(I.62) \quad P_{+2+2}^1(\mu) = P_{+2-2}^1(-\mu)$$

et on se contentera de développer $P_{+2-2}^1(\mu)$ par exemple. Ramenons-nous d'abord

à un développement en série de fonctions associées $P_2^1(\mu)$ et de leurs dérivées; en dérivant deux fois par rapport à μ la relation de Rodrigues :

$$P_2^1(\mu) = \frac{2^{-1}}{\sqrt{(1+2)!(1-2)!}} \frac{(1-\mu)}{(1+\mu)} \frac{d}{d\mu} \left[(\mu+1)^{1+2} (\mu-1)^{1-2} \right],$$

on aura l'expression de la dérivée $(1+2)^{\text{ième}}$ dans (I.61); et avec la relation de récurrence :

$$(1-\mu^2) P_2^1(\mu) = 2\mu P_2^1(\mu) - \left[1(1+1) - \frac{4}{1-\mu^2} P_2^1(\mu) \right]$$

on établit facilement :

$$(I.63) \quad P_{+2-2}^1(\mu) = \sqrt{\frac{(1-2)!}{(1+2)!}} \left[(4+2\mu) P_2^1(\mu) + \left\{ \frac{4(2+\mu)}{(1-\mu^2)} - 1(1+1) \right\} P_2^1(\mu) \right].$$

Passons ensuite à une expression en série de polynômes de Legendre et de leurs dérivées. Ici encore, avec les relations de récurrence (I.29) à (I.31), ou leurs dérivées, et la définition (I.57) de $P_2^1(\mu)$, on mettra facilement l'équation (I.63) sous la forme :

$$(I.64) \quad P_{+2-2}^1(\mu) = \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \left[1(1+1)(1^2+1+4) P_1(\mu) - 4(1^2+1-2) P_1'(\mu) \right. \\ \left. + 4(1^2+1+1)\mu P_1'(\mu) + 12 P_1''(\mu) + 12\mu P_1''(\mu) \right].$$

Il reste à développer $P_1'(\mu)$, $P_1''(\mu)$, $\mu P_1'(\mu)$ et $\mu P_1''(\mu)$ en polynômes de Legendre. On a déjà par (I.32) :

$$(I.65) \quad P_1'(\mu) = \sum_{p=0}^{[(1-1)/2]} (2l-4p-1) P_{1-2p-1}(\mu).$$

Avec la relation de récurrence (I.30), (I.65) donne :

$$(I.66) \quad \mu P_1'(\mu) = 1 P_1(\mu) + \sum_{p=0}^{[(1-2)/2]} (21-4p-3) P_{1-2p-2}(\mu) .$$

En dérivant (I.65) et en y remplaçant les dérivées par leurs développements, on a, après réarrangement :

$$(I.67) \quad P_1''(\mu) = \sum_{p=0}^{[(1-1)/2]} (21-4p-1) P_{1-2p-1}'(\mu) = \sum_{p=1}^{[1/2]} p(21-4p+1)(21-2p+1)P_{1-2p}(\mu)$$

Enfin, en dérivant (I.66), il vient après réarrangement :

$$(I.68) \quad \mu P_1''(\mu) = \sum_{p=0}^{[(1-1)/2]} (21-4p-1) [(1-1) + p(21-2p-1)] P_{1-2p-1}(\mu) .$$

Substituons alors dans (I.64) les relations (I.65) à (I.68); après réarrangements on obtient :

$$(I.69) \quad P_{+2-2}^1(\mu) = \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \left[\underset{(1-1)}{1^2 (1-1)^2} P_1(\mu) - \sum_{j=0} 2 (2j+1) [3j (j+1) - 1 (1+1) + 2] P_j(\mu) \right] .$$

Et avec la relation de parité (I.62) :

$$(I.70) \quad P_{+2+2}^1(\mu) = \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \left[\underset{(1-1)}{1^2 (1-1)^2} P_1(\mu) - (-1)^{1-j} \sum_{j=0} 2 (2j+1) [3j (j+1) - 1 (1+1) + 2] P_j(\mu) \right]$$

On passera aux développements inverses en posant :

$$(I.71) \quad P_m(\mu) = \sum_{p=2}^{\infty} P_{+2+2}^p(\mu) \chi_p^{(m)} .$$

Comme préalablement, en multipliant (I.71) par $P_{+2+2}^1(\mu)$ et (I.70) par $P_m(\mu)$, puis en intégrant sur $[-1, +1]$ les deux membres de ces quantités, on obtient les valeurs de $\chi_p^{(m)}$, ce qui donne :

$$(I.72) \quad P_m(\mu) = \frac{m(m-1)}{(m+1)(m+2)} P_{+2+2}^m(\mu) - \sum_{l=(m+1)}^{\infty} P_{+2+2}^l(\mu) (-1)^{l-m} 2(2l+1) \frac{(l-2)!}{(l+2)!} \left[3m(m+1) - 1(1+1) + 2 \right] ,$$

et de même :

$$(I.73) \quad P_m(\mu) = \frac{m(m-1)}{(m+1)(m+2)} P_{+2-2}^m(\mu) - \sum_{l=(m+1)}^{\infty} P_{+2+2}^l(\mu) \cdot 2(2l+1) \frac{(l-2)!}{(l+2)!} \left[3m(m+1) - 1(1+1) + 2 \right] .$$

III - Expressions finales des coefficients

Considérant comme donnés les coefficients A_n et B_n des séries de Mie, on calculera les C_k et D_k , par (I.55) et (I.56), puis les p_{2k}^x et p_{2k+1}^x à l'aide des relations (I.49) à (I.54). On aura alors immédiatement :

$$(I.74) \quad \beta_1 = 2\alpha^{-2} K^{-1} p_1^\beta$$

$$(I.75) \quad \delta_1 = 2\alpha^{-2} K^{-1} p_1^\delta$$

Pour calculer γ_1 et ϵ_1 à partir de p_1^γ et p_1^ϵ , on substitue dans les

expressions de $f^{\gamma}(\mu)$ et $f^{\epsilon}(\mu)$, le développement (I.60) de $P_1(\mu)$ en $P_2^1(\mu)$. Après réarrangement, on obtient, en identifiant aux équations (I.24) et (I.26) :

$$(I.76) \quad \gamma_1 = 2 \alpha^{-2} K^{-1} \left[-\sqrt{\frac{1(1-1)}{(1+1)(1+2)}} P_1^{\gamma} + (4l+2) \sqrt{\frac{(1-2)!}{(1+2)!}} \sum_{k=0}^{[(1-2)/2]} P_{1-2k}^{\gamma} \right]$$

$$(I.77) \quad \epsilon_1 = 2 \alpha^{-2} K^{-1} \left[-\sqrt{\frac{1(1-1)}{(1+1)(1+2)}} P_1^{\epsilon} + (4l+2) \sqrt{\frac{(1-2)!}{(1+2)!}} \sum_{k=0}^{[(1-2)/2]} P_{1-2k}^{\epsilon} \right]$$

Il reste enfin à calculer les coefficients α_1 et ζ_1 , qui dépendent linéairement des précédents. Les relations de définition (I.16) et (I.17) donnent :

$$\sum_{l=2}^{\infty} \beta_{+2+2}^1 P_{+2+2}^1(\mu) = \alpha^{-2} K^{-1} (S_1 + S_2)(\tilde{S}_1 + \tilde{S}_2)$$

$$\sum_{l=2}^{\infty} \beta_{+2-2}^1 P_{+2-2}^1(\mu) = \alpha^{-2} K^{-1} (S_1 + S_2)(\tilde{S}_1 - \tilde{S}_2)$$

Si on développe les seconds membres et qu'on les compare aux expressions (I.23) et (I.25) des β_1 et δ_1 , on voit que :

$$2 \sum_{l=2}^{\infty} \beta_{+2+2}^1 P_{+2+2}^1(\mu) = \sum_{l=0}^{\infty} (\beta_1 + \delta_1) P_1(\mu)$$

$$2 \sum_{l=2}^{\infty} \beta_{+2-2}^1 P_{+2-2}^1(\mu) = \sum_{l=0}^{\infty} (\beta_1 - \delta_1) P_1(\mu)$$

Substituons dans les seconds membres les développements de $P_1(\mu)$, respectivement en $P_{+2+2}^1(\mu)$ et $P_{+2-2}^1(\mu)$; en identifiant les termes du même ordre, on obtient sans difficulté les expressions de β_{+2+2}^1 et β_{+2-2}^1 en fonction des β_1 et δ_1 . Finalement, par somme et différence de ces coefficients suivant

(I.22), on aura :

$$(I.78) \quad \alpha_1 = \frac{1(1-1)}{(1+1)(1+2)} \beta_1 - 4(21+1) \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \sum_{j=1}^{[1/2]} [(1-1)^2 - 3(2j-1)(1-j)] \beta_{1-2j} \\ + 4(21+1) \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \sum_{j=0}^{[(1-1)/2]} [(1-1)^2 - 3j(21-2j-1)] \delta_{1-2j-1}$$

et :

$$(I.79) \quad \zeta_1 = \frac{1(1-1)}{(1+1)(1+2)} \delta_1 - 4(21+1) \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \sum_{j=1}^{[1/2]} [(1-1)^2 - 3(2j-1)(1-j)] \delta_{1-2j} \\ + 4(21+1) \frac{(1-2)!}{(1+2)!} \sum_{j=0}^{[(1-1)/2]} [(1-1)^2 - 3j(21-2j-1)] \beta_{1-2j-1}$$

Les équations (I.49) à (I.56) et (I.74) à (I.79) solutionnent le problème.

C - RESULTATS NUMERIQUES

I - Vérification des formules et résumé des résultats

Le calcul à la main de ces coefficients est évidemment inabordable dès qu'on désire le répéter pour un assez grand nombre de valeurs du paramè-

tre α , ou tout simplement lorsque α devient important; c'est le Laboratoire de Calcul Numérique de Lille qui a réalisé la programmation des formules précédentes et en a assumé l'exploitation. D'autre part, bien que les coefficients A_n et B_n des séries de Mie soient déjà largement tabulés, il n'était pas possible d'utiliser ces données comme base des calculs, en les introduisant dans les expressions (I.55) et (I.56) des coefficients C_k et D_k ; outre que des erreurs de reproduction auraient été quasi-inévitables et que le temps de frappe d'un aussi grand nombre de données devient vite plus long que leur temps de calcul, les pas sur α et m rencontrés dans ces tables étaient trop larges pour certaines de nos utilisations. Le programme de calcul a donc été établi en reprenant dès le début le calcul des coefficients A_n et B_n . Enfin, pour une plus grande généralité, on a envisagé le cas de particules absorbantes et considéré leur indice m' comme éventuellement complexe, avec $m' = m + iy$. Dans ce cas, des relations de récurrence permettant de calculer les coefficients A_n et B_n , et par suite les coefficients efficaces d'extinction totale et de diffusion pure, ont déjà été établies et exploitées [20], mais n'ayant pu prendre connaissance de ces publications, nous avons refait le calcul; on trouvera en Appendice les formules de récurrence que nous avons obtenues et utilisées ainsi que les expressions des coefficients d'extinction et de diffusion.

On a vérifié l'exactitude de ces formules en les utilisant pour calculer à la main les A_n et B_n et les coefficients efficaces, dans le cas d'une particule de paramètre $\alpha = 1,3$ et d'indice $m' = 3,41 - 1,94i$, et en comparant nos résultats à ceux cités par Van de Hulst ([17], Tableau 28, page 277), extraits des tables de Lowan.

On a enfin vérifié les formules donnant les $\alpha_1, \beta_1, \dots, \zeta_1$. Dans le cas simple $\alpha = 2$, $m = 1,20$ et $y = 0$, on a calculé à la main les valeurs numériques des A_n et B_n , puis celles des α_1, β_1, \dots et ζ_1 par les relations (I.48) à (I.56) et (I.74) à (I.79). Ces valeurs étant reportées dans les expressions (I.23) à (I.26), on en déduit pour différentes valeurs de θ les valeurs des premiers membres (les polynômes et fonctions $P_1(\mu)$ et $P_2^1(\mu)$ étant calculés par récurrence). Les Tables de Asley-Cobb [21] donnent par ailleurs les valeurs des quantités complexes $S_1(\theta)$ et $S_2(\theta)$ en fonction de θ pour ce même cas $\alpha = 2$ et $m = 1,20$. On en déduit les valeurs numériques des seconds

membres des expressions (I.23) à (I.26). A la précision des calculs, les résultats sont en parfait accord.

Le programme de calcul, ainsi testé, a été principalement exploité pour les valeurs suivantes de α et m (On note entre parenthèses les pas (p) sur les variables) :

1°) $m = 1,33$; $y = 0$; $\alpha = 0,1 \cdot (0,1) \cdot 20$ et $\alpha = 20 \cdot (1) \cdot 100$; cas des gouttes d'eau éclairées dans le spectre visible.

2°) $m = 1,20$; $y = 0$; $\alpha = 0,1 \cdot (0,1) \cdot 20$; cas des particules sphériques de latex ou de polystyrène en suspension dans l'eau, et également éclairées dans le spectre visible.

3°) $m = 1,212$; $y = -0,06$; $\alpha = 1 \cdot (0,1) \cdot 5$ et $\alpha = 5 \cdot (1) \cdot 10$; cas des gouttes d'eau sous un rayonnement d'environ 10μ (fenêtre infra-rouge atmosphérique); cette dernière série de coefficients intéressant d'autres travaux menés au Laboratoire.

En outre, pour quelques valeurs de α correspondant à des particules monodispersées de latex, dont nous reparlerons dans la troisième Partie, on a étudié les variations des coefficients avec celles des parties réelle et imaginaire de l'indice. On a pour cela tabulé les coefficients dans les cas suivants :

1°) $m = 1,20$;
 $y = -10^{-4} \cdot -5 \cdot 10^{-4} \cdot -10^{-3} \cdot -5 \cdot 10^{-3} \cdot -10^{-2}$;
 $\alpha = 0,67. 0,75. 2. 2,2. 4,2. 4,6. 6,1. 6,7.$

2°) $m = 1,14. (0,02). 1,26$;
 $y = 0$;
 $\alpha = 1,8. 1,95. 2,1. 3,9. 4,3. 5,8. 6,1. 6,4.$

Remarquons enfin que l'on a pu vérifier sur ces résultats :

- que pour $m = 1,33$; $y = 0$; $\alpha = 1 \cdot (1) \cdot 6$; $6 \cdot (2) \cdot 10$; $10 \cdot (5) \cdot 30$. les coefficients β_1 sont en parfait accord avec ceux publiés par Clark, Chu et Churchill [12].

- et qu'à la limite, si $\alpha \rightarrow 0$, les divers coefficients tendent bien vers les valeurs théoriques correspondant à la diffusion Rayleigh. Dans ce cas, en effet, les développements (I.23) à (I.26) sont tous limités à l'ordre 2 avec :

$$\begin{aligned} \beta_0 &= 1 & \delta_0 &= 0 \\ \beta_1 &= 0 & \delta_1 &= 3/2 \\ \beta_2 &= 1/2 & \delta_2 &= 0 & \alpha_2 &= 3 & \gamma_2 &= -\sqrt{3/2} & \epsilon_2 &= 0 & \zeta_2 &= 0 \end{aligned}$$

II - Allure générale des coefficients

En fin de chapitre, on trouvera quelques tableaux de résultats rassemblés à titre indicatif. De façon générale, tous les développements convergent comme les séries de Mie, soit pour environ $2\alpha + 2$ termes. Ces coefficients convergent en effet comme les W_{pn}^x et V_{pn}^x , donc comme les coefficients C_k et D_k , eux-mêmes équivalents aux A_k et B_k des séries de Mie. Pour donner une idée de la façon dont évoluent ces coefficients, on a en outre tracé quelques courbes représentatives.

1) Coefficients β_1

Ce sont pour nous les coefficients les plus intéressants. Ils suffisent en effet pour résoudre l'équation (11) sans polarisation, qui donne une excellente approximation du phénomène réel dans le cas du régime asymptotique, comme on le verra. D'autre part, dans une étude en diffusion primaire, ces β_1 servent à calculer exactement la fonction de phase, donc l'intensité totale diffusée, qui est la caractéristique la plus facilement observable.

a) Variation avec α

On a représenté figure (I.2) et figure (I.3), respectivement pour

les valeurs réelles 1,33 et 1,20 de l'indice m , les variations des premiers coefficients β_1 pour α allant de 0 à 20. La figure (I.4) prolonge jusqu'à $\alpha = 100$ les courbes de quelques-uns de ces coefficients, pour $m = 1,33$; le pas étant plus large sur cette dernière figure, on n'a pas reproduit les légères oscillations qui se superposent aux oscillations d'ensemble, d'amplitude et de périodicité beaucoup plus grandes. Ces légères oscillations apparaissent d'ailleurs d'autant moins marquées que l'indice est plus voisin de 1. On a par ailleurs porté sur ces réseaux (courbes en pointillés), à une échelle différente, les variations de la section efficace de diffusion K avec α . On a bien des développements de plus en plus longs, au fur et à mesure que α croît, mais on constate que les coefficients tendent à se stabiliser vers une valeur asymptotique, et que leurs oscillations d'ensemble reproduisent très sensiblement celles du coefficient K . La première remarque montre que pour des ensembles de particules, de dimensions grandes devant la longueur d'onde et présentant une granulométrie assez dispersée, on aura une représentation valable de l'indicatrice de diffusion en prenant simplement les valeurs moyennes des coefficients, tout-au-moins pour les premiers; et ces coefficients seront donc, jusqu'à un ordre élevé, indépendants des dimensions exactes des particules. La seconde constatation est à rapprocher du fait que les variations du coefficient K sont très analogues, pour des indices différents mais réels, lorsqu'on les étudie en fonction de la variable $(m-1)\alpha$ (cf. Van de Hulst [17]). Il suffirait donc probablement de tabuler les coefficients β_1 pour des pas assez larges de l'indice m ; la détermination de ces coefficients pour un indice donné se faisant alors par interpolation à partir des tables, à $(m-1)\alpha = c^{st}$, plutôt qu'à $\alpha = c^{st}$.

b) Variation avec l

Pour des valeurs élevées de α , la longueur des développements en polynômes de Legendre rend très lourde la résolution de l'équation de transfert; aussi certains auteurs cherchent-ils à substituer à cette représentation de la fonction de phase des fonctions analytiques approchées, mais se prêtant mieux au calcul. En particulier dans un travail récent, Van de Hulst et Irvine [22] prennent pour $p(\theta)$ une fonction approchée de forme elliptique, donnée par le second membre de (I.79), en se basant sur le développement :

$$(I.79) \quad \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) h^l P_l(\mu) = \frac{1-h^2}{(1-2\mu h+h^2)^{3/2}}$$

qu'on déduit facilement, par dérivation, de la fonction génératrice des polynômes de Legendre. Les auteurs fixent alors le coefficient h ($h < 1$) en lui donnant la valeur :

$$(I.80) \quad h = \frac{1}{2} \int_{-1}^{+1} p(\mu) \mu \cdot d\mu = \frac{\beta_1}{3}$$

ce qui revient à prendre, dans le développement approché (I.79), la valeur exacte β_1 pour le premier coefficient, et, pour les autres, la valeur approchée $(2l+1)h^l$. Ce choix est évidemment logique, puisque la meilleure approximation en moyenne quadratique de la fonction de phase réelle, par un développement en polynômes $P_l(\mu)$, est donnée, à tout ordre l , par les coefficients exacts β_l . Mais pour voir dans quelle mesure une telle détermination des coefficients est susceptible de se rapprocher des coefficients réels, on a tracé sur la figure (I.5), dans le cas de l'indice 1,33 et pour quelques valeurs élevées de α , les valeurs des coefficients β_l , en fonction de l'ordre l . Les valeurs de α ont été choisies à l'aide de la figure (I.3) de façon à correspondre, soit à un maximum ($\alpha = 35, 45, 55$ et 64), soit à un minimum ($\alpha = 40, 59$ et 78) des oscillations des coefficients. On constate que, dans toute cette zone de dimensions, les développements des fonctions de phase de tout milieu, obtenus par des moyennes de ces courbes, seront beaucoup plus longs que le développement (I.79), qui ne variera pas, β_1 étant sensiblement constant quel que soit α , et dont la courbe en pointillés (a), sur la même figure, donne l'allure. En supposant donc que des fonctions de phase du type (I.79) permettent une résolution rentable de l'équation de transfert, il serait sans doute souhaitable de se référer aux développements exacts pour mieux ajuster le paramètre h , afin que l'indicatrice approchée reste raisonnablement voisine de l'indicatrice réelle. A titre indicatif, on a porté sur la figure (I.6), pour $\alpha = 45$ (ce qui constitue un cas moyen assez représentatif des développements rencontrés ici) les quantités $\log \frac{\beta_l}{(2l+1)}$ en fonction de l (courbe A). La droite (B) représentant $-1.\log(-1/h)$, tracée sur la même figure, donne l'allure du développement approché (I.79); on voit donc que l'ap-

proximation reste bonne jusqu'à $l = 4$ ou 5 environ, mais devient beaucoup trop faible au-delà. En supposant que cela soit possible, sans que la méthode de calcul perde tout intérêt, il semble qu'on pourrait, en se basant sur la courbe exacte, approcher assez bien le développement cherché par une expression de la forme :

$$(I.81) \quad p(\theta) = k_0 P_0(\theta) + k_1 P_1(\theta) + \dots + k_5 P_5(\theta) + \sum_{l=0} k h^{2l+1} P_l(\theta)$$

où la constante h serait déterminée à partir de la pente de la droite (C), sur la figure (I.6), et les constantes k, k_0, \dots, k_5 ajustées de façon à obtenir :

$$k_i + (2i+1)k h^i = \beta_i \quad (i = 1 \text{ à } 5 \text{ et } \beta_i \text{ exact})$$

ce qui permettrait de remplacer le développement réel par un développement très court complété par une fonction du type (I.79); ceci n'étant évidemment intéressant que si un développement du type (I.81) est également susceptible de donner une résolution rentable de l'équation de transfert.

c) Variation avec y

On reparlera dans la troisième Partie de l'influence de l'absorption sur le diagramme de diffusion, mais on peut noter ici qu'elle apparaît comme extrêmement faible, et que les β_1 varient au plus de 2 ou 3 % lorsque y passe de 0 à 10^{-2} (soit une variation énorme de la transmission du milieu).

2) Coefficients γ_1 et α_1

On verra dans la seconde Partie que ces coefficients permettent, avec les β_1 , la détermination complète de la luminance diffuse polarisée, en grande profondeur. De plus, dans des mesures de diffusion primaire, les coefficients γ_1 donnent la valeur de la composante polarisée rectilignement. On a tracé, figure (I.7) pour l'indice 1,33, et figure (I.8) pour l'indice 1,20 les variations de quelques-uns des coefficients γ_1 en fonction de α . Pour α

tendant vers 0, le coefficient γ_2 tend vers la valeur $-\sqrt{3/2}$, quel que soit l'indice, et sort des limites des réseaux. Jusque $\alpha = 4$ ou 5, suivant l'indice, les allures des coefficients sont très régulières, mais au-delà ils présentent des oscillations rapides, dont les amplitudes croissent avec m et avec l'ordre des coefficients. On retrouve donc au niveau des γ_1 les très vives variations rencontrées au niveau des séries de Mie dans les études de polarisation; toutefois, pour des produits polydispersés, on aurait à considérer des valeurs moyennes de ces courbes, qui semblent au contraire assez stables. Quant aux coefficients α_1 , ils sont très vite sensiblement égaux aux coefficients β_1 , ϵ_1 et ζ_1 , comme le montre la figure (I.9), et n'en diffèrent que pour les faibles ordres ou les petites valeurs de α .

3) Coefficients δ_1 , ϵ_1 et ζ_1

Ces dernières séries de coefficients ne présentent pas d'intérêt pour l'étude du régime asymptotique. Ils n'interviendraient, en diffusion multiple, que si l'on étudiait la luminance diffuse polarisée au voisinage de la surface ou du fond de la couche; et, en diffusion primaire, que si l'on éclairait le volume diffusant par de la lumière polarisée elliptiquement. On a porté sur la figure (I.9), pour $m = 1,20$ et $\alpha = 20$, les quatre séries de coefficients β_1 , δ_1 , α_1 et ζ_1 en fonction de l'ordre l . On voit qu'au-dessus de $l = 10$ ou 12 tous ces coefficients sont sensiblement confondus, ce qui laisse d'ailleurs envisager d'éventuelles simplifications dans une étude générale. L'équivalence des coefficients β_1 et δ_1 , pour α assez grand, est normale; ils servent en effet à développer en polynômes $P_1(\mu)$ les quantités $(S_2\tilde{S}_1 + \tilde{S}_2S_1)$ et $(S_2\tilde{S}_2 + S_1\tilde{S}_1)$ qui seront voisines pour des grosses particules, la polarisation devenant faible. Quant aux coefficients α_1 et ζ_1 , les relations (I.78) et (I.79) montrent que, si l est grand, le terme d'ordre l tend vers β_1 ou δ_1 , le terme sous le signe Σ tendant vers 0 par $(1-2)! / (1+2)!$; ou, si l'on prévère, pour l grand, les fonctions $P_{+2+2}^1(\mu)$ tendent vers les polynômes $P_1(\mu)$, comme le montrent les relations (I.69) et (I.70). Notons enfin que les coefficients ϵ_1 , dont on n'a donné aucune courbe représentative du fait de leur inutilisé dans le présent travail, sont de l'ordre de grandeur des coefficients γ_1 , mais en restent assez éloignés avec des variations indépendantes (cf. tableaux suivants).

TABLEAU I

$m = 1,20$ $\gamma = 0$

$\alpha = 1$ $K_{ext} = K_{diff} = 0,03405$

| 1 | β_1 | δ_1 | c_1 | ζ_1 | γ_1 | ϵ_1 |
|---|-----------|------------|---------|-----------|------------|--------------|
| 0 | 1,00000 | 0,23311 | | | | |
| 1 | 0,52847 | 1,52526 | | | | |
| 2 | 0,55734 | 0,41202 | 3,03061 | 0,90092 | -1,19557 | 0,00219 |
| 3 | 0,12055 | 0,00055 | 0,39304 | 0,07837 | -0,21197 | 0,00004 |
| 4 | 0,01155 | 0,00251 | 0,02866 | 0,00402 | -0,01798 | 0,00000 |
| 5 | 0,00063 | 0,00009 | 0,00132 | 0,00013 | -0,00091 | 0,00000 |
| 6 | 0,00002 | 0,00000 | 0,00004 | 0,00000 | -0,00000 | 0,00000 |

$\alpha = 2$ $K_{ext} = K_{diff} = 0,24093$

| | | | | | | |
|---|---------|---------|----------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,85397 | | | | |
| 1 | 1,08400 | 1,94902 | | | | |
| 2 | 1,50811 | 1,65497 | 3,754287 | 3,40243 | -0,67231 | -0,05295 |
| 3 | 0,70059 | 0,77037 | 1,64929 | 1,38193 | -0,63555 | -0,04747 |
| 4 | 0,23527 | 0,10462 | 0,51755 | 0,31356 | -0,27865 | -0,00872 |
| 5 | 0,05137 | 0,03047 | 0,10228 | 0,04543 | -0,06491 | -0,00083 |
| 6 | 0,00748 | 0,00326 | 0,01362 | 0,00459 | -0,00950 | -0,00005 |
| 7 | 0,00077 | 0,00026 | 0,00130 | 0,00034 | -0,00097 | -0,00000 |
| 8 | 0,00006 | 0,00002 | 0,00009 | 0,00002 | -0,00007 | -0,00000 |

$\alpha = 3$ $K_{ext} = K_{diff} = 0,65199$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,93995 | | | | |
| 1 | 2,35789 | 2,41974 | | | | |
| 2 | 2,76628 | 2,72082 | 4,11416 | 3,98497 | -0,17679 | -0,04237 |
| 3 | 2,20146 | 2,20084 | 3,20361 | 3,20466 | -0,24743 | -0,19333 |
| 4 | 1,24521 | 1,30119 | 1,92700 | 1,93301 | -0,39267 | -0,14126 |
| 5 | 0,51226 | 0,53269 | 0,82990 | 0,77158 | -0,31746 | -0,05915 |
| 6 | 0,16114 | 0,17041 | 0,26297 | 0,20227 | -0,13981 | -0,01221 |
| 7 | 0,03785 | 0,02774 | 0,06059 | 0,03746 | -0,03826 | -0,00156 |
| 8 | 0,00671 | 0,00597 | 0,01035 | 0,00520 | -0,00726 | -0,00014 |
| 9 | 0,00092 | 0,00044 | 0,00137 | 0,00057 | -0,00103 | -0,00001 |
| 10 | 0,00010 | 0,00004 | 0,00015 | 0,00005 | -0,00011 | -0,00000 |
| 11 | 0,00001 | 0,00000 | 0,00001 | 0,00000 | -0,00001 | -0,00000 |

BUS
LINK

$\alpha = 5$ $K_{\text{ext}} = K_{\text{diff}} = 1,76997$

| l | β_l | δ_l | α_l | ζ_l | γ_l | ϵ_l |
|----|-----------|------------|------------|-----------|------------|--------------|
| 0 | 1,00000 | 0,98253 | | | | |
| 1 | 2,68019 | 2,69173 | | | | |
| 2 | 3,80784 | 3,79647 | 4,54442 | 4,50379 | -0,04581 | -0,00318 |
| 3 | 4,29633 | 4,30436 | 4,93673 | 4,93477 | -0,01711 | -0,06351 |
| 4 | 4,27487 | 4,21961 | 4,35283 | 4,83071 | -0,03613 | -0,11088 |
| 5 | 3,69191 | 3,72734 | 4,22377 | 4,24285 | -0,04175 | -0,16209 |
| 6 | 2,87674 | 2,85522 | 3,34765 | 3,30494 | -0,03843 | -0,20141 |
| 7 | 1,88448 | 1,88917 | 2,23259 | 2,23229 | -0,11098 | -0,24525 |
| 8 | 0,99765 | 1,00914 | 1,23017 | 1,23106 | -0,17695 | -0,15772 |
| 9 | 0,40825 | 0,41436 | 0,51837 | 0,51039 | -0,15205 | -0,06956 |
| 10 | 0,13477 | 0,12936 | 0,17446 | 0,15888 | -0,07550 | -0,01840 |
| 11 | 0,03600 | 0,03152 | 0,04693 | 0,03838 | -0,02561 | -0,00341 |
| 12 | 0,00790 | 0,00618 | 0,01029 | 0,00743 | -0,00650 | -0,00047 |
| 13 | 0,00145 | 0,00100 | 0,00188 | 0,00119 | -0,00130 | -0,00005 |
| 14 | 0,00023 | 0,00014 | 0,00029 | 0,00016 | -0,00022 | -0,00000 |
| 15 | 0,00003 | 0,00002 | 0,00004 | 0,00002 | -0,00003 | -0,00000 |

 $\alpha = 10$ $K_{\text{ext}} = K_{\text{diff}} = 3,63513$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,98920 | | | | |
| 1 | 2,78197 | 2,78535 | | | | |
| 2 | 4,25857 | 4,25274 | 4,69756 | 4,67577 | -0,00775 | 0,02142 |
| 3 | 5,38684 | 5,37907 | 5,72946 | 5,72155 | 0,03680 | -0,00454 |
| 4 | 6,19017 | 6,19613 | 6,54602 | 6,54771 | 0,02467 | -0,01378 |
| 5 | 6,74494 | 6,73346 | 7,03987 | 7,02354 | 0,06662 | -0,01217 |
| 6 | 7,06714 | 7,07114 | 7,35075 | 7,35256 | 0,07030 | -0,04047 |
| 7 | 7,21001 | 7,21120 | 7,45448 | 7,44842 | 0,08910 | -0,04260 |
| 8 | 7,20067 | 7,19230 | 7,43385 | 7,42083 | 0,10857 | -0,06534 |
| 9 | 7,03633 | 7,05280 | 7,23984 | 7,24836 | 0,11004 | -0,08170 |
| 10 | 6,76591 | 6,75625 | 6,96817 | 6,94838 | 0,13728 | -0,10045 |
| 11 | 6,35885 | 6,36566 | 6,53432 | 6,53351 | 0,13484 | -0,13209 |
| 12 | 5,83355 | 5,85033 | 6,01528 | 6,01852 | 0,13910 | -0,14883 |
| 13 | 5,23002 | 5,22057 | 5,38751 | 5,36477 | 0,16688 | -0,18345 |
| 14 | 4,47923 | 4,49151 | 4,64590 | 4,64681 | 0,12278 | -0,22757 |
| 15 | 3,69005 | 3,70833 | 3,82527 | 3,82700 | 0,13125 | -0,22369 |
| 16 | 2,81582 | 2,81832 | 2,96984 | 2,95336 | 0,13073 | -0,28144 |
| 17 | 1,92311 | 1,91935 | 2,03521 | 2,01713 | 0,05077 | -0,30669 |
| 18 | 1,11508 | 1,10272 | 1,11546 | 1,19468 | -0,02638 | -0,23717 |
| 19 | 0,50771 | 0,50785 | 0,55510 | 0,55075 | -0,08532 | -0,12739 |
| 20 | 0,20932 | 0,20552 | 0,23195 | 0,22509 | -0,05321 | -0,04496 |
| 21 | 0,07142 | 0,06893 | 0,07979 | 0,07586 | -0,02548 | -0,01337 |
| 22 | 0,02093 | 0,01964 | 0,02352 | 0,02166 | -0,00950 | -0,00319 |
| 23 | 0,00537 | 0,00485 | 0,00606 | 0,00536 | -0,00290 | -0,00063 |
| 24 | 0,00123 | 0,00106 | 0,00138 | 0,00116 | -0,00076 | -0,00010 |
| 25 | 0,00025 | 0,00021 | 0,00028 | 0,00023 | -0,00017 | -0,00001 |
| 26 | 0,00005 | 0,00004 | 0,00005 | 0,00004 | -0,00003 | -0,00000 |
| 27 | 0,00001 | 0,00001 | 0,00001 | 0,00001 | -0,00001 | -0,00000 |

TABLEAU II

m = 1,33 y = 0

$\alpha = 1$ $K_{ext} = K_{diff} = 0,09392$

| 1 | β_1 | δ_1 | α_1 | ζ_1 | γ_1 | ϵ_1 |
|---|-----------|------------|------------|-----------|------------|--------------|
| 0 | 1,00000 | 0,25681 | | | | |
| 1 | 0,55355 | 1,52751 | | | | |
| 2 | 0,56005 | 0,41056 | 3,03293 | 0,95773 | -1,18997 | 0,00724 |
| 3 | 0,11572 | 0,04325 | 0,37662 | 0,08186 | -0,20250 | 0,00018 |
| 4 | 0,01078 | 0,00248 | 0,02673 | 0,00414 | -0,01674 | 0,00000 |
| 5 | 0,00058 | 0,00009 | 0,00121 | 0,00014 | -0,00083 | 0,00000 |
| 6 | 0,00002 | 0,00000 | 0,00004 | 0,00000 | -0,00003 | 0,00000 |

$\alpha = 2$ $K_{ext} = K_{diff} = 0,71295$

| | | | | | | |
|---|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,94336 | | | | |
| 1 | 2,00916 | 1,99539 | | | | |
| 2 | 1,56339 | 1,59031 | 3,59006 | 3,51161 | -0,46774 | -0,12431 |
| 3 | 0,67407 | 0,76642 | 1,52354 | 1,45361 | -0,51196 | -0,13199 |
| 4 | 0,22215 | 0,19430 | 0,48140 | 0,32790 | -0,24641 | -0,02223 |
| 5 | 0,04725 | 0,03025 | 0,09347 | 0,04694 | -0,05788 | -0,00206 |
| 6 | 0,00671 | 0,00319 | 0,01218 | 0,00465 | -0,00838 | -0,00012 |
| 7 | 0,00068 | 0,00025 | 0,00114 | 0,00034 | -0,00084 | 0,00000 |
| 8 | 0,00005 | 0,00001 | 0,00008 | 0,00002 | -0,00006 | 0,00000 |

$\alpha = 3$ $K_{ext} = K_{diff} = 1,75340$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,96318 | | | | |
| 1 | 2,34960 | 2,37058 | | | | |
| 2 | 2,73826 | 2,73934 | 4,09853 | 4,01987 | -0,08463 | -0,03531 |
| 3 | 2,31458 | 2,31750 | 3,22386 | 3,19056 | -0,03221 | -0,26424 |
| 4 | 1,39080 | 1,38750 | 2,11971 | 2,09523 | -0,18180 | -0,26902 |
| 5 | 0,55350 | 0,59012 | 0,87151 | 0,87647 | -0,26051 | -0,16370 |
| 6 | 0,17443 | 0,16414 | 0,28012 | 0,23609 | -0,13236 | -0,03381 |
| 7 | 0,04012 | 0,03180 | 0,06340 | 0,04419 | -0,03762 | -0,00443 |
| 8 | 0,00692 | 0,00452 | 0,01062 | 0,00607 | -0,00716 | -0,00039 |
| 9 | 0,00092 | 0,00050 | 0,00137 | 0,00065 | -0,00100 | -0,00002 |
| 10 | 0,00010 | 0,00004 | 0,00014 | 0,00006 | -0,00011 | -0,00000 |
| 11 | 0,00001 | 0,00000 | 0,00001 | 0,00000 | -0,00001 | -0,00000 |



$\alpha = 5$ $K_{\text{ext}} = K_{\text{diff}} = 3,59103$

| l | β_l | δ_l | α_l | ζ_l | γ_l | ϵ_l |
|-----|-----------|------------|------------|-----------|------------|--------------|
| 0 | 1,00000 | 0,96560 | 4,39061 | 4,31008 | 0,00948 | 0,01823 |
| 1 | 2,53602 | 2,55563 | 4,54025 | 4,55637 | 0,07677 | -0,10508 |
| 2 | 3,56549 | 3,52434 | 4,57565 | 4,52342 | 0,09461 | -0,08831 |
| 3 | 3,97976 | 4,00874 | 4,03123 | 4,07551 | 0,12388 | -0,24846 |
| 4 | 4,00292 | 3,68178 | 3,46582 | 3,45383 | 0,12113 | -0,22884 |
| 5 | 3,66401 | 3,05252 | 2,55396 | 2,51960 | 0,12742 | -0,40294 |
| 6 | 3,01601 | 2,25986 | 1,63200 | 1,56356 | 0,00116 | -0,39639 |
| 7 | 2,23304 | 1,27393 | 0,66045 | 0,65056 | -0,16230 | -0,22056 |
| 8 | 1,30251 | 0,54290 | 0,25764 | 0,23600 | -0,03606 | -0,05457 |
| 9 | 0,53463 | 0,19227 | 0,07076 | 0,06147 | -0,03224 | -0,01140 |
| 10 | 0,20136 | 0,04994 | 0,01536 | 0,01227 | -0,00855 | -0,00171 |
| 11 | 0,05480 | 0,01003 | 0,00273 | 0,00197 | -0,00174 | -0,00019 |
| 12 | 0,01189 | 0,00163 | 0,00041 | 0,00026 | -0,00028 | -0,00002 |
| 13 | 0,00212 | 0,00022 | 0,00005 | 0,00003 | -0,00004 | 0,00000 |
| 14 | 0,00032 | 0,00003 | | | | |
| 15 | 0,00004 | | | | | |

$\alpha = 10$ $K_{\text{ext}} = K_{\text{diff}} = 2,20655$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|----------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,91581 | 3,966026 | 3,78088 | 0,11615 | 0,16851 |
| 1 | 2,13738 | 2,16560 | 3,43033 | 3,42989 | 0,14370 | -0,02544 |
| 2 | 2,93361 | 2,84028 | 3,24059 | 3,20296 | 0,04082 | 0,24396 |
| 3 | 2,83470 | 2,82638 | 2,79916 | 2,66523 | 0,14753 | -0,00454 |
| 4 | 2,74053 | 2,77480 | 2,78654 | 2,79043 | -0,00545 | 0,20754 |
| 5 | 2,62815 | 2,54617 | 2,60915 | 2,52851 | 0,07186 | 0,08199 |
| 6 | 2,54084 | 2,57933 | 2,80933 | 2,84584 | -0,06212 | 0,09157 |
| 7 | 2,60783 | 2,58398 | 2,88058 | 2,86989 | 0,04289 | 0,11775 |
| 8 | 2,73928 | 2,72985 | 3,35998 | 3,23822 | -0,07084 | 0,00502 |
| 9 | 2,94132 | 2,90305 | 3,37787 | 3,44074 | 0,04941 | 0,11140 |
| 10 | 3,20813 | 3,14189 | 3,96258 | 3,80265 | 0,04105 | -0,03354 |
| 11 | 3,47062 | 3,60421 | 4,01231 | 4,03202 | 0,11863 | 0,03775 |
| 12 | 3,78234 | 3,70292 | 4,50418 | 4,48458 | 0,23832 | 0,00597 |
| 13 | 4,13124 | 4,22078 | 4,62999 | 4,46593 | 0,38109 | -0,20064 |
| 14 | 4,28487 | 4,36962 | 4,72628 | 4,80430 | 0,42075 | -0,10729 |
| 15 | 4,73625 | 4,66483 | 4,43060 | 4,27771 | 0,74743 | -0,56892 |
| 16 | 4,44715 | 4,62216 | 3,78591 | 3,63422 | 0,60792 | -0,05996 |
| 17 | 4,34391 | 4,45155 | 2,25306 | 2,18520 | 0,21416 | -0,82646 |
| 18 | 3,38342 | 3,36533 | 1,61484 | 1,32850 | 0,05427 | -0,88999 |
| 19 | 2,22656 | 2,27338 | 0,19139 | 0,16650 | -0,20143 | -0,13135 |
| 20 | 1,35772 | 1,13493 | 0,10776 | 0,09092 | -0,04230 | -0,03522 |
| 21 | 0,17943 | 0,16545 | 0,03162 | 0,02705 | -0,01269 | -0,00838 |
| 22 | 0,09641 | 0,08394 | 0,00760 | 0,00649 | -0,00340 | -0,00160 |
| 23 | 0,02815 | 0,02467 | 0,00158 | 0,00133 | -0,00079 | -0,00025 |
| 24 | 0,00676 | 0,00589 | 0,00029 | 0,00024 | -0,00016 | -0,00003 |
| 25 | 0,00140 | 0,00120 | 0,00005 | 0,00004 | -0,00003 | 0,00000 |
| 26 | 0,00026 | 0,00022 | | | | |
| 27 | 0,00004 | 0,00003 | | | | |

BUS
LILLE

TABLEAU III

$\alpha = 4,2$
 $m = 1,14$
 $K_{ext} = K_{diff} = 0,65241$
 $y = 0$

| 1 | β_1 | δ_1 | α_1 | ζ_1 | γ_1 | ϵ_1 |
|----|-----------|------------|------------|-----------|------------|--------------|
| 0 | 1,00000 | 0,97128 | | 4,39130 | -0,09751 | -0,01622 |
| 1 | 2,61908 | 2,64337 | 4,46408 | 4,51415 | -0,11737 | -0,07727 |
| 2 | 3,56763 | 3,53957 | 4,40982 | 4,51415 | -0,11737 | -0,07727 |
| 3 | 3,69048 | 3,72485 | 3,95556 | 3,90443 | -0,14798 | -0,11634 |
| 4 | 3,22304 | 3,20074 | 2,87767 | 2,87129 | -0,20557 | -0,17289 |
| 5 | 2,30707 | 2,29982 | 1,60240 | 1,71041 | -0,29050 | -0,13049 |
| 6 | 1,30321 | 1,33665 | 0,77930 | 0,76105 | -0,25060 | -0,05911 |
| 7 | 0,57642 | 0,59258 | 0,28191 | 0,24764 | -0,13124 | -0,01595 |
| 8 | 0,20352 | 0,19487 | 0,07980 | 0,06075 | -0,04616 | -0,00288 |
| 9 | 0,05730 | 0,04857 | 0,01791 | 0,01165 | -0,01183 | -0,00037 |
| 10 | 0,01295 | 0,00943 | 0,00325 | 0,00181 | -0,00234 | -0,00004 |
| 11 | 0,00238 | 0,00149 | 0,00049 | 0,00023 | -0,00037 | -0,00000 |
| 12 | 0,00036 | 0,00019 | 0,00006 | 0,00002 | -0,00005 | 0,00000 |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | 0,00000 | 0,00000 | 0,00000 | 0,00000 |

$m = 1,18$
 $K_{ext} = K_{diff} = 1,06424$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,97133 | | 4,37257 | -0,08062 | -0,01319 |
| 1 | 2,60182 | 2,63173 | 4,45094 | 4,48692 | -0,07792 | -0,09464 |
| 2 | 3,54701 | 3,51302 | 4,46523 | 4,48692 | -0,07792 | -0,09464 |
| 3 | 3,68481 | 3,71637 | 3,96375 | 3,92454 | -0,10587 | -0,13000 |
| 4 | 3,24514 | 3,23778 | 2,94173 | 2,92186 | -0,13645 | -0,21158 |
| 5 | 2,38026 | 2,36612 | 1,77676 | 1,78966 | -0,23621 | -0,17490 |
| 6 | 1,37837 | 1,39949 | 0,82128 | 0,81586 | -0,23538 | -0,09849 |
| 7 | 0,61209 | 0,63230 | 0,29780 | 0,26870 | -0,13039 | -0,02467 |
| 8 | 0,21616 | 0,20994 | 0,08390 | 0,06613 | -0,04681 | -0,00456 |
| 9 | 0,06046 | 0,05245 | 0,01867 | 0,01263 | -0,01206 | -0,00060 |
| 10 | 0,01353 | 0,01019 | 0,00335 | 0,00194 | -0,00238 | -0,00006 |
| 11 | 0,00246 | 0,00159 | 0,00050 | 0,00025 | -0,00037 | -0,00000 |
| 12 | 0,00037 | 0,00020 | 0,00006 | 0,00003 | -0,00005 | -0,00000 |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | 0,00000 | 0,00000 | 0,00000 | -0,00000 |

$m = 1,22$
 $K_{ext} = K_{diff} = 1,54800$

| | | | | | | |
|---|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,97145 | | 4,35058 | -0,06463 | -0,00919 |
| 1 | 2,58169 | 2,61125 | 4,42809 | 4,43811 | -0,03581 | -0,11053 |
| 2 | 3,51226 | 3,48056 | 4,42151 | 4,43811 | -0,03581 | -0,11053 |
| 3 | 3,67184 | 3,69359 | 3,96089 | 3,93684 | -0,06461 | -0,13916 |
| 4 | 3,25853 | 3,26724 | 2,99974 | 2,96927 | -0,06442 | -0,24512 |
| 5 | 2,45121 | 2,43777 | | | | |



| 1 | β_1 | δ_1 | α_1 | ζ_1 | γ_1 | ϵ_1 |
|----|-----------|------------|------------|-----------|------------|--------------|
| 6 | 1,45903 | 1,46505 | 1,87162 | 1,87098 | -0,17325 | -0,22547 |
| 7 | 0,65062 | 0,67443 | 0,86663 | 0,87184 | -0,21926 | -0,12796 |
| 8 | 0,23133 | 0,22685 | 0,31708 | 0,29181 | -0,12975 | -0,03615 |
| 9 | 0,06447 | 0,05706 | 0,03914 | 0,07245 | -0,04776 | -0,00682 |
| 10 | 0,01431 | 0,01108 | 0,01960 | 0,01384 | -0,01240 | -0,00091 |
| 11 | 0,00257 | 0,00172 | 0,00350 | 0,00212 | -0,00244 | -0,00009 |
| 12 | 0,00038 | 0,00022 | 0,00051 | 0,00027 | -0,00038 | -0,00001 |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | 0,00006 | 0,00003 | -0,00005 | -0,00000 |

m = 1,26

$K_{ext} = K_{diff} = 2,07720$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,97058 | 4,39507 | 4,32235 | -0,04891 | -0,00702 |
| 1 | 2,55751 | 2,58124 | 4,36696 | 4,36813 | 0,00610 | -0,12624 |
| 2 | 3,46423 | 3,44081 | 3,94582 | 3,93489 | -0,02617 | -0,15041 |
| 3 | 3,64790 | 3,65646 | 3,04166 | 3,00556 | 0,00351 | -0,27760 |
| 4 | 3,25937 | 3,28192 | 1,96567 | 1,04253 | -0,10716 | -0,28495 |
| 5 | 2,50894 | 2,50605 | 0,70897 | 0,01953 | -0,20591 | -0,17788 |
| 6 | 1,53319 | 1,52345 | 0,33991 | 0,31572 | -0,12955 | -0,04966 |
| 7 | 0,68749 | 0,71356 | 0,09568 | 0,07971 | -0,04902 | -0,00962 |
| 8 | 0,24015 | 0,24490 | 0,02103 | 0,01530 | -0,01286 | -0,00131 |
| 9 | 0,06946 | 0,06244 | 0,00371 | 0,00233 | -0,00253 | -0,00013 |
| 10 | 0,01532 | 0,01217 | 0,00054 | 0,00029 | -0,00040 | -0,00001 |
| 11 | 0,00273 | 0,00189 | 0,00007 | 0,00003 | -0,00005 | -0,00000 |
| 12 | 0,00040 | 0,00024 | | | | |
| 13 | 0,00005 | 0,00003 | | | | |

TABLEAU IV

m = 1,20

$\alpha = 4,2$

y = 0 $K_{ext} = 1,20855$ $K_{diff} = 1,29855$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,97144 | 4,44082 | 4,36217 | -0,07250 | -0,01113 |
| 1 | 2,59220 | 2,62270 | 4,44463 | 4,46532 | -0,05708 | -0,10269 |
| 2 | 3,53145 | 3,49763 | 3,96376 | 3,93204 | -0,08511 | -0,13474 |
| 3 | 3,67947 | 3,70681 | 2,97201 | 2,94635 | -0,10055 | -0,22873 |
| 4 | 3,25311 | 3,25385 | 1,92343 | 1,83067 | -0,20565 | -0,19916 |
| 5 | 2,41657 | 2,40169 | 0,84391 | 0,84424 | -0,22728 | -0,10682 |
| 6 | 1,41865 | 1,43246 | 0,30704 | 0,28010 | -0,13004 | -0,03007 |
| 7 | 0,63128 | 0,65339 | 0,08637 | 0,06918 | -0,04726 | -0,00562 |
| 8 | 0,22344 | 0,21823 | 0,01915 | 0,01321 | -0,01221 | -0,00074 |
| 9 | 0,06236 | 0,05467 | 0,00342 | 0,00202 | -0,00240 | -0,00007 |
| 10 | 0,01389 | 0,01061 | 0,00050 | 0,00026 | -0,00038 | -0,00001 |
| 11 | 0,00251 | 0,00165 | 0,00006 | 0,00003 | -0,00005 | -0,00000 |
| 12 | 0,00038 | 0,00021 | | | | |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | | | | |

813
LILL

$y = - 10^{-4}$ $K_{ext} = 1,29910$ $K_{diff} = 1,29761$

| l | β_l | δ_l | α_l | ζ_l | γ_l | ϵ_l |
|----|-----------|------------|------------|-----------|------------|--------------|
| 0 | 1,00000 | 0,97145 | 4,44090 | 4,36233 | -0,07251 | -0,01122 |
| 1 | 2,59232 | 2,62276 | 4,44501 | 4,46563 | -0,05714 | -0,10274 |
| 2 | 3,53164 | 3,49737 | 3,96419 | 3,93249 | -0,08518 | -0,13485 |
| 3 | 3,67983 | 3,70713 | 2,97254 | 2,94685 | -0,10062 | -0,22882 |
| 4 | 3,25355 | 3,25432 | 1,82385 | 1,83109 | -0,20575 | -0,19931 |
| 5 | 2,41703 | 2,40214 | 0,94421 | 0,84450 | -0,22737 | -0,10692 |
| 6 | 1,41899 | 1,43284 | 0,30718 | 0,28022 | -0,13010 | -0,03011 |
| 7 | 0,63151 | 0,65362 | 0,08642 | 0,06922 | -0,04728 | -0,00563 |
| 8 | 0,22355 | 0,21832 | 0,01916 | 0,01322 | -0,01222 | -0,00074 |
| 9 | 0,06239 | 0,05469 | 0,00342 | 0,00203 | -0,00241 | -0,00001 |
| 10 | 0,01390 | 0,01062 | 0,00050 | 0,00026 | -0,00038 | -0,00000 |
| 11 | 0,00251 | 0,00166 | 0,00006 | 0,00003 | -0,00005 | -0,00000 |
| 12 | 0,00038 | 0,00021 | | | | |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | | | | |

$y = - 10^{-3}$ $K_{ext} = 1,30399$ $K_{diff} = 1,28921$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,97157 | 4,44163 | 4,36380 | -0,07262 | -0,01195 |
| 1 | 2,59340 | 2,62328 | 4,44842 | 4,46835 | -0,05768 | -0,10316 |
| 2 | 3,53337 | 3,50007 | 3,96804 | 3,93658 | -0,08576 | -0,13591 |
| 3 | 3,68312 | 3,71003 | 2,97728 | 2,95130 | -0,10127 | -0,22967 |
| 4 | 3,25746 | 3,25851 | 1,82760 | 1,83483 | -0,20668 | -0,20065 |
| 5 | 2,42112 | 2,40620 | 0,84689 | 0,84686 | -0,22819 | -0,10778 |
| 6 | 1,42213 | 1,43624 | 0,30844 | 0,28127 | -0,13065 | -0,03046 |
| 7 | 0,63356 | 0,65565 | 0,08684 | 0,06953 | -0,04751 | -0,00572 |
| 8 | 0,22448 | 0,21919 | 0,01926 | 0,01329 | -0,01229 | -0,00076 |
| 9 | 0,06270 | 0,05495 | 0,00344 | 0,00204 | -0,00242 | -0,00008 |
| 10 | 0,01398 | 0,01068 | 0,00051 | 0,00026 | -0,00038 | -0,00000 |
| 11 | 0,00253 | 0,00166 | 0,00006 | 0,00003 | -0,00005 | -0,00000 |
| 12 | 0,00038 | 0,00021 | | | | |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | | | | |

$y = - 10^{-2}$ $K_{ext} = 1,35125$ $K_{diff} = 1,21170$

| | | | | | | |
|----|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| 0 | 1,00000 | 0,97251 | 4,44846 | 4,37721 | -0,07376 | -0,01894 |
| 1 | 2,60347 | 2,62816 | 4,48090 | 4,49449 | -0,06307 | -0,10739 |
| 2 | 3,54993 | 3,52086 | 4,00555 | 3,97607 | -0,09173 | -0,14608 |
| 3 | 3,71469 | 3,73804 | 3,00347 | 2,99493 | -0,10803 | -0,23804 |
| 4 | 3,29554 | 3,29915 | 1,86493 | 1,87179 | -0,21579 | -0,21381 |
| 5 | 2,46118 | 2,44632 | 0,87369 | 0,87041 | -0,23637 | -0,11637 |
| 6 | 1,45339 | 1,47010 | 0,32117 | 0,29181 | -0,13616 | -0,03403 |
| 7 | 0,65415 | 0,67599 | 0,09111 | 0,07274 | -0,04985 | -0,00670 |
| 8 | 0,23384 | 0,22791 | 0,02032 | 0,01399 | -0,01296 | -0,00095 |
| 9 | 0,06580 | 0,05757 | 0,00365 | 0,00216 | -0,00256 | -0,00010 |
| 10 | 0,01475 | 0,01125 | 0,00054 | 0,00027 | -0,00040 | -0,00001 |
| 11 | 0,00268 | 0,00176 | 0,00007 | 0,00003 | -0,00005 | 0,00000 |
| 12 | 0,00040 | 0,00023 | | | | |
| 13 | 0,00005 | 0,00002 | | | | |

BUS
LIFE

DEUXIEME PARTIE

ETUDE THEORIQUE
DU REGIME ASYMPTOTIQUE

A - RAPPELS

Ayant obtenu dans la première partie la matrice de phase d'une particule sphérique d'indice et de rayon connus, nous pouvons en déduire, tout-au-moins en principe, la matrice $\underline{P}(\theta)$ correspondant à un milieu constitué de particules diffusantes sphériques. Supposant ce problème résolu, nous envisagerons maintenant la résolution de l'équation de transfert elle-même.

Nous avons vu que nous limitons notre étude au cas du régime asymptotique, atteint aux grandes profondeurs dans une couche plane-parallèle et homogène. L'équation matricielle à traiter est alors l'équation (7) qui, pour le régime asymptotique, présente deux simplifications supplémentaires. On a en effet prévu depuis longtemps qu'en grande profondeur :

- la lumière directement transmise des sources doit devenir négligeable devant la lumière diffuse; ce qui se traduit dans (7) par la disparition du terme de transmission en $\pi_F e^{\tau/\mu}_0$;
- les diffusions successives ayant un caractère de plus en plus isotrope, on doit tendre à la limite vers un régime où la luminance a la symétrie de révolution autour de la verticale; d'où la disparition de la variable ϕ et $\underline{I}(\tau, \mu, \phi) = \underline{I}(\tau, \mu)$.

Ces conclusions intuitives se vérifient numériquement, puisque dans une solution générale de l'équation de transfert, on constate la prédominance finale, lorsque τ croît, d'un terme indépendant de l'azimut et des sources. Enfin Preisendorfer [23] a donné une démonstration théorique de ces caractères simplifiés du régime asymptotique.

Si nous introduisons donc dans l'équation (7) ces deux hypothèses, l'équation finale à traiter s'écrit :

$$(II.1) \quad \mu \frac{\partial \underline{I}(\tau, \mu)}{\partial \tau} = \underline{I}(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^{+1} \underline{P}(\mu, \phi; \mu', \phi') \underline{I}(\tau, \mu') d\mu' d\phi',$$

équation matricielle dans laquelle nous prenons la représentation de Kušćer pour la matrice luminance $\underline{I}(\tau, \mu)$ et la matrice de phase $\underline{P}(\theta)$ qui en résulte.

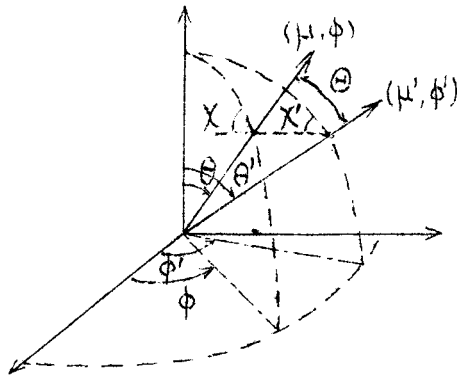


Figure (II.1)

De façon générale, θ étant l'angle de diffusion entre la direction d'incidence (μ', ϕ') et la direction de diffusion (μ, ϕ) , on sait qu'on obtient le noyau $\underline{P}(\mu, \phi; \mu', \phi')$ en appliquant successivement sur $\underline{I}(\tau, \mu', \phi')$ puis sur $\underline{P}(\theta) \underline{I}(\tau, \mu', \phi')$, respectivement, les matrices de rotation $\underline{L}(\chi')$ puis $\underline{L}(-\chi)$ permettant de passer du plan méridien de référence au plan de diffusion, et inversement. On a donc :

$$(II.2) \quad \underline{P}(\mu, \phi; \mu', \phi') = \underline{L}(-\chi) \underline{P}(\theta) \underline{L}(\chi').$$

L'avantage de la représentation de Kušćer est de donner une matrice de rotation $\underline{L}(\chi)$ diagonale et très simple :

$$(II.3) \quad \underline{L}(\chi) = \begin{bmatrix} e^{2i\chi} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-2i\chi} \end{bmatrix}$$

A partir de (II.2), (II.3) et (I.15), on obtient en effet pour les éléments $p_{mn}(\mu, \phi; \mu', \phi')$ du noyau la forme :

$$(II.4) \quad p_{mn}(\mu, \phi; \mu', \phi') = p_{mn}(\cos \theta) \exp(-im\chi + in\chi')$$

Si on suppose les éléments $p_{mn}(\cos \theta)$ développés en fonctions généralisées

de Legendre $P_{mn}^1(\cos \theta)$, sous la forme (I.17), ces fonctions respectant le théorème d'addition :

$$(II.5) \quad e^{-im\chi} P_{mn}^1(\cos \theta) e^{+in\chi'} = \sum_{s=-1}^{s=+1} (-1)^s P_{ms}^1(\mu) P_{sn}^1(\mu') \exp [is(\phi - \phi')]$$

on obtient dans la matrice de phase (II.2) la séparation des variables θ et ϕ avec :

$$P_{mn}(\mu, \phi; \mu', \phi') = \sum_{l=\sup(|m|, |n|)}^{\infty} \sum_{s=-1}^{s=+1} (-1)^s \beta_{mn}^1 P_{ms}^1(\mu) P_{sn}^1(\mu') \exp [is(\phi - \phi')]$$

(II.6) soit :

$$P_{mn}(\mu, \phi; \mu', \phi') = \sum_{s=-\infty}^{s=+\infty} \exp [is(\phi - \phi')] \sum_{l=\sup(|m|, |n|, |s|)}^{\infty} \beta_{mn}^1 P_{ms}^1(\mu) P_{ns}^1(\mu')$$

Substituons (II.2) avec (II.6) dans l'équation de transfert (II.1); $\underline{I}(\tau, \mu')$ ne dépendant pas de ϕ' , on effectue facilement l'intégration sur ϕ' . En remarquant que $P_{m0}^1(\mu) = P_m^1(\mu) = P_{0m}^1(\mu)$, il vient :

$$(II.7) \quad \mu \frac{\partial \underline{I}(\tau, \mu)}{\partial \tau} = \underline{I}(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{4\pi} \int_{-1}^{+1} \underline{P}(\mu, \mu') \underline{I}(\tau, \mu') d\mu'$$

où les éléments de la matrice $\underline{P}(\mu, \mu')$ s'écrivent :

$$(II.8) \quad P_{mn}(\mu, \mu') = \sum_{l=\sup(|m|, |n|)}^{\infty} 2\pi \beta_{mn}^1 P_m^1(\mu) P_n^1(\mu')$$

Développons l'équation matricielle (II.7) en quatre équations sca-

lares. A partir de (I.14), on repasse facilement, par combinaisons linéaires, aux équations intégral-différentielles donnant les paramètres de Stokes. On obtient, à l'aide des définitions (I.22) des coefficients α_1 à ζ_1 :

$$(II.9) \quad \mu \frac{\partial I(\tau, \mu)}{\partial \tau} = I(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{2} \left[\sum_{l=0}^{\infty} \beta_l P_l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_l(\mu') I(\tau, \mu') d\mu' + \sum_{l=2}^{\infty} \gamma_l P_l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_2^l(\mu') Q(\tau, \mu') d\mu' \right]$$

$$(II.10) \quad \mu \frac{\partial Q(\tau, \mu)}{\partial \tau} = Q(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{2} \left[\sum_{l=2}^{\infty} \alpha_l P_2^l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_2^l(\mu') Q(\tau, \mu') d\mu' + \sum_{l=2}^{\infty} \gamma_l P_2^l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_1(\mu') I(\tau, \mu') d\mu' \right]$$

$$(II.11) \quad \mu \frac{\partial U(\tau, \mu)}{\partial \tau} = U(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{2} \left[\sum_{l=2}^{\infty} \zeta_l P_2^l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_2^l(\mu') U(\tau, \mu') d\mu' - \sum_{l=2}^{\infty} \epsilon_l P_2^l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_1(\mu') V(\tau, \mu') d\mu' \right]$$

$$(II.12) \quad \mu \frac{\partial V(\tau, \mu)}{\partial \tau} = V(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{2} \left[\sum_{l=0}^{\infty} \delta_l P_l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_l(\mu') V(\tau, \mu') d\mu' + \sum_{l=2}^{\infty} \epsilon_l P_l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_2^l(\mu') U(\tau, \mu') d\mu' \right]$$

Si l'on néglige la polarisation pour calculer la luminance $I(\tau, \mu)$, on assimile la lumière diffuse à de la lumière naturelle, et donc on annule Q , U et V dans le système d'équations précédent. Il ne subsiste alors que la seule équation, portant sur la luminance :

$$(II.13) \quad \mu \frac{\partial I(\tau, \mu)}{\partial \tau} = I(\tau, \mu) - \frac{\omega_0}{2} \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l P_l(\mu) \int_{-1}^{+1} P_l(\mu') I(\tau, \mu') d\mu'$$

Le problème est de résoudre numériquement l'équation (II.13) et le système (II.9) à (II.12), avec les valeurs des coefficients α_1 à ζ_1 correspondant aux milieux étudiés, pour vérifier la validité de l'approximation donnée par (II.13) et pour tester les résultats expérimentaux.

B - PRINCIPE DE RESOLUTION DES EQUATIONS DE TRANSFERT EN PROFONDEUR

I - Cas simplifié sans polarisation.

On sait [3] que la solution générale de (II.13) est de la forme :

$$(II.14) \quad I(\tau, \mu) = g(\mu) e^{-\nu\tau} ,$$

ce qui correspond à une extinction exponentielle de la luminance dont le diagramme reste homothétique dans un déplacement quelconque. Le facteur d'extinction ν est par ailleurs toujours inférieur à 1 [23]. Si on substitue cette solution dans (II.13) où on développe en outre $g(\mu)$ sous la forme :

$$(II.15) \quad g(\mu) = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) g_l P_l(\mu) ,$$

il vient :

$$(II.16) \quad (1+\mu\nu) g(\mu) = \omega_0 \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l g_l P_l(\mu)$$

Si on multiplie (II.16) par $P_m(\mu) d\mu$ et qu'on intègre les deux membres sur μ variant de -1 à $+1$, on obtient pour les coefficients g_l la relation de récurrence :

$$(II.17) \quad -\nu \left[(l+1) g_{l+1} + l g_{l-1} \right] = \left[(2l+1) - \omega_0 \beta_l \right] g_l$$

Les coefficients β_l étant donnés, ainsi que le paramètre ω_0 , ces relations nous donneront les g_l en fonction de ω_0 , des β_l , de l'inconnue ν et de la constante g_0 , par exemple. Le diagramme $g(\mu)$ n'étant défini qu'à une constante multiplicative près, on posera arbitrairement $g_0 = 1$. Supposons alors le développement de la fonction de phase $p(\theta)$ limité à l'ordre L ; l'équation (II.16) donne :

$$(II.18) \quad g(\mu) = \omega_0 \sum_{l=0}^L \frac{\beta_l g_l P_l(\mu)}{(1+\mu\nu)}$$

soit, en intégrant cette relation sur μ :

$$(II.19) \quad g_0 = 1 = \frac{\omega_0}{2} \sum_{l=0}^L \beta_l g_l \int_{-1}^{+1} \frac{P_l(\mu)}{(1+\mu\nu)} d\mu$$

Le problème est alors théoriquement résolu puisqu'on pourra tirer la racine ν (inférieure à 1) de l'équation (II.19), où les g_l sont des polynômes en ν définis par (II.17) et les intégrales facilement calculables en fonction de ν ; connaissant alors ν , on pourra calculer les g_l numériquement, et donc $g(\mu)$ par (II.18).

II - Cas de la polarisation.

Cette méthode de calcul a été étendue au cas de la polarisation 5 . On remarque tout d'abord que le système d'équations (II.9) à (II.12) se sépare en deux systèmes indépendants de deux équations chacun, l'un portant sur $I(\tau, \mu)$ et $Q(\tau, \mu)$, et l'autre sur les caractéristiques $U(\tau, \mu)$ et $V(\tau, \mu)$ de la partie polarisée. Nous nous intéresserons d'abord au système (I,Q), et passerons à la solution pour U et V par une substitution convenable des inconnues et coefficients.

Par analogie avec (II.13), posons :

$$I(\tau, \mu) = g(\mu) e^{-\nu\tau} = e^{-\nu\tau} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) g_l P_l(\mu)$$

(II.20)

$$Q(\tau, \mu) = h(\mu) e^{-\nu\tau} = e^{-\nu\tau} \sum_{l=2}^{\infty} (2l+1) h_l P_l^1(\mu)$$

Substituons ces solutions dans (II.9) et (II.10) où on supposera les développements limités à l'ordre L; il vient :

$$(1+\mu\nu) g(\mu) = \omega_0 \sum_{l=0}^L \beta_l g_l P_l(\mu) + \omega_0 \sum_{l=2}^L \gamma_l h_l P_l(\mu)$$

(II.21)

$$(1+\mu\nu) h(\mu) = \omega_0 \sum_{l=2}^L \alpha_l h_l P_l^1(\mu) + \omega_0 \sum_{l=2}^L \gamma_l g_l P_l^1(\mu)$$

En opérant exactement comme dans le cas précédent, on établit sans difficulté la double relation de récurrence :

$$-v \left[(1+1) g_{1+1} + 1 g_{1-1} \right] = \left[(21+1) - \omega \beta_1 \right] g_1 - \omega_0 \gamma_1 h_1$$

(II.22)

$$-v \left[\sqrt{(1+3)(1-1)} h_{1+1} + \sqrt{(1+2)(1-2)} h_{1-1} \right] = \left[(21+1) - \omega \alpha_1 \right] h_1 - \omega_0 \gamma_1 g_1$$

En posant encore $g_0 = 1$, par exemple, on tirera de ces relations les g_1 et h_1 sous forme de polynômes en v et h_2 , ce dernier coefficient représentant ici une nouvelle inconnue. Les équations donnant v et h_2 , et par suite $g(\mu)$ et $h(\mu)$, s'établissent également comme plus haut. On obtiendra d'abord, à partir de (II.21) :

$$(II.23) \quad g(\mu) = \omega_0 \sum_{l=0}^L (\beta_l g_l + \gamma_l h_l) \frac{P_l(\mu)}{(1+\mu v)}$$

où γ_0 et γ_1 sont nuls; et :

$$(II.24) \quad h(\mu) = \omega_0 \sum_{l=2}^L (\alpha_l h_l + \gamma_l g_l) \frac{P_l(\mu)}{(1+\mu v)}$$

Et en intégrant sur μ , directement l'équation (II.23), et l'équation (II.24) après multiplication de chaque membre par $P_2^2(\mu)$, on obtient :

$$(II.25) \quad g_0 = 1 = \frac{\omega_0}{2} \sum_{l=0}^L (\beta_l g_l + \gamma_l h_l) \int_{-1}^{+1} \frac{P_l(\mu)}{(1+\mu v)} d\mu$$

$$(II.26) \quad h_2 = \frac{\omega_0}{2} \sum_{l=2}^L (\alpha_l h_l + \gamma_l g_l) \int_{-1}^{+1} \frac{P_2^2(\mu) P_l(\mu)}{(1+\mu v)} d\mu ,$$

équations qui définissent v et h_2 . De façon tout-à-fait similaire, en posant :

$$U(\tau, \mu) = e^{-\lambda\tau} \quad j(\mu) = e^{-\lambda\tau} \sum_{l=2}^{\infty} (2l+1) j_l P_2^l(\mu)$$

(II.27)

$$V(\tau, \mu) = e^{-\lambda\tau} \quad k(\mu) = e^{-\lambda\tau} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) k_l P_1^l(\mu)$$

on aurait à résoudre les équations :

$$(II.28) \quad k(\mu) = \omega_0 \sum_{l=0}^L (\delta_l k_l + \epsilon_l j_l) \frac{P_1(\mu)}{(1+\mu\lambda)}$$

$$(II.29) \quad j(\mu) = \omega_0 \sum_{l=2}^L (\zeta_l j_l - \epsilon_l k_l) \frac{P_2^1(\mu)}{(1+\mu\lambda)}$$

$$(II.30) \quad k_0 = \frac{\omega_0}{2} \sum_{l=0}^L (\delta_l k_l + \epsilon_l j_l) \int_{-1}^{+1} \frac{P_1(\mu)}{(1+\mu\lambda)} d\mu$$

$$(II.31) \quad j_2 = \frac{\omega_0}{2} \sum_{l=2}^L (\zeta_l j_l - \epsilon_l k_l) \int_{-1}^{+1} \frac{P_2^2(\mu) P_2^1(\mu)}{(1+\lambda\mu)} d\mu$$

cù les j_l et k_l seraient obtenus à partir des relations de récurrence :

$$-\lambda \left[(1+l) k_{l+1} + l k_{l-1} \right] = \left[(2l+1) - \omega_0 \delta_l \right] k_l - \omega_0 \epsilon_l j_l$$

(II.32)

$$-\lambda \left[\sqrt{(1+3)(1-1)} j_{l+1} + \sqrt{(1+2)(1-2)} j_{l-1} \right] = \left[(2l+1) - \omega_0 \zeta_l \right] j_l + \omega_0 \epsilon_l k_l$$

Les équations (II.22) à (II.26) et (II.28 à (II.32) solutionnent théoriquement le problème, dans le cas de la polarisation. On remarque simplement que la séparation des équations pour I et Q d'une part, et pour U et V de l'autre entraîne, a priori, une indétermination, puisque la constante

multiplicative du régime étant fixée par le choix de g_0 , on ne connaît pas k_0 . En fait le problème est sans intérêt, le régime asymptotique ne permettant qu'une polarisation rectiligne, avec U et V nuls. Si en effet on considère

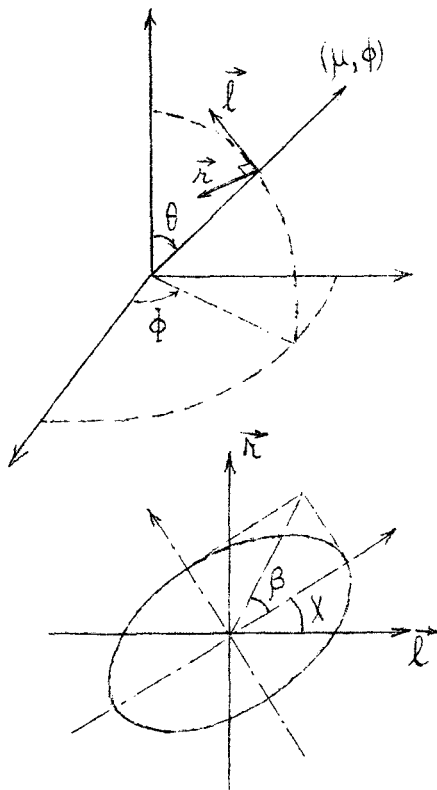


Figure (II.2)

le rayonnement diffus en propagation dans la direction (μ, ϕ) , l'état de polarisation le plus général de la vibration polarisée est elliptique; dans le système d'axes \vec{l} et \vec{r} ramenés au plan méridien de référence, on aura donc :

$$Q = I_p \cos 2\beta \cos 2\chi$$

$$U = I_p \cos 2\beta \sin 2\chi$$

$$V = I_p \sin 2\beta$$

la quantité I_p représentant l'intensité polarisée, soit :

$$I_p = (Q^2 + U^2 + V^2)^{1/2} .$$

La symétrie de révolution du problème montre que les axes de l'ellipse ne peuvent être que confondus avec les axes \vec{l} et \vec{r} , soit :

$$\chi = 0 \text{ ou } \pi/2 .$$

Donc, en profondeur, U tend vers 0, et puisque U et V décroissent simultanément en $e^{-\lambda\tau}$, V tend également vers 0, il ne subsiste qu'une polarisation rectiligne, la vibration polarisée étant portée par l'un des axes \vec{l} ou \vec{r} . On se contentera donc par la suite d'étudier les quantités $I(\tau, \mu)$, luminance totale, et $Q(\tau, \mu)$, luminance du rayonnement polarisé.

C - METHODE NUMERIQUE

Les méthodes classiques de résolution, exposées ci-dessus, sont très vite pénibles dès que L devient important. Outre le grand nombre des coefficients dans les équations (II.25) et (II.26), les intégrales de la forme :

$$\int_{-1}^{+1} \frac{P_1(\mu)}{(1+\mu\nu)} d\mu \quad \text{ou} \quad \int_{-1}^{+1} \frac{P_2^2(\mu) P_2^1(\mu)}{(1+\mu\nu)} d\mu ,$$

font apparaître des termes en $\text{Log} \left[\frac{(1-\nu)}{(1+\nu)} \right]$ qui compliquent l'extraction de la racine ν . On a donc préféré déterminer le coefficient d'extinction ν en utilisant le fait que les développements de $h(\mu)$ et $g(\mu)$ convergent, si ν est la racine correspondant au paramètre ω_0 envisagé, mais divergent au contraire très vite si ν s'écarte de la valeur exacte. Il suffit, pour s'en rendre compte, de remarquer que les g_1 et h_1 s'obtiennent, à partir de leurs relations de récurrence, par différence de termes de plus en plus élevés quand l augmente, et dépendant fortement de ω_0 . La détermination du coefficient d'extinction ν a donc été faite de la façon suivante.

On établit facilement, à partir des relations de récurrence (II.22) que les coefficients g_1 et h_1 sont de la forme :

$$(II.33) \quad g_1 = \sum_{m=0}^{[l/2]} \frac{a_m^{(1)} + h_2 b_m^{(1)}}{\nu^{l-2m}}$$

$$(II.34) \quad h_1 = \sum_{m=0}^{[l/2]} \frac{d_m^{(1)} + h_2 f_m^{(1)}}{\nu^{l-2m}}$$

où les coefficients $a_m^{(1)}$, $b_m^{(1)}$, $d_m^{(1)}$ et $f_m^{(1)}$ répondent aux relations de récurrence liées :

$$(II.35) \left\{ \begin{array}{l} (l+1) a_m^{(l+1)} + l a_{m-1}^{(l-1)} = - \left[(2l+1) - \omega_0 \beta_1 \right] a_m^{(l)} + \omega_0 \gamma_1 d_m^{(l)} \\ \sqrt{(l+3)(l-1)} d_m^{(l+1)} + \sqrt{(l+2)(l-2)} d_{m-1}^{(l-1)} = - \left[(2l+1) - \omega_0 \alpha_1 \right] d_m^{(l)} + \omega_0 \gamma_1 a_m^{(l)} \end{array} \right.$$

$$(II.36) \left\{ \begin{array}{l} (l+1) b_m^{(l+1)} + l b_{m-1}^{(l-1)} = - \left[(2l+1) - \omega_0 \beta_1 \right] b_m^{(l)} + \omega_0 \gamma_1 f_m^{(l)} \\ \sqrt{(l+3)(l-1)} f_m^{(l+1)} + \sqrt{(l+2)(l-2)} f_{m-1}^{(l-1)} = - \left[(2l+1) - \omega_0 \alpha_1 \right] f_m^{(l)} + \omega_0 \gamma_1 b_m^{(l)} \end{array} \right.$$

avec :

$$(II.37) \quad \begin{array}{l} a_m^{(1)}, b_m^{(1)}, d_m^{(1)} \text{ et } f_m^{(1)} = 0 \text{ si } m < 0 \text{ ou } m > [l/2] \\ d_0^{(0)} = b_0^{(0)} = f_0^{(0)} = f_0^{(1)} = f_0^{(2)} = 0 ; a_0^{(0)} = f_1^{(2)} = 1 \end{array}$$

les dernières relations exprimant que l'on a $g_0 = 1$ et $h_0 = h_1 = 0$.

Etant donné les coefficients α_1, β_1 et γ_1 , on déterminera alors facilement les $a_m^{(1)}, b_m^{(1)}, d_m^{(1)}$ et $f_m^{(1)}$. Pour en déduire v et h_2 , posons que g_1 et h_1 tendent vers 0 simultanément lorsque l croît, et écrivons par exemple :

$$g_{2L} = h_{2L} = 0 \quad \text{avec} \quad L_{\alpha} = \alpha + 1$$

qui est l'ordre de convergence des séries de coefficients. On tirera aussitôt de (II.33) et (II.34) :

$$(II.38) \quad h_2 = \frac{\sum_{m=0}^L v^{2m} a_m^{(2L)}}{\sum_{m=0}^L v^{2m} b_m^{(2L)}} = \frac{\sum_{m=0}^L v^{2m} d_m^{(2L)}}{\sum_{m=0}^L v^{2m} f_m^{(2L)}}$$

où v est la racine unique positive et inférieure à 1 de l'équation :

$$(II.39) \quad \left[\sum_{m=0}^L v^{2m} a_m^{(2L)} \right] \left[\sum_{m=0}^L v^{2m} f_m^{(2L)} \right] - \left[\sum_{m=0}^L v^{2m} b_m^{(2L)} \right] \left[\sum_{m=0}^L v^{2m} d_m^{(2L)} \right] = 0$$

L'extraction de la racine v dans l'équation (II.39) ne présente pas de difficulté particulière, sur machine à calculer. L'équation est beaucoup plus légère que celle tirée de (II.25) et (II.26), puisqu'on ne tient plus compte que des deux derniers coefficients g_{2L} et h_{2L} au lieu de les considérer tous, et que les termes en logarithmes disparaissent.

On teste facilement la précision des racines ainsi obtenues en comparant les résultats correspondant à différentes valeurs de L . On constate une convergence très rapide, et on obtient généralement v à 10^{-8} près avec $2L = 12$. La convergence est d'autant plus longue que ω est plus faible, mais dépend très peu de l'importance des développements des α_1 , β_1 et γ_1 . On a d'autre part comparé la racine, ainsi obtenue, à celle déduite des équations classiques (II.25) et (II.26); l'accord est excellent.

Enfin, on obtient d'une façon analogue λ et j_2 , en fonction de k_0 et des coefficients δ_1 , ε_1 et ζ_1 ; on vérifie bien numériquement que l'on a

$$v < \lambda$$

Dans le cas où on néglige la polarisation, les relations précédentes se simplifient considérablement. Il suffit d'annuler, dans les expressions établies pour I et Q , les coefficients α_1 , γ_1 et h_2 , de sorte qu'il ne reste qu'à résoudre :

$$(II.40) \quad g_{2L} = 0 = \sum_{m=0}^L a_m^{(2L)} v^{2m}$$

où l'on calcule les $a_m^{(1)}$ à partir de :

$$(II.41) \quad (1+m) a_m^{(1+1)} + 1 a_{m-1}^{(1-1)} = - \left[(2L+1) - \omega_0 \beta_1 \right] a_m^{(1)}$$

avec $a_0^{(0)} = 1$ et $a_m^{(1)} = 0$ si $m < 0$ ou $m > |1/2|$.

Enfin, de façon générale, une fois la racine ν extraite, et éventuellement h_2 déterminé, on les remplace par leurs valeurs dans les relations de récurrence (II.22) ou (II.17), et on calcule numériquement les g_1 et h_1 .

D'où les quantités :

$$(II.42) \quad \begin{aligned} I(\tau, \mu) &= \sum_{l=0}^{2L} (2l+1) g_1 P_l(\mu) e^{-\nu\tau} \\ Q(\tau, \mu) &= \sum_{l=2}^{2L} (2l+1) h_1 P_2^l(\mu) e^{-\nu\tau} \end{aligned}$$

où l'on détermine les valeurs numériques des polynômes $P_l(\mu)$ et des fonctions $P_2^l(\mu)$, pour les angles désirés, à partir de leurs relations de récurrence.

Ici encore, le programme du Calcul Numérique des caractéristiques ν , $g(\mu)$ et $h(\mu)$ du flux diffus asymptotique, a été établi par le Laboratoire de Calcul Numérique de Lille. Nous donnons ci-dessous quelques exemples de résultats, et les conclusions que l'on peut en tirer.

D - RESULTATS NUMERIQUES

On donnera dans la quatrième partie, en même temps que les résultats expérimentaux, les résultats théoriques obtenus à partir du programme précédent, dans le cas des développements correspondant aux produits réels

employés dans les expériences. Mais on a également utilisé le programme pour étudier systématiquement les caractéristiques du régime asymptotique et l'influence de la polarisation, en prenant des matrices de phase arbitraires, correspondant à des particules monodispersées, d'indice 1,20 et de paramètre α variant de 0 à 8 par pas de 1.

I - Coefficient d'extinction

1) Allure générale

Le réseau de courbes de la figure (II.3) représente, pour les valeurs considérées du paramètre α , les variations du coefficient d'extinction ν avec ω_0 .

Quelle que soit la matrice de phase, on a toujours :

- . si $\omega_0 = 1$, $\nu = 0$; cas d'un milieu "conservatif", dépourvu d'absorption ($b=0$) dans lequel la luminance diffuse tend vers un régime isotrope et ne décroissant plus en profondeur ($e^{-\nu\tau} = 1$),
- . si $\omega_0 = 0$, $\nu = 1$; cas d'un milieu non diffusant ($k=0$) pour lequel l'extinction est uniquement due à l'absorption ($e^{-\nu\tau} = e^{-bh}$).

Les courbes $\nu = f(\omega_0, \alpha)$ passent donc toutes par deux points extrêmes fixes avec une décroissance très rapide au voisinage de $\omega_0 = 1$. Mais elles restent en outre localisées dans la région $\nu > (1 - \omega_0)$; le cas limite $\nu = (1 - \omega_0)$, avec $k \neq 0$, correspondrait en effet à une décroissance de la luminance en e^{-bh} . Une extinction uniquement due à l'absorption, en dépit d'un coefficient de diffusion non nul, ne s'observerait que dans le cas limite où la fonction de phase serait une fonction de Dirac, et où toute la diffusion se ferait dans la seule direction avant. On constate bien que les courbes se rapprochent d'autant plus de cette allure limite que les particules sont plus grosses et que leur diffusion se réduit davantage aux directions voisines de la direction d'incidence.

On constate d'autre part, à ω_0 donné, une assez brusque variation de ν lorsque α passe de 1 à 2. Cette discontinuité se retrouve sur le dia-

gramme de diffusion $g(\mu)$ et sur le taux de polarisation; elle met en évidence une différence de comportement assez nette des particules, lorsqu'on quitte la région des faibles α , où la théorie de Rayleigh-Gans est applicable, pour la région où la théorie de Mie est indispensable; la limite entre ces deux domaines peut se situer aux valeurs de α telles que β_1 devienne supérieur à β_2 , c'est-à-dire sensiblement, lorsque le terme dipolaire perd sa prédominance dans le mode de diffusion.

Enfin, pour les valeurs élevées de α , le coefficient d'extinction ν semble au contraire devenir stationnaire et ne plus dépendre des dimensions exactes des particules.

2) Influence de la polarisation

On a également calculé les valeurs de ν en négligeant la polarisation et en procédant comme indiqué plus haut. Il apparaît que le coefficient d'extinction ainsi obtenu est systématiquement plus grand que le coefficient exact, mais s'en écarte de façon négligeable. La comparaison des deux méthodes avait déjà été faite dans le cas de la diffusion Rayleigh [24] ; l'approximation faite en négligeant la polarisation se révèle d'autant meilleure que α est plus grand. On a représenté sur la figure (II.4) l'erreur relative $\Delta\nu / \nu$ ainsi commise. A α donné cette erreur est maximum aux environs de $\omega_0 = 0,800$, mais on voit que, hors du domaine des très petites particules, elle devient tout-à-fait négligeable. Pour $\alpha > 4$, on a déjà $\Delta\nu / \nu < 10^{-4}$.

3) Influence du développement de la fonction de phase

Pour un ω_0 et une fonction de phase donnés, la valeur de ν apparaît comme dépendant essentiellement des valeurs des tous premiers coefficients β_1 de l'indicatrice, et d'eux seuls. On vient de voir que les coefficients α_1 et γ_1 n'intervenaient que très faiblement. De plus, lorsqu'on calcule ν en faisant $g_{2L} = 0$, donc en ne tenant compte que des $2L$ premiers coefficients β_1 , on constate que la convergence de ν vers sa valeur exacte est extrêmement rapide, et sauf pour les très faibles valeurs de ω_0 ($\omega_0 < 0,100$ ou $0,200$), on obtient ν avec trois décimales exactes pour une

approximation d'ordre 4 ou 6 (par ε_4 ou $\varepsilon_6 = 0$).

Cette remarque montre d'abord que, en ce qui concerne tout-au-moins le régime asymptotique, la meilleure approximation du phénomène exact est obtenue lorsqu'on réalise, avec la fonction de phase utilisée, la meilleure approximation en moyenne quadratique de la fonction de phase réelle; c'est-à-dire, si l'on choisit de représenter $p(\theta)$ par des polynômes de Legendre, lorsqu'on prend les coefficients β_1 exacts. Si donc on désire alléger les calculs numériques en raccourcissant le développement de la fonction de phase, tout en conservant la représentation en $P_1(\mu)$, il semble inutile de chercher à adapter les coefficients des polynômes pour respecter, par exemple, le rapport diffusion avant sur diffusion arrière, et le plus avantageux est sans doute de conserver les coefficients exacts, en limitant simplement l'ordre du développement.

L'influence prépondérante des premiers coefficients β_1 sur la valeur de ν présentera d'autre part une simplification importante si l'on étudie le transfert, en profondeur, dans un milieu présentant des bandes d'absorption mais où la diffusion est due à des particules relativement grosses. En effet, la courbe $\nu = f(\omega_0)$ sera alors indépendante de la longueur d'onde, puisque les premiers β_1 sont pratiquement indépendants de α , et il suffira de calculer pour chaque longueur d'onde les coefficients de diffusion et d'absorption, et donc ω_0 , pour connaître le coefficient d'extinction à cette longueur d'onde, à partir de la courbe $\nu = f(\omega_0)$.

II - Diagramme de la luminance diffuse

1) Allure générale

Pour une indicatrice donnée, le diagramme $g(\mu)$ se déforme régulièrement lorsque ω_0 varie. La figure (II.5) donne, dans le cas de $\alpha = 3$, quelques-uns de ces diagrammes, arbitrairement ramenés à une même valeur pour la direction $\theta = \pi$ (maximum de la luminance). Pour $\omega_0 = 1$, on aurait une luminance isotrope avec $g(\mu) = 1$; le diagramme présente ensuite une anisotropie qui augmente avec l'importance de l'absorption.

On peut également comparer, à un même ω_0 , les diagrammes correspondant à diverses dimensions de particules. Les figures (II.6) et (II.7) donnent ces comparaisons, respectivement pour $\omega_0 = 0,750$ et $\omega_0 = 0,550$. On constate que la forme du diagramme est nettement différente pour les très faibles dimensions de particules, mais la dissymétrie des courbes reste globalement liée à celle des fonctions de phase, et croît avec les dimensions des particules.

2) Influence de la polarisation

Comme pour ν , on a calculé également les diagrammes de luminance diffuse en ne tenant pas compte de la polarisation. On constate encore que cette approximation est excellente et s'approche du résultat exact avec une précision très supérieure à la précision habituelle des mesures de luminance, sauf pour les très petites valeurs de α ($\alpha < 2$) ou pour des taux d'absorption très élevés ($\omega_0 < 0,100$ ou $0,200$). Les figures (II.8) et (II.9) représentent, en fonction de l'angle, l'écart relatif $\Delta g(\mu) / g(\mu)$, obtenu avec la méthode approchée, la comparaison étant faite sur les diagrammes normalisés ($g_0 = 1$). Sur la figure (II.8), les courbes correspondent toutes au même ω_0 ($\omega_0 = 0,550$) et à diverses valeurs de α . L'écart ne dépasse pas 10 % dans les cas les plus défavorables, et devient négligeable pour $\alpha > 2$. Sur la figure (II.9) on a porté les écarts pour une valeur fixe de α ($\alpha = 3$), le paramètre étant ω_0 . L'erreur augmente un peu avec l'absorption, mais reste principalement localisée au voisinage de $\theta = 0^\circ$, où la luminance est minimum, ce qui réduit encore l'importance de cette erreur pour un calcul de flux, par exemple.

III - Taux de polarisation

Récapitulons enfin les résultats obtenus pour la composante polarisée de la luminance diffuse. Plutôt que l'intensité polarisée elle-même, on a préféré calculer le taux de polarisation, $Q(\tau, \mu) / I(\tau, \mu) = h(\mu) / g(\mu)$, qui reste toujours du même ordre de grandeur et se prête mieux aux comparaisons. A titre d'exemple, les figures (II.10) et (II.11) montrent les variations de $h(\mu) / g(\mu)$, en fonction de θ , la première, pour divers α et pour le même ω_0

$\omega_0 = 0,550$, la seconde, pour divers ω_0 et pour le même $\alpha = 5$. Le dépouillement des résultats met en évidence quelques lois générales auxquelles le taux de polarisation satisfait, tout-au-moins dans la zone des α étudiée.

. De façon quasi générale, la composante rectiligne polarisée est horizontale (soit $h(\mu) < 0$, ou $I_r > I_l$). On observe toutefois, pour les valeurs 7 et 8 de α un changement du plan de polarisation et l'existence de faibles polarisations verticales pour le rayonnement descendant.

. Pour une matrice de diffusion donnée, le taux de polarisation, nul en milieu conservatif, augmente régulièrement avec l'absorption, son diagramme en fonction de l'angle considéré, gardant sensiblement la même forme.

. Le maximum du taux de polarisation, localisé à $\pi/2$ en diffusion Rayleigh, est ensuite systématiquement décalé vers les angles plus faibles (directions du rayonnement montant). La position de ce maximum varie par ailleurs légèrement avec ω_0 pour un milieu donné.

. Enfin, pour un même ω_0 , l'importance et le diagramme du taux de polarisation varient d'abord assez vite, lorsque α passe de 0 à 3, mais semblent ensuite se stabiliser et évoluer continuellement et lentement, malgré les oscillations des γ_1 .

En conclusion, négliger les phénomènes de polarisation dans le calcul de la luminance totale apparaît ici comme une excellente approximation, bien que le taux de polarisation du rayonnement diffus soit important. La simplification n'affecte pratiquement pas la valeur de ν et ne perturbe sensiblement le diagramme $g(\mu)$ que pour les directions ascendantes, où la luminance est minimum. On obtient donc avec une très bonne précision les caractéristiques énergétiques essentielles du transfert, c'est-à-dire le coefficient d'extinction et le flux énergétique. La validité de cette approximation, et les difficultés expérimentales soulevées d'autre part par des mesures de polarisation, font qu'on s'est contenté, dans une première approche du problème, de mesures portant sur la luminance totale. Il n'en reste

pas moins qu'une étude expérimentale et théorique du taux de polarisation, pour lui-même, est à poursuivre; et en particulier, il serait intéressant d'étudier les variations du plan de polarisation, pour des valeurs de α beaucoup plus grandes, ce qui nécessiterait une transformation du programme de calcul numérique, la longueur des développements alors rencontrés présentant de nouvelles difficultés, en dépit de la convergence relativement rapide des résultats.

TROISIEME PARTIE

ETUDE EXPERIMENTALE
DE LA FONCTION DE PHASE

A - INTRODUCTION

Etant donné un milieu diffusant réel constitué de particules sphériques, celles-ci sont en général de dimensions variables, et présentent une distribution statistique autour d'un diamètre moyen. Il suffit donc, en principe, de déterminer cette distribution, ou granulométrie, et de connaître l'indice de la matière dont sont constituées les particules, pour pouvoir calculer la matrice de phase du milieu, en utilisant les résultats établis dans la première partie. On a vu ensuite, dans la deuxième partie, comment en déduire les caractéristiques du régime asymptotique. Mais nous allons voir que la connaissance de la granulométrie du milieu, bien que constituant une donnée précieuse, ne peut permettre d'établir avec précision la matrice de phase que dans des conditions idéales.

Le milieu étudié est réalisé par une mise en suspension des particules diffusantes dans l'eau; pour éviter alors les phénomènes de décantation, on est limité à des particules petites, de l'ordre de quelques dixièmes de micron de diamètre. D'autre part, pour des raisons évidentes de facilité d'éclairage du milieu et de détection de la lumière diffusée, on travaille dans le spectre visible. Ce choix de longueurs d'ondes et de dimensions entraîne que les paramètres α caractérisant nos dispersions seront compris environ entre 1 et 10, c'est-à-dire dans une zone où les coefficients de $\underline{P}(\theta)$ varient vite. Par ailleurs, pour d'aussi faibles dimensions des particules, l'établissement de la granulométrie ne peut se faire qu'au moyen de photographies par microscope électronique; on reviendra sur les difficultés de cette méthode d'investigation, mais disons que sa précision est limitée et que le comportement des particules sous le faisceau d'électrons pose a priori des problèmes de stabilité [25]. On voit que l'établissement de $\underline{P}(\theta)$ suivant la méthode logiquement préconisée plus haut présente de sérieuses causes d'indétermination. De plus, comme nous utilisons dans notre

étude du régime asymptotique des colorants, ajoutés aux suspensions diffusantes pour en faire varier l'absorption, il risque de se produire entre les produits mélangés des réactions, susceptibles de modifier la matrice de phase. Enfin, on sait [26] que des suspensions comme celles que nous utilisons présentent toujours une légère tendance à l'agglomération; mais l'étude de la probabilité de rencontres des doublets, triplets ... de particules n'est réalisable que sur des sphères observables au microscope ordinaire, et de toute façon, on voit mal quelles matrices de phase et quels coefficients de diffusion attribuer, en théorie, à ces agglomérats.

Ces remarques montrent qu'il nous était nécessaire de pouvoir déterminer expérimentalement la matrice de phase du milieu étudié, pour contrôler la validité des calculs basés sur la granulométrie, tester l'influence possible de l'addition de colorants et vérifier la stabilité des produits dans le temps. On a donc essayé de mettre au point une méthode de mesure nous donnant directement les caractéristiques de diffusion primaire du milieu, tel qu'il se présentait dans les manipulations. On ne s'est d'ailleurs intéressé qu'à la partie de $\underline{P}(\theta)$ régissant l'intensité totale diffusée, c'est-à-dire à la fonction de phase $p(\theta)$, suffisante pour rendre compte des phénomènes de transfert asymptotique, avec une très bonne précision (voir deuxième partie).

On remarquera que ce qu'on se propose revient à vérifier la théorie de Mie sur l'ensemble du diagramme $p(\theta)$, pour des valeurs de α allant de 1 à 10 environ. Cette vérification présente des difficultés certaines, et à notre connaissance, n'a jusqu'à présent pas encore été faite. Des mesures de ce type sont courantes en chimie des macro-molécules [27]; mais il s'agit alors de particules extrêmement petites ($\alpha < 1$) pour lesquelles la fonction $p(\theta)$, calculable par l'approximation de Rayleigh-Gans, est peu dissymétrique. Dans la zone où nous opérons les mesures sont moins nombreuses et moins concluantes. Nous en reparlerons plus loin dans la discussion.

Définissons maintenant les grandeurs que nous utiliserons pour caractériser les suspensions étudiées. Avec les notations définies dans la première partie, nous écrirons que, sous un faisceau incident parallèle, d'éclairement E_0 , un élément de volume dv diffuse, dans une direction faisant

l'angle θ avec la direction d'incidence, l'intensité énergétique :

$$(III.1) \quad j(\theta) = \frac{k \, dv}{4 \pi} p(\theta) E_0$$

La fonction de phase $p(\theta)$ est alors normalisée avec :

$$(III.2) \quad \int_0^{2\pi} \int_{-1}^{+1} p(\theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi = 4\pi \quad ,$$

soit :

$$(III.3) \quad \beta_0 = 1 \quad ,$$

si on développe $p(\theta)$ sous la forme :

$$(III.4) \quad p(\theta) = \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l P_l(\cos \theta) \quad .$$

Nous supposons toujours, par la suite, que les ondes diffusées par les différentes particules sont incohérentes, les particules étant réparties au hasard et à des distances réciproques largement supérieures à leurs dimensions. L'intensité détectée est alors la somme des intensités diffusées par chacune des particules.

Si le milieu contient, par unité de volume, N particules sphériques monodispersées, de même rayon r , d'indice m et de section efficace de diffusion $K(m, r, \lambda)$, le coefficient de diffusion k , dans (III.1), s'écrit :

$$(III.5) \quad k = N \pi r^2 K(m, r, \lambda) \quad ,$$

et la fonction de phase $p(\theta)$ est celle des particules considérées :

$$(III.6) \quad p(\theta) = \sum_{l=0}^{\infty} \beta_{l(m, r, \lambda)} P_l(\cos \theta) \quad .$$

Plus généralement, les particules, toujours supposées sphériques, seront polydispersées. Soit $N(r)dr$ le nombre de particules de rayon compris entre r et $r+dr$, contenues dans l'unité de volume de la suspension. La fonction $N(r)$ définit, à une constante près, la granulométrie du milieu. La densité en particules est :

$$(III.7) \quad N = \int_0^{\infty} N(r) dr .$$

En l'absence de relations de phase, l'intensité diffusée dans la direction θ par un élément de volume dv est ici :

$$(III.8) \quad j(\theta) = \frac{dv E_0}{4 \pi} \int_0^{\infty} \pi r^2 K(m,r,\lambda) N(r) \left\{ \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l(m,r,\lambda) P_l(\cos \theta) \right\} dr .$$

On voit donc que, pour le milieu polydispersé, l'intensité diffuse est encore donnée sous la forme (III.1) en prenant :

$$(III.9) \quad k = \int_0^{\infty} \pi r^2 K(m,r,\lambda) N(r) dr ,$$

pour coefficient de diffusion du milieu; la fonction de phase est développée suivant (III.4) avec :

$$(III.10) \quad \beta_1 = \frac{1}{k} \int_0^{\infty} \pi r^2 K(m,r,\lambda) \beta_1(m,r,\lambda) N(r) dr .$$

Remarque: Dans toute cette partie, pour éviter de confondre le coefficient d'extinction totale du milieu, $K = k+b$, avec la section efficace de diffusion des particules, $K(m,r,\lambda)$, on spécifiera toujours la dépendance de ce dernier coefficient en m , r et λ .

B - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

L'appareil utilisé pour mesurer la fonction $p(\theta)$ est un diffusiomètre, construit par la maison AMINCO, et prévu, en principe, pour des mesures de diffusion moléculaire. Il répond néanmoins assez bien à nos besoins. On en a donné figure (III.1) le schéma de principe.

I - Eclairage.

- La source lumineuse est une lampe haute pression à vapeur de mercure (L).
- Un condenseur (A) en focalise la lumière au niveau du diaphragme (D_2), le faisceau passant auparavant à travers un premier diaphragme (D_1).
- Une série de filtres (F), montés sur un support tournant, permet de sélectionner l'une des raies intenses du mercure (365 , 405, 436, 546, 578 m μ).
- Des filtres gris (B) permettent d'atténuer de 10^{-2} à 10^{-8} fois l'éclairement incident.
- On peut également interposer sur le trajet du faisceau un polaroïde (P), pour des mesures en polarisation.
- Le faisceau traverse enfin la lentille de champ (L_1), achromatique.

Tout ce bloc d'éclairage est enfermé dans un premier compartiment étanche (I), qui le met à l'abri de la lumière parasite extérieure et des poussières de l'air. Les dimensions et positions de (D_1), (D_2) et (L_1) déterminent la structure du faisceau incident, qui pénètre dans la chambre de diffusion (II) lorsqu'on ouvre l'obturateur (R).

II - Détection.

Dans le compartiment (II) de l'appareil, se trouvent :

- un ensemble de diaphragme (D_0), limitant la lumière parasite,
- un support (S), de centre O, placé sur le trajet du faisceau éclairant, et sur lequel on placera la cuve (C) contenant le milieu étudié,
- une platine circulaire horizontale (E), tournant autour d'un axe passant par O, et graduée en degrés sur son pourtour. Cette platine est manoeuvrée de l'extérieur où l'on fait, en M, la lecture de l'angle de rotation,
- le bloc de détection, solidaire de la platine (E). Il est constitué, dans l'ordre en partant de O :
 - d'une lentille de champ achromatique (L_2),
 - d'un diaphragme amovible (D_3),
 - d'un diaphragme fixe (D_4),
 - d'un verre dépoli (V),
 - et d'un photomultiplicateur (P.M.) type 1 P21 de R.C.A.,
 - pour des mesures en polarisation, on peut encore placer devant le P.M. un polaroïde (P'), comme analyseur.

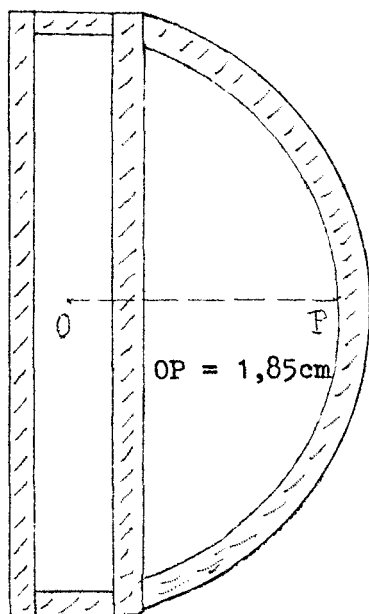


Figure (III.2)

Le verre dépoli est nécessaire pour dépolariser la lumière diffuse détectée par le photomultiplicateur, la réponse de celui-ci variant légèrement avec le plan de polarisation de la lumière qu'il reçoit. L'alimentation du photomultiplicateur et la détection de son courant se font à l'extérieur.

La cuve (C) est en silice. La figure (III.2) en donne une coupe horizontale. Sa hauteur est de 6 cm, son indice moyen 1,52. Elle comprend deux compartiments, séparés par une lame mince transparente à faces parallèles. Le compartiment parallélépipédique est rempli de la suspension étudiée. Il est placé sur le trajet du faisceau incident dont le parallélisme

est conservé par la face d'entrée plane. Le second compartiment, hémicylindrique, sera rempli d'eau pure ou de suspension diffusante. Il ne reçoit pas de lumière directement de la source; tourné vers le photomultiplicateur, il permet simplement l'émergence des rayons diffusés dans toutes les directions.

C - FACTEUR D'APPAREIL - MESURE ABSOLUE DE $p(\theta)$

I - Estimation théorique du flux détecté.

Soit V le volume diffusant délimité, dans le compartiment parallélépipédique de la cuve, par l'intersection du faisceau éclairant et du faisceau atteignant le photomultiplicateur.

Soient, en un point M de V , $\Delta\Omega_I(M)$ et $\Delta\Omega_D(M)$, respectivement, les angles solides d'ouverture de ces deux faisceaux.

L'angle formé par les directions moyennes de ces faisceaux, et lu sur la platine (E), est l'angle moyen de diffusion θ . Remarquons que cet angle est limité :

- vers l'arrière, à $\theta < 135^\circ$, en raison de l'encombrement du détecteur,
- et vers l'avant, à $\theta > 20^\circ$, par la présence de la lame séparatrice de la cuve.

Appelons enfin $I_o(M, \vec{s})$ la valeur, à son entrée dans la cuve, de la luminance incidente arrivant en M dans la direction \vec{s} .

Laissons de côté, dans une première évaluation, les réflexions sur les parois de la cuve. Dans une visée suivant l'angle θ , les diffusions pri-

maires à l'intérieur de V envoient alors sur le photomultiplicateur le flux :

$$(III.11) \quad \Phi(\theta) = \int_V \frac{k \, dv}{4 \pi} \left[\int_{\Delta\Omega_I(M)} T_1(M, \vec{s}) I_0(M, \vec{s}) \, d\omega_I \left[\int_{\Delta\Omega_D(M)} T_2(M; \vec{s}') p(\vec{s}, \vec{s}') \, d\omega_D \right] \right]$$

Les facteurs de transmission $T_1(M, \vec{s})$ et $T_2(M, \vec{s}')$ expriment les atténuations respectives du faisceau incident et du faisceau diffusé dans leurs trajets à travers la cuve; les éléments d'angles solides $d\omega_I$ et $d\omega_D$ sont pris autour des directions d'incidence \vec{s} et de diffusion \vec{s}' en M.

Le calcul exact de $\Phi(\theta)$ à partir de cette équation est hors de question, et dépendrait d'ailleurs de la connaissance, à priori, de $p(\theta)$; mais sa considération pourra nous guider dans le choix et l'évaluation des approximations successives que nous allons devoir faire pour étudier le fonctionnement de l'appareil.

II - Géométries des faisceaux.

1) Faisceau éclairant

Par construction, les diaphragmes (D_1) et (D_2) sont fixes, et (L_1) translatable le long de l'axe du faisceau. La cuve étant enlevée du support (S), on place en O, perpendiculairement au faisceau, un mince verre dépoli sur lequel on forme l'image (D_1') de (D), en réglant le tirage de la lentille (L_1); on obtient ainsi un éclaircissement sensiblement uniforme dans la zone où se fait la mesure. La cuve, remplie du milieu étudié, étant remise en place, la géométrie du faisceau incident en un point M de V est déterminée par les images finales (D_1'') et (D_2'') de (D_1) et (D_2) à travers la lentille (L_1) et le double dioptré plan d'entrée de la cuve.

On a par construction :

- pour (D_1) : hauteur = 1,45 cm ; largeur = 0,1 cm.
- pour (D_2) : hauteur = 0,6 cm ; largeur = 0,25 cm.
- pour (L_1) : distance focale = 8,25 cm.

De plus, lorsque le réglage de (L_1) est réalisé, on a :

- $\overline{D_1 L_1} = 13,5$ cm
- $\overline{D_2 L_1} = 5,9$ cm
- $\overline{L_1 O} = 21,3$ cm

les distances étant comptées avec, pour sens positif, le sens de propagation de la lumière.

On aura alors pour les images (D_1'') et (D_2'') cherchées :

- (D_2'') : hauteur = 2,2 cm ; largeur = 1,1 cm ; $\overline{D_2'' O} = 55,25$ cm.
- (D_1'') : hauteur = 2,2 cm ; largeur = 0,2 cm ; $\overline{D_1'' O} = -0,75$ cm.

En un point M de V, le faisceau éclairant est donc contenu dans un cône de section rectangulaire dont on notera $\Delta\phi_h(M)$ et $\Delta\phi_v(M)$ les angles d'ouverture horizontal et vertical, soit $\Delta\Omega_1(M) = \Delta\phi_h(M) \cdot \Delta\phi_v(M)$. Caractérisons M par ses coordonnées dans le trièdre direct trirectangulaire $(0, x, y, z)$; on prendra l'origine en O, l'axe Ox suivant la direction moyenne de propagation de la lumière incidente et l'axe Oz suivant la verticale ascendante. Les figures (III.3.(a) et (b)) donnent respectivement les coupes verticale et horizontale, du compartiment d'entrée de la cuve, sur lesquelles on a tracé les limites des régions éclairées.

- Si la projection de M sur xOz est dans la zone centrale de la figure (III.3(a)) , on a :

$$\Delta\phi_v(M) = 0,0410 / (1 + 0,018x); \text{ soit, au centre : } \Delta\phi_v(O) = 2^\circ 18' ,$$

(III.12)

$$\alpha_z(M) \neq 0,018z ,$$

$\alpha_z(M)$ étant l'angle que fait avec Ox la bissectrice de $\Delta\phi_v(M)$. Dans les zones triangulaires, $\Delta\phi_v(M)$ tend linéairement vers zéro.

- De même, si la projection de M sur xOy est dans la zone centrale de la figure (III.3(b)), on a :

$$\Delta\phi_h(M) = 0,0205/(1+0,018x); \text{ soit, au centre : } \Delta\phi_h(0) = 1^{\circ}9',$$

(III.13)

$$\alpha_y(M) \neq 0,018 y ,$$

$\alpha_y(M)$ étant l'angle que fait la bissectrice de $\Delta\phi_h(M)$ avec Ox. $\Delta\phi_h(M)$ tend linéairement vers zéro dans les régions de coupe triangulaire.

2) Faisceau détecté

Les distances seront comptées positivement dans le sens de la propagation de la lumière diffuse, et on définira un trièdre direct (0,x',y',z'), avec Oz' suivant la verticale ascendante et Ox' suivant l'axe moyen de visée du photomultiplicateur.

On a par construction :

- (D₃) : hauteur = 1,016 cm; largeur = 0,404 cm.
- (D₄) : hauteur = 1,016 cm; largeur = 0,404 cm.
- (L₂) :: distance focale = 6,3 cm.
- $\overline{L_2 D_3}$ = 0,85 cm.
- $\overline{L_2 D_4}$ = 8,20 cm.
- $\overline{L_2 O}$ = - 3,6 cm.

L'onde sphérique diffusée par une particule atteint le photomultiplicateur en traversant le double dioptré cylindrique de la face de sortie de la cuve, puis en s'appuyant sur les images (D'₃) et (D'₄) de (D₃) et (D₄) dans (L₂). Le faisceau diffus quittant M est encore un cône de section rectangulaire.

Son ouverture angulaire horizontale, $\Delta\theta_h(M)$, s'obtient en considérant un faisceau plan horizontal issu de M, qui subit, à la sortie de la

cuve, deux réfractions dans des dioptres sphériques. Il suffit donc de considérer les images (l_3'') et (l_4''), dans ces dioptres, des côtés horizontaux de (D_3') et (D_4'). On trouve :

$$\begin{aligned} - (l_3'') &= 0,75 \text{ cm et } \overline{Ol_3''} = + 7,35 \text{ cm.} \\ - (l_4'') &= 0,27 \text{ cm et } \overline{Ol_4''} = - 4,72 \text{ cm.} \end{aligned}$$

La figure (III.4(b)) donne une coupe horizontale de la cuve. On déduit de ce qui précède qu'en un point M, se projetant sur $x'Oy'$ dans la zone triangulaire de sommet O' , on aura :

$$\Delta\theta_h(M) = 0,057/(1+0,21x'); \text{ soit, au centre : } \Delta\theta_h(0) = 3^{\circ}16',$$

(III.14)

$$\beta_y'(M) \neq 0,21 y'/(1+0,21x'),$$

$\beta_y'(M)$ étant l'angle que fait la bissectrice de $\Delta\theta_h(M)$ avec Ox' ; $\Delta\theta_h(M)$ tend linéairement vers zéro dans les régions latérales.

Pour déterminer l'ouverture verticale, $\Delta\theta_v(M)$, on considère un faisceau plan vertical issu de M, qui rencontre à la sortie deux dioptres plans. En toute rigueur, la distance de M à ces dioptres variant légèrement avec l'inclinaison sur Ox' du faisceau considéré, cette ouverture angulaire n'est pas constante sur $\Delta\theta_h(M)$; mais ses variations ne dépassant pas 0,5 % seront négligées, et on considérera que $\Delta\theta_v(M)$ ne dépend que de M. Les images (h_3'') et (h_4''), dans ces dioptres plans, des côtés verticaux de (D_3') et (D_4') sont donnés par :

$$\begin{aligned} - (h_3'') &= 1,2 \text{ cm; } \overline{Oh_3''} = + 5,40 \text{ cm.} \\ - (h_4'') &= 3,4 \text{ cm; } \overline{Oh_4''} = - 33,70 \text{ cm.} \end{aligned}$$

En un point M se projetant sur $x'Oz'$ dans la zone centrale de la coupe verticale, donnée figure (III.4(a)), on a :

$$\Delta\theta_v(M) = 0,101/(1+0,30x'); \text{ soit, au centre : } \Delta\theta_v(0) = 5^{\circ}50',$$

(III.15)

$$\beta_z'(M) \neq 0,03z',$$

où $\beta_{z'}(M)$ est l'angle formé avec Ox' par la bissectrice de $\Delta\theta_V(M)$; enfin $\Delta\theta_V(M)$ tend linéairement vers zéro dans les zones latérales.

III - Facteur d'appareil - Mesure absolue de $p(\theta)$.

1) Volume diffusant et champs angulaires équivalents

Il résulte de l'étude géométrique précédente que les caractéristiques angulaires intervenant dans (III.11) varient, sur l'ensemble du volume V :

- ou bien linéairement, dans les zones frontières des faisceaux,
- ou bien très faiblement, en x, y, z, x', y' ou z' , dans le volume central.

Nous ferons un calcul approché de $\Phi(\theta)$, au second ordre près, en supposant d'abord que $p(s, s')$ est peu dissymétrique et donc quasi-linéaire sur l'intervalle total d'intégration. On se placera d'autre part dans le cas le plus défavorable, c'est-à-dire tel que les variations de x et x' soient maximum. Ce sera pour la direction de visée la plus voisine de la direction d'incidence, soit pour $\theta = 20^\circ$. Par superposition des coupes horizontales ou verticales des figures (III.3) et (III.4), on voit alors que l'on a :

- $1 \text{ cm} < x' < +1 \text{ cm}$ et - $1 \text{ cm} < x < +1 \text{ cm}$.
- $0,5 \text{ cm} < z' < +0,5 \text{ cm}$ et - $0,5 \text{ cm} < z < +0,5 \text{ cm}$.
- $0,25 \text{ cm} < y' < +0,25 \text{ cm}$. - $0,1 \text{ cm} < y < +0,1 \text{ cm}$

On peut donc, avec une bonne précision, ne conserver que les termes du 1er ordre en x, y, z, x', y' et z' dans les développements des formules (III.12) à (III.15), ce qui donne :

$$\Delta\phi_h(M) = 0,0205 (1-0,018x) \text{ et } \alpha_y(M) = 0,018y$$

$$\Delta\phi_v(M) = 0,0410 (1-0,18x) \text{ et } \alpha_z(M) = 0,018z$$

(III.16)

$$\Delta\theta_h(M) = 0,0570 (1-0,20x') \text{ et } \beta_{y'}(M) = 0,21y'$$

$$\Delta\theta_v(M) = 0,101 (1-0,03x') \text{ et } \beta_{z'}(M) = 0,03z'.$$

La luminance $I_0(M, \vec{s})$ est très sensiblement uniforme sur une section droite du faisceau incident. De plus, dans l'angle infiniment petit $\Delta\Omega_I(M)$ on pourra admettre que la source émet suivant la loi de Lambert, avec $I_0(M, \vec{s}) = I_0(M)$; et finalement, on ne retiendra que la valeur moyenne I_0 de la luminance, qu'on mesurera par transmission (cf. plus loin "Mesure de I_0 ").

Les facteurs $T_1(M, \vec{s})$ et $T_2(M, \vec{s}')$ sont de la forme e^{-Kl} , où l désigne la distance parcourue dans le milieu par un rayon incident ou diffusé relatif à M . Si le milieu ne présente pas d'absorption propre, le coefficient K dans l'exponentielle est égal au coefficient de diffusion k ($\omega_0 = 1$). Pour un point M fixé, et quel que soit z pour x et y fixés, l ne subit que des variations du second ordre par rapport aux angles d'ouverture en M . On considérera donc $T_1(M, \vec{s})$ et $T_2(M, \vec{s}')$ comme indépendants de z et des variations de \vec{s} et \vec{s}' dans $\Delta\Omega_I(M)$ et $\Delta\Omega_D(M)$. Evaluons alors le produit $T_1(M) \cdot T_2(M) = T(M)$. On aura (cf. figure(III.5)):

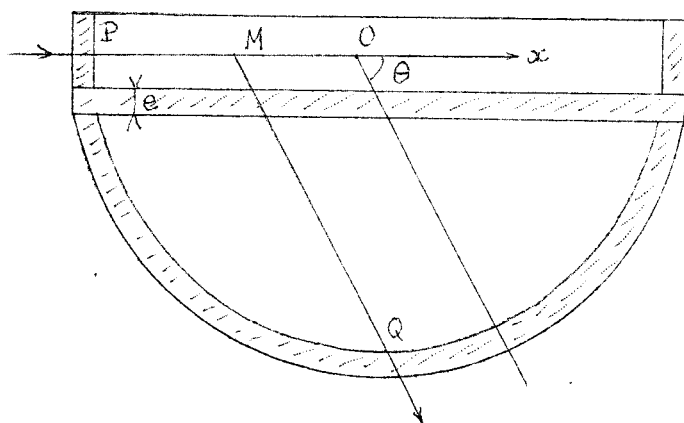


Figure (III.5)

$$T(M) = e^{-K \cdot PM} \cdot e^{-K(MQ - e/\sin\theta)}$$

$$T(M) = e^{-2KR} \cdot e^{Ke/\sin\theta} \cdot e^{-Kx(1-\cos\theta)}$$

en appelant e l'épaisseur de la lame séparatrice et avec $PM = R + x$ et $MQ \sim R - x' \sim R - x\cos\theta$ au 2ème ordre près en y'/R .

On verra plus loin que nous serons amenés à extrapoler nos mesures

à une dilution infinie du milieu, ce qui éliminera systématiquement l'influence de ce facteur de transmission. Néanmoins, compte tenu de la forme de $T(M)$, on peut le considérer comme linéaire en x , à mieux que 1 %, si la concentration est telle que l'on ait :

$$(III.17) \quad K < 0,1 / (1 - \cos \theta) \quad (\text{en cm}^{-1}) .$$

Si, comme on l'a dit plus haut, on considère des fonctions $p(\theta)$ quasi-linéaires sur l'intervalle d'intégration (de l'ordre de 5° à 6° au maximum autour de la direction moyenne θ), on aura :

$$\int_{\Delta\Omega_I(M)} \int_{\Delta\Omega_D(M)} p(\vec{s}, \vec{s}') d\omega_I d\omega_D \sim \Delta\Omega_I(M) \Delta\Omega_D(M) \cdot p(\theta(M))$$

où $\theta(M)$ est l'angle que font en M les directions moyennes de $\Delta\Omega_I(M)$ et $\Delta\Omega_D(M)$; I_0 et $T(M)$ étant indépendants de \vec{s} et \vec{s}' , l'expression (III.10) prendra la forme :

$$(III.18) \quad \Phi(\theta) = \frac{k}{4\pi} \iiint_V I_0(M) T(M) \cdot \Delta\Omega_I(M) \Delta\Omega_D(M) p(\theta(M)) dv .$$

Finalement, l'expression à intégrer se réduit à un produit :

$$(III.19) \quad \prod_{i=1}^N G_i(M)$$

dans lequel, compte tenu de (III.16), et si la condition (III.17) est respectée, les différentes grandeurs $G_i(M)$ présentent, par rapport aux variables d'intégration u , ($u=x, y \dots z'$), des variations du type (1) sur la figure (III.6) avec :

$$G_i(u) = G_i^0 (1 + \epsilon_i^{(u)} u) \text{ si } -a < u < +a, \text{ et } \epsilon_i^{(u)} \text{ petit,}$$

et éventuellement une décroissance linéaire pour $a < u < b$, correspondant

aux zones latérales des faisceaux.

La symétrie du problème et la forme (III.19) montrent donc qu'on aura une valeur approchée de $\phi(\theta)$, au 2ème ordre près en $\epsilon_1(u)$, et donc assez bonne, en remplaçant dans (III.18) les différents $G_i(M)$ par des grandeurs $G'_i(M)$ variant sur V suivant la forme symétrique (2) sur la figure (III.6). L'intégration est alors sans difficulté.

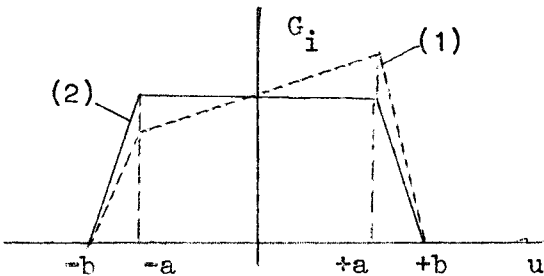


Figure (III.6)

Les seules grandeurs $G_i(M)$ présentant sur V des zones de décroissance linéaire sont les ouvertures angulaires $\Delta\theta_h(M)$, $\Delta\theta_v(M)$ et $\Delta\phi_h(M)$ (le faisceau détecté n'apercevant jamais les bords supérieurs de la zone éclairée $\Delta\phi_v(M)$ garde sa valeur maximum). Toutes les autres grandeurs seront donc constantes sur V , à notre approximation, avec :

$$G'_i(M) = G_i^0,$$

et sortent de l'intégrale; on aura :

$$I'_0(M) = I_0$$

$$T'(M) = \exp[-K (2R-e/\sin\theta)]$$

$$p'(\theta) = p(\theta)$$

$$\Delta\phi'_v(M) = \Delta\phi_v(o)$$

et (III.18) devient :

$$(III.20) \quad \tau(e) = \frac{k}{4\pi} I_0 \Delta\phi_v(o) \cdot p(\theta) \exp[-K (2R-e/\sin\theta)] \times$$

$$\int_V \Delta\theta_v(M) \Delta\theta_h(M) \Delta\phi_h(M) dv.$$

Intégrons sur z ; seul $\Delta\theta_V(M)$ varie et tend linéairement vers zéro sur AB et CD, en restant constant et égal à $\Delta\theta_V(x')$ sur BC (cf. figure (III.7)).

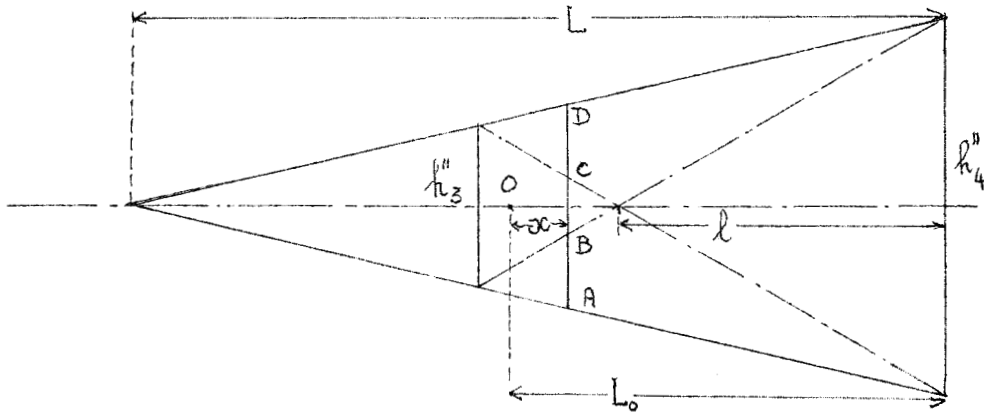


Figure (III.7)

L'intégration revient à limiter le faisceau à une hauteur équivalente :

$$H_e(x') = BC + \frac{AB+CD}{2} = \frac{AD+BC}{2} ,$$

sur laquelle en tous les points l'ouverture angulaire aurait la même valeur maximum $\Delta\theta_V(x')$. On montre facilement que le produit $H_e(x') \cdot \Delta\theta_V(x')$, où

$\Delta\theta_V(x') = h_4'' / (L_0 - x')$, est indépendant de x' (conservation du flux) et vaut avec les notations de la figure (III.7);

$$(III.21) \quad H_e(x') \Delta\theta_V(x') = \frac{h_4''}{2} \cdot \frac{L-1}{L1} = H_e \Delta\theta_V(0) ,$$

en posant :

$$(III.22) \quad H_e = \frac{h_4''}{2} L_0 \cdot \frac{L-1}{L1} = 1,04 \text{ cm.}$$

Il reste enfin à intégrer, sur la section S du volume V dans le

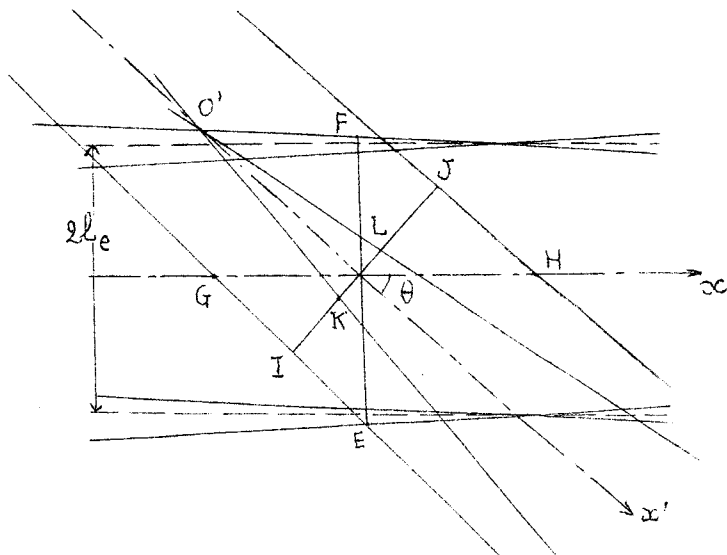


Figure (III.8)

plan xoy, le produit $\Delta\phi_h(M) \cdot \Delta\theta_h(M)$; les deux grandeurs décroissant linéairement dans les zones frontières.

Au second ordre près on aura :

$$\iint_S \Delta\theta_h(M) \cdot \Delta\phi_h(M) ds \sim \left[\int_E^F dy \Delta\phi_h(M) \right] \times \left[\int_G^H dx \Delta\theta_h(M) \right]$$

Ou encore :

$$(III.23) \iint_S \Delta\phi_h(M) \cdot \Delta\theta_h(M) \cdot ds \sim \frac{1}{\sin\theta} \left[\int_E^F \Delta\phi_h(M) dy \right] \left[\int_I^J \Delta\theta_h(M) dy' \right]$$

En procédant comme plus haut pour $\Delta\theta_v(x) H_e(x)$, on obtiendra pour le 2ème membre de (III.23) :

$$(III.24) \frac{1}{\sin\theta} 2l_e \Delta\phi_h(o) 2L_e \Delta\theta_h(o)$$

où :

$$(III.25) \begin{aligned} 2l_e &= 0,196 \text{ cm.} \\ 2L_e &= 0,293 \text{ cm.} \end{aligned}$$

Au total, au 2ème ordre près, l'expression (III.10) prend ici la forme :

$$\Phi(\theta) = \frac{k}{4\pi} I_o \exp[-K(2R-e/\sin\theta)] p(\theta) \Delta\Omega_I(o) \Delta\Omega_D(o) \frac{H_e \cdot 2l_e \cdot 2L_e}{\sin\theta}$$

où $\frac{H_e \cdot 2l_e \cdot 2L_e}{\sin\theta}$ est le volume diffusant équivalent; nous écrirons :

$$\Phi(\theta) = k I_0 \exp \left[- K \left(2R - e / \sin \theta \right) \right] \frac{A p(\theta)}{\sin \theta}, \text{ où}$$

(III.26)

$$A = 2l_e \Delta\Omega_I(o) 2L_e \Delta\Omega_D(o) H_e / 4\pi .$$

2) Facteur de dispersion

Pour des valeurs de α supérieures à 2 ou 3, les fonctions $p(\vec{s}, \vec{s}')$ varient vite et ne peuvent plus être considérées comme linéaires sur les intervalles d'intégration considérés. Les approximations précédentes seraient à reprendre, en tenant compte de cette non-linéarité de $p(\theta)$. Les calculs rigoureux sont à peu près inextricables, mais nous pouvons faire une estimation grossière de cette dispersion en calculant la partie principale.

L'angle de diffusion (\vec{s}, \vec{s}') ne variant qu'au second ordre par rapport aux variations de \vec{s} et \vec{s}' dans un plan perpendiculaire au plan moyen de diffusion xOy , on pourra négliger les influences, sur la dispersion, de $\alpha_{z'}(M)$, $\beta_{z'}(M)$, $\Delta\theta_v(M)$ et $\Delta\phi_v(M)$. Si on néglige en outre, devant $\beta_{y'}(M)$ et $\Delta\theta_h(M)$, la quantité $\alpha_y(M)$ qui est inférieure à 6' et les variations de $\Delta\phi_h(M)$, on peut mettre $\Phi(\theta)$ sous la forme :

$$(III.27) \quad \Phi(\theta) = \frac{k I_0}{4 \pi} \exp \left[- K \left(2R - e / \sin \theta \right) \right] 2l_e H_e \Delta\theta_v(o) \Delta\phi_v(o) . J(\theta) ,$$

où :

$$(III.28) \quad J(\theta) = \int_G^H \frac{dGH}{dGH} \int_{-\frac{\Delta\phi_h(o)}{2} h^{(o)}}^{+\frac{\Delta\phi_h(o)}{2} h^{(o)}} d\phi_h \int_{\beta_{y'}(M) - \frac{\Delta\theta_h(M)}{2} h^{(M)}}^{\beta_{y'}(M) + \frac{\Delta\theta_h(M)}{2} h^{(M)}} p(\vec{s}, \vec{s}') d\theta_h$$

avec les notations de la figure (III.8). Les parties principales de $\beta_{y'}(M)$ et $\Delta\theta_h(M)$ ne dépendant pas de x' , mais uniquement de y' (cf. (III.14)), on aura en première approximation :

$$(III.29) \quad J(\theta) \neq \frac{1}{\sin \theta} \int_I^J dy' \iint_{\Delta \Omega_e} p(\vec{s}, \vec{s}') d\omega e \quad .$$

En explicitant l'angle (\vec{s}, \vec{s}') , il faut calculer :

$$(III.30) \quad \sin(\theta) J(\theta) = \int_I^J dy' \int_{\beta_{y'}(M) - \frac{\Delta\theta}{2} h(M)}^{\beta_{y'}(M) + \frac{\Delta\theta}{2} h(M)} d\varepsilon \int_{-\frac{\Delta\phi}{2} h(O)}^{+\frac{\Delta\phi}{2} h(O)} d\chi \quad p(\theta + \varepsilon + \chi) \quad .$$

L'intervalle total d'intégration est sensiblement de 6° ; supposons $p(\theta)$ du 3ème ordre en θ (exprimé en radians) sur cet intervalle, c'est-à-dire le développement de $p(\theta)$ limité au 3ème ordre dans :

$$p(\theta + \chi) = p(\theta) + \chi \frac{dp(\theta)}{d\theta} + \frac{\chi^2}{2} \frac{d^2 p(\theta)}{d\theta^2} + \frac{\chi^3}{6} \frac{d^3 p(\theta)}{d\theta^3} + \dots$$

La substitution dans (III.30) de cette forme donne une intégration immédiate, les termes impairs disparaissant par symétrie. Remarquons que dans les zones IK et LJ, où $\Delta\theta_h(M)$ tend vers 0, $\beta_{y'}$ reste sensiblement constant avec les valeurs respectives $+\xi$ IK et $-\xi$ LJ, si on écrit $\beta_{y'}(M) = \xi y'$ sur KL. On obtient finalement :

$$(III.31) \quad J(\theta) = \frac{1}{\sin \theta} 2L_e \Delta\phi_h(O) \Delta\theta_h(O) \left[p(\theta) + C \frac{d^2 p(\theta)}{d\theta^2} \right]$$

où :

$$(III.32) \quad C = \frac{\Delta\phi_h^2(O)}{24} + \frac{\Delta\theta_h^2(O)}{24} \left[\frac{2KL+IK}{KL+IJ} \right] + \xi^2 \frac{KL^2}{24} \left[\frac{KL+6IK}{KL+IK} \right] = 2,4 \cdot 10^{-4}$$

En substituant (III.31) dans (III.27), on voit que le facteur d'appareil défini dans (III.26) reste inchangé, si l'on considère qu'à cette approximation on ne mesure plus $p(\theta)$ mais :

$$(III.33) \quad p(\theta) + \frac{Cd^2 p(\theta)}{d\theta^2} \quad .$$

3) Effets parasites. Diffusions. Réflexions

a) Diffusions parasites

En plus de la lumière diffusée par les particules, le photomulti-
plicateur reçoit évidemment une lumière parasite diffuse due à l'eau dans la-
quelle les particules sont en suspension, aux poussières de l'air et aux dé-
fauts des verres. Cette lumière est d'ailleurs très faible, sauf aux petits
angles ($\theta < 30^\circ$). Il suffira de mesurer, avec de l'eau pure dans la cuve,
le flux $\phi^0(\theta)$ parasite et de le soustraire du flux $\phi(\theta)$ mesuré. Néanmoins
les fortes variations de $\phi^0(\theta)$, suivant les traitements que l'on fait subir
à l'eau (agitation, décantation ...) montrent qu'il sera nécessaire de mani-
puler avec précautions et de préparer les divers échantillons dans des condi-
tions constantes d'agitation et de transvasements. On posera par la suite,
pour le flux, corrigé de cette lumière parasite :

$$(III.34) \quad \phi^c(\theta) = \phi(\theta) - \phi^0(\theta) .$$

b) Phénomènes de réflexion

Nous ne retiendrons pas les pertes lumineuses subies, à l'entrée
et à la sortie de la cuve, par les faisceaux incident et diffusé. La lumi-
nance incidente I_0 , à laquelle $\phi(\theta)$ est proportionnel, est en effet mesurée
par transmission à travers la cuve et subit la même diminution relative.

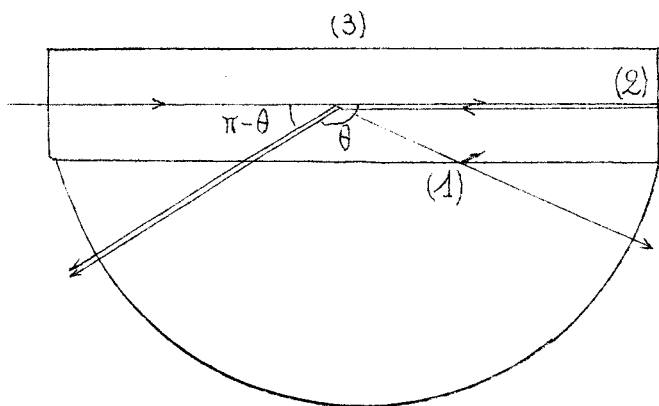


Figure (III.9)

On n'envisagera donc que les
deux phénomènes parasites suivants :

- aux faibles angles, les réflexions
verre/eau sur la lame intérieure (voir
(1) figure (III.9) affaiblissent la
lumière diffuse détectée,
- et surtout, la réflexion en (2) du
faisceau direct, donnant lieu en 0 à
une diffusion parasite d'intensité pro-
portionnelle à $p(\pi - \theta)$ (voir figure
III.9).

On notera que la face arrière (3) du compartiment éclairé est noircie, et ne donne lieu à aucune réflexion notable.

- Lame intérieure.

Il suffit d'évaluer la transmission de la lame en fonction de l'angle θ . On peut en principe faire le calcul théorique de cette transmission. Le calcul exact nécessiterait la connaissance de l'état de polarisation du faisceau diffus; mais en fait, la correction de transmission n'est importante que pour les petits angles de diffusion ($30^\circ < \theta < 20^\circ$), c'est-à-dire dans des directions où les taux de polarisation sont théoriquement faibles, pour les produits étudiés. On considérera donc la lumière comme étant naturelle et on écrira :

$$(III.35) \quad t_1(\theta) = \left[1 - r_1(\theta) \right]^2 = \left[1 - \frac{1}{2} \left[\frac{\sin^2(i-r)}{\sin^2(i+r)} + \frac{\text{tg}^2(i-r)}{\text{tg}^2(i+r)} \right] \right]^2$$

avec :

$$i = \pi/2 - \theta \quad ; \quad \sin i = n \sin r ,$$

où n est l'indice relatif du verre par rapport à l'eau.

Mais ce facteur t_1 varie vite avec l'indice du verre, mal connu. En prenant $n = 1,140$ pour $\lambda = 546 \text{ m}\mu$ (soit l'indice 1,50 pour le verre) on obtient un facteur de transmission théorique légèrement inférieur à celui observé expérimentalement (cf. paragraphe D). En définitive, nous prendrons pour $t_1(\theta)$ la valeur déterminée plus loin expérimentalement, et qui correspond sensiblement, à $n = 1,48$, pour le verre, à $\lambda = 546 \text{ m}\mu$.

- Diffusion du faisceau réfléchi.

La diffusion parasite donnée par ce faisceau sera peu importante pour les milieux dont les indicatrices seront sensiblement symétriques, et tout-à-fait négligeable pour les directions avant, dans le cas d'indicatrices très dissymétriques. Elle sera au contraire primordiale dans les directions

arrière pour des milieux à indicatrices dissymétriques.

Si r_f est le facteur de réflexion de la face de sortie du compartiment parallélépipédique, le faisceau réfléchi aura, au voisinage de 0, la luminance moyenne :

$$r_f I_0 e^{-3KR} ;$$

r_f est essentiellement déterminé par la réflexion verre/air et vaut ici :

$$(III.36) \quad r_f \approx 0,044 \text{ pour } \lambda = 546 \text{ et } 436 \text{ m}\mu.$$

Finalement on mesure en fait :

$$(III.37) \quad \Phi^c(\theta) = \frac{I_0 kA}{\sin\theta} \exp[-K(2R-e/\sin\theta)] \left[p(\theta) + r_f e^{-2KR} p(\pi-\theta) \right] t_1(\theta)$$

L'expression (III.37), où les paramètres A , $t_1(\theta)$, r_f et R sont déterminés, permet en principe la détermination expérimentale en valeur absolue de $p(\theta)$, par combinaison linéaire des mesures $\Phi^c(\theta)$ et $\Phi^c(\pi-\theta)$. Mais il reste auparavant à préciser les conditions de mesure de k et I_0 , et à dire un mot du rôle important des diffusions multiples.

4) Mesure de I_0

La cuve étant en place et remplie du milieu diffusant étudié, on relève le flux directement transmis à $\theta = 0^\circ$ (soit $\Phi(0)$), en enlevant le diaphragme (D_3). Remarquons qu'on devra pour cette mesure interposer sur le faisceau des densités optiques convenables, le flux transmis étant très intense; la mesure de $\Phi(0)$ nécessite donc un bon étalonnage des densités optiques. Puisqu'on néglige les réflexions à l'entrée et à la sortie de la cuve, on aura :

$$(III.38) \quad \Phi(0) = I_0 \exp(-2KR) S_0 \Delta\omega_0 ,$$

où S_0 est la section du faisceau contribuant au flux reçu par le photomultiplicateur, et $\Delta\omega_0$ l'angle solide de ce faisceau.

Le diaphragme (D_3) étant ôté, seule intervient, pour limiter le faisceau du côté du détecteur, l'image de (D_4) à travers (L_2) et les dioptries plans de la face de sortie de la cuve. Cette image (D_4'') a pour caractéristiques :

$$\begin{aligned} \text{hauteur} &= 3,4 \text{ cm.} \\ \text{largeur} &= 1,2 \text{ cm.} \\ \text{distance } \overline{OD_4''} &= - 33,7 \text{ cm.} \end{aligned}$$

On voit que ses dimensions sont beaucoup plus grandes que celles du faisceau incident qui atteint donc entièrement le photomultiplicateur. Le flux transporté par le faisceau est constant, et en le calculant au centre de la cuve, on aura :

$$(III.39) \quad \Phi(0) = I_0 \Delta\phi_h(0) \Delta\phi_v(0) 2l_e h_e \exp(-2KR) = B I_0 \exp(-2KR),$$

où la hauteur équivalente totale h_e du faisceau incident se détermine comme $2l_e$, $2L_e$ et H_e , et vaut ici :

$$(III.40) \quad h_e = 2,175 \text{ cm.}$$

La mesure de $\Phi(0)$, connaissant K , détermine I_0 par (III.39).

5) Mesure de K

a) Détermination expérimentale

On a vu qu'on mesurait par transmission un flux $\Phi(0)$ dont le logarithme vaut :

$$(III.41) \quad \text{Log } \Phi(0) = - 2KR + \text{Log} (I_0 \cdot \Delta\omega_0 \cdot S_0) = - 2KR + C^{\text{st}}$$

Il suffira de mesurer $\Phi(o)$ à concentrations c variables; puisque K est proportionnel à c , la courbe $\text{Log } \Phi(o) = f(c)$ est linéaire et sa pente donne $K(c)$. On opère bien sûr avec un éclairage et une sensibilité du détecteur constants.

b) Validité de la méthode. Effet des diffusions avant

La formule (III.38) ne donne qu'une expression approchée du flux détecté à $\theta = 0^\circ$. En effet, l'ouverture angulaire du faisceau détecté n'étant pas nulle, le photomultiplicateur reçoit, en plus du flux transmis, le flux diffusé par les particules vers l'avant, dans cette ouverture. En principe, tant que la courbe $\text{Log } \Phi(o)$ en fonction de c est linéaire ce flux diffus est négligeable; mais, à la précision des mesures, ce critère est insuffisant et il est souhaitable de déterminer un ordre de grandeur de l'erreur systématique introduite dans la mesure de K par les diffusions avant.

On évaluera le flux diffus recueilli à l'avant en se limitant aux diffusions primaires, qui en constituent la partie principale. Le diaphragme (D_4) est placé seul devant le photomultiplicateur; avec les notations précédentes et les caractéristiques de l'image finale (D_4''), l'angle solide ω_a dans lequel diffusent les particules est alors donné par :

$$\Delta\omega_a = \Delta\phi_h^a \Delta\phi_v^a, \text{ où} \quad \text{(III.42)}$$

$$\Delta\phi_h^a = 0,0415 \quad \text{et} \quad \Delta\phi_v^a = 0,102.$$

On néglige les variations de $\pm 3\%$ de ces angles sur l'intervalle $2R$ du trajet dans la cuve. Le volume éclairé est un parallélépipède de section S_o et de longueur $2R$. Compte tenu des diffusions primaires et des atténuations des faisceaux, on relèvera donc à l'avant, avec l'origine des x en o ,

$$\text{(III.43)} \quad \Phi(o) = S_o \Delta\omega_o I_o \exp(-2KR)$$

$$+ S_o \int_{-R}^{+R} \frac{kI_o}{4\pi} e^{-K(R+x)} dx \int_{\Delta\omega_o} d\omega_o \int_{\Delta\omega_a} p(\vec{s}, \vec{s}') d\omega_a e^{-K(R-x)}$$

Le second terme de (III.43) donne l'erreur de mesure. Nous la majorerons :

- en considérant que tout le flux incident, $\Delta\omega_0 I_0 S_0$, est localisé dans la direction $\theta = 0^\circ$ (soit $\vec{s} = \vec{s}_0$ suivant Ox) et en calculant :

$$I_0 \Delta\omega_0 \iint_{\Delta\omega_a} p(\vec{s}_0, \vec{s}') d\omega_a > I_0 \int_{\Delta\omega_0} d\omega_0 \int_{\Delta\omega_a} p(\vec{s}, \vec{s}') d\omega_a ,$$

l'inégalité venant de ce que $p(\vec{s}, \vec{s}')$ est une fonction décroissante lorsque l'angle (\vec{s}, \vec{s}') augmente, au voisinage de $\theta = 0^\circ$;

- en assimilant $\Delta\omega_a$ à l'angle solide $\Delta\omega'_a > \Delta\omega_a$, où $\Delta\omega'_a$ est défini par le cône de révolution d'angle au sommet $\Delta\phi'_v (> \Delta\phi_h)$;
- et en calculant enfin le terme correctif dans le cas de $\alpha = 10$, et $m = 1,20$, correspondant à la dimension maximum des particules étudiées, et donc à la plus grande prépondérance des directions avant dans l'indicatrice de diffusion.

Avec ces hypothèses (III.43) s'écrit :

$$(III.44) \quad \Phi(0) = \Delta\omega_0 I_0 S_0 \exp(-2KR) \left[1 + \frac{2kR}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi \int_{-\frac{\Delta\phi_a}{2}}^0 p(\vec{s}_0, \vec{s}') \sin\theta d\theta \right],$$

où $p(\vec{s}_0, \vec{s}')$ ne dépendant plus que de θ , on peut écrire :

$$(III.45) \quad p(\vec{s}_0, \vec{s}') = p(\theta) = \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l P_l(\cos\theta)$$

En substituant cette expression dans (III.44), on a :

$$(III.46) \quad \Phi(o) = \Delta\omega_o \cdot I_o \cdot S_o \exp(-2KR) \left[1 + kR \int_{\Delta\mu_a}^1 \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l P_l(\mu) d\mu \right],$$

avec ici :

$$(III.47) \quad \Delta\mu_a = \cos\left(\frac{\Delta\phi_a}{2v}\right) \sim 0,9987.$$

La relation de récurrence :

$$(2n+1) P_n(\mu) = \frac{dP_{n+1}(\mu)}{d\mu} - \frac{dP_{n-1}(\mu)}{d\mu}$$

permet facilement d'établir :

$$(III.48) \quad \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l \int_{\Delta\mu_a}^1 P_l(\mu) d\mu = 1 + \frac{\beta_1}{3} - \sum_{l=1}^{\infty} P_l(\Delta\mu_a) \left[\frac{\beta_{l-1}}{2l-1} - \frac{\beta_{l+1}}{2l+3} \right].$$

Et dans le cas $\alpha = 10$, $m = 1,20$, avec les valeurs numériques des β_l et la valeur (III.47) de $\Delta\mu_a$, on obtient :

$$(III.49) \quad \Phi(o) = S_o \cdot \Delta\omega_o \cdot I_o \exp(-2KR) \left[1 + 0,12 \cdot K \omega_o R \right].$$

On aura donc, en fonction de la concentration, la courbe de transmission :

$$(III.50) \quad \text{Log } \Phi(o) = \text{Log}(S_o \cdot \Delta\omega_o \cdot I_o) - 2KR + \text{Log}(1 + 0,12 \cdot K \omega_o R).$$

Et le terme $0,12 K \omega_o R$ étant petit aux concentrations où l'on opère, en développant le dernier terme de (III.50), on voit que l'on aura en fait :

$$(III.51) \quad \text{Log } \Phi(o) = \text{Log}(S_o \cdot \Delta\omega_o \cdot I_o) - 2KR(1 - 0,06 \omega_o).$$

Finalement, malgré les majorations prises pour les calculs, on

n'aurait qu'une erreur systématique de 6 % dans la mesure de K en assimilant à $2KR$ la pente de la courbe de transmission, et la méthode de mesure utilisée est donc tout-à-fait justifiée pour les particules étudiées.

6) Rôle des diffusions multiples - Expression finale de $p(\theta)$

Avant de formuler définitivement la détermination expérimentale de $p(\theta)$, il reste à considérer le rôle des diffusions multiples dans les directions autres que $\theta = 0^\circ$. En principe, la formule (III.37) montre que la quantité $\Phi^c(\theta) \exp[+K(2R-e/\sin\theta)]$ est proportionnelle à K, donc à la concentration en particules. Mais la linéarité de cette quantité, en fonction de c, n'est respectée que pour des concentrations suffisamment faibles du milieu, et il apparaît expérimentalement que la sensibilité limitée de notre appareil ne nous permet d'atteindre de telles concentrations que dans le cas de très petites particules ($\alpha < 2$). Pour les particules plus grosses, on peut encore obtenir la linéarité dans les directions avant (diffusion intense, $p(\theta)$ grand), mais dans les autres angles les courbes donnant le flux détecté corrigé en fonction de la concentration, ou de k, sont encore du type :

$$(III.52) \quad \Phi^c(\theta) \exp[+K(2R-e/\sin\theta)] = k\phi_1 + k^2\phi_2 + \dots + k^n\phi_n,$$

même si l'on travaille au niveau minimum où $\Phi(\theta)$ atteint l'ordre du bruit de fond du détecteur.

Cette forme (III.52) est évidemment liée à la présence de diffusions multiples, le terme en k^n donnant, en première approximation la contribution des diffusions multiples d'ordre n (rayonnement diffusé n fois), proportionnelles à la puissance nième de la concentration. On constate d'ailleurs, en plaçant de l'eau pure dans le compartiment hémicylindrique de la cuve, une amélioration de la linéarité, les diffusions multiples disparaissant dans cette partie de la cuve. Mais cette précaution est insuffisante les diffusions, principalement localisées dans le compartiment éclairé, restent intenses.

Le problème est donc de déterminer, à partir de la courbe expéri-

mentale du type (III.52), le terme d'ordre 1 correspondant aux diffusions primaires cherchées. On utilise pour cela une méthode d'extrapolation classique, en opérant expérimentalement de la façon suivante :

- Partant d'un milieu donné, on le diluera plusieurs fois en relevant, pour chacune de ces concentrations c , le flux $\Phi(o,c)$ à l'avant et les flux $\Phi(\theta,c)$ en fonction de θ . On mesurera également $\Phi^o(\theta)$ pour l'eau pure.
- La pente de la courbe $\text{Log } \Phi(o,c) = f(c)$ donnera K pour les différentes concentrations, et donc k si les particules n'ont pas d'absorption propre.
- On tracera ensuite, pour les différents angles θ , les courbes $\Phi^c(\theta,c)/K$ en fonction de c . Les formules (III.37) et (III.52), où l'on substitue pour I_o la valeur tirée de (III.39), montrent que ces courbes seront de la forme :

$$(III.53) \quad \frac{\Phi^c(\theta,c)}{K} = \omega_o \frac{A}{B} \Phi(o,c) \frac{t_1(\theta)}{\sin \theta} \exp(Kc/\sin \theta) \left[p(\theta) + r_f e^{-2KR} p(\pi-\theta) \right] + \omega_o \left[+ k \Phi_2(\theta,c) + \dots + k^n \Phi_{n+1}(\theta,c) + \dots \right]$$

- Donc, en extrapolant ces courbes à la concentration nulle, on obtiendra :

$$(III.54) \quad \lim_{c \rightarrow 0} \left[\frac{\Phi^c(\theta,c)}{K} \right] = \left[\frac{\Phi^c(\theta)}{K} \right]_{c=0} = \omega_o \Phi(o,c=0) \frac{A}{B} \frac{t_1(\theta)}{\sin \theta} \left[p(\theta) + r_f p(\pi-\theta) \right]$$

- Finalement, par combinaison linéaire des formules (III.54) prises pour θ et $\pi-\theta$, et en repassant au flux transmis mesuré $\Phi(o,c)$ par $\Phi(o,c) = e^{-2KR} \Phi(o,c=0)$, on a :

$$(III.55) \quad p(\theta) = \frac{1}{\omega_o} \frac{\sin \theta e^{-2KR}}{t_1(\theta) \Phi(o,c)} F_a \left[\left[\frac{\Phi^c(\theta)}{K} \right]_{c=0} - r_f \left[\frac{\Phi^c(\pi-\theta)}{K} \right]_{c=0} \right]$$

$$(III.56) \quad F_a = \frac{B}{(1-r_f^2) A} = \frac{4 \pi h_e}{D(0) \cdot H_e \cdot 2L_e (1-r_f^2)} = 1,56 \cdot 10^4$$

Ces formules déterminent entièrement $p(\theta)$ à partir de F_a que nous appel-

lerons facteur d'appareil, de r_f , R et $t_1(\theta)$, et des quantités mesurées $\phi(o,c)$, K et $(\phi^c(\theta)/K)c = 0$. Remarquons simplement que si les particules présentent de l'absorption propre, la détermination de ω_o pose un nouveau problème sur lequel nous reviendrons. Si au contraire les particules sont purement diffusantes, en remplaçant dans ce calcul général K par k_s et avec $\omega_o = 1$, le problème est théoriquement résolu.

D - TEST PRELIMINAIRE - FLUORESCENCE

Dans les étalonnages de ce type, un premier test classique est d'étudier une solution diluée de fluorescéine. Le diagramme de fluorescence qui remplace la fonction de phase $p(\theta)$, est isotrope, et le relevé du flux de fluorescence mettra facilement en évidence d'éventuels défauts dans le réglage de l'appareil ou la construction de la cuve. Il ne s'agit que de mesures relatives, et on cherche simplement à vérifier l'expression (III.37) qui, compte tenu de l'isotropie de $p(\theta)$, prend la forme :

$$(III.57) \quad \phi^c(\theta) = \phi(\theta) - \phi^o(\theta) = \frac{t_1(\theta)}{\sin \theta} \cdot c^{st}$$

On remarquera que le terme exponentiel n'aurait plus la même forme que dans (III.37). L'absorption du milieu étant négligeable pour la lumière de fluorescence, l'extinction n'intervient plus que pour les fréquences excitatrices, c'est-à-dire le long de l'axe Ox, avec une loi en $e^{-b(R+x)}$. On supposera que l'on opère sur une solution suffisamment diluée pour que le terme d'extinction soit sensiblement indépendant de θ , ce qui se vérifie expérimentalement.

La courbe (a) de la figure (III.10) donne la quantité $\sin \theta \cdot \phi^c(\theta)$ correspondant à des mesures faites sans aucun filtre. La loi (III.57)

est parfaitement vérifiée entre 45° et 135° ($t_1(\theta)$ négligeable), mais dans les directions avant la lumière diffuse, due aux impuretés, devient prépondérante.

Pour éliminer la lumière diffuse, dans les directions avant, on a refait les mesures en plaçant un filtre bleu devant la source et un filtre interférentiel, centré sur $546 \text{ m}\mu$, devant le détecteur. La quantité $\sin \theta \cdot \Phi^c(\theta)$ ainsi obtenue est donnée par la courbe (b) sur la figure (III.10). La forte sélectivité des filtres fait qu'on opère à la limite de sensibilité du photomultiplicateur et la dispersion des points est plus forte. Mais le résultat est quand même satisfaisant puisqu'il permet d'évaluer, à l'avant, l'importance du facteur de transmission $t_1(\theta)$. En portant $\sin \theta \Phi^c(\theta) / t_1(\theta)$, on constate que le facteur théorique calculé suivant la formule (III.35) avec la valeur 1,50 pour l'indice du verre, serait légèrement trop faible et relèverait les points suivant la courbe (c). On a préféré garder par la suite, pour $t_1(\theta)$, la valeur expérimentale ramenant les points de (b) sur la droite moyenne (d), ce qui correspond sensiblement à l'indice 1,48 pour le verre.

E - MESURES

I - Introduction

Après ce premier test relatif, l'étape suivante serait logiquement de vérifier le facteur d'appareil lui-même, c'est-à-dire la valeur de F_a , en passant à des mesures absolues de $p(\theta)$ sur des particules dont la fonction de diffusion soit rigoureusement connue. Mais dans le domaine de dimensions de $0,1 \mu$ à 1μ , il n'existe pas à proprement parler de particules "étalon",

et il semble bien que la vérification expérimentale complète et parfaitement satisfaisante de la théorie de Mie reste encore très délicate.

Nous avons d'abord effectué des mesures sur une série de latex mis au point, ces dernières années par la Dow-Chemical-Company. Ces particules apparaissent au microscope électronique parfaitement lisses et sphériques, et sont en outre fournies, après calibration, sous forme d'échantillons d'une remarquable monodispersion. C'est ce qui explique que ces latex aient semblé particulièrement indiqués pour une vérification de la théorie de Mie, et que la littérature soit si abondante sur les mesures effectuées avec ces particules. Les résultats que nous avons obtenus présentent en fait, sur certains points, de très nets écarts par rapport aux prévisions théoriques, et n'ont pu constituer un étalonnage de notre appareil au sens propre du terme.

Nous avons d'autre part étudié au diffusiomètre les Afcolacs, qui nous servaient dans les expériences de transfert en régime asymptotique. Il semble qu'à certains points de vue ces particules se prêtent mieux que les latex à la vérification de la théorie de Mie; mais les difficultés sont ici d'un autre ordre. Ces Afcolacs sont en effet beaucoup plus instables que les latex et réagissent souvent mal aux procédés d'ombrage ou de coloration négative utilisés en microscopie électronique, ce qui rend délicate la détermination de leurs dimensions.

Nous donnons ici l'ensemble des résultats obtenus sur ces deux séries de produits. Nous verrons qu'aucun des produits étudiés n'a, semble-t-il, tous ses paramètres définis avec suffisamment de précision pour qu'on puisse conclure s'il vérifie ou non la théorie de Mie. En définitive, ce qui justifie la méthode de mesure et constitue finalement l'étalonnage de notre dispositif est, dans le cas des Afcolacs, l'accord entre les résultats obtenus dans ces expériences de diffusion primaire et ceux obtenus en régime de diffusion multiple, dans les expériences décrites dans la 4ème partie. Nos études sur les latex peuvent donc apparaître comme surabondantes. Nous avons quand même jugé intéressant d'en rendre compte :

- d'abord en tant qu'exemple des problèmes que pose la détermination de la fonction de phase d'un milieu trouble;

- ensuite parce que, comme on le verra, ces mesures présentent une certaine originalité par rapport aux mesures classiques;
- et enfin parce que le passage par l'intermédiaire des polynômes de Legendre nous a permis, dans certains cas, une discussion assez rigoureuse des divergences entre résultats expérimentaux et théoriques.

II - Particules monodispersées. Latex.

1) Matériel expérimental

Les latex que nous avons étudiés ont les caractéristiques suivantes :

| Référence | Diamètre moyen | Ecart type | |
|-----------|----------------|------------|-------------------------|
| LS.040.A | 0,088 μ | 0,0080 | |
| LS.057.A | 0,264 μ | 0,0060 | |
| LS.063.A | 0,557 μ | 0,0108 | Particules de la D.C.C. |
| LS.449.A | 0,796 μ | 0,0083 | |
| 6-3 | 0,188 μ | Non donné | |
| 6-6 | 0,365 μ | Non donné | Particules du P.I.S. |

Les 4 premiers de ces latex nous ont été gracieusement offerts par M. L.J. Lippie, de la Dow-Chemical-Company, que nous remercions vivement ici. Ces particules sont actuellement commercialisées par la firme Particule Information Service qui nous a fourni les deux derniers échantillons.

Nous avons déjà signalé les parfaites sphéricité et netteté de surface que présentent ces particules; la figure (III.18) montre une photographie du latex LS.063.A obtenue au microscope électronique par la méthode de coloration négative. Ces particules montrent d'autre part peu de tendance à l'agglomération.

mération, Benarie [26] n'ayant relevé, sur les plus grosses d'entre elles, que 2 % de doublets et pas d'agglomérats plus grands. Leur diamètre semble également bien connu, tous les expérimentateurs étant remarquablement d'accord sur leurs dimensions; néanmoins les études poussées de Morel et Madeleine [25] indiquent une incertitude possible de 10 % sur cette dimension suivant le temps d'exposition des particules sous le faisceau d'électrons. Enfin, l'indice absolu généralement admis pour les latex ou les résines est de 1,59 dans le visible. Nous reviendrons sur cette question dans la discussion.

2) Analyse des résultats antérieurs

Le dépouillement des nombreux compte-rendus d'expériences relatives à ces latex (cf. en particulier l'excellente bibliographie de Kratochvil [28]) nous a montré que la presque totalité de ces travaux peuvent se classer en 5 catégories :

- 1) Mesures absolues ou relatives de la section efficace de diffusion $K(m, \alpha)$ [29]. Bon accord avec la théorie de Mie.
- 2) Mesures relatives du nombre et de la position des minima de la fonction $p(\theta)$ [30]. Ici encore, résultats en bon accord avec la théorie de Mie.
- 3) Mesures absolues de $p(\theta)$ à 90° . Résultats variables suivant les particules étudiées allant d'un bon accord [31] à des divergences d'un facteur 2 [32].
- 4) Mesures relatives du rapport $p(\theta = 45^\circ)/p(\theta = 135^\circ)$. Ici encore résultats très variables suivant les particules, avec des écarts d'un facteur 2 à 4 par rapport aux prévisions théoriques [33].
- 5) Mesures plus complètes du diagramme $p(\theta)$ sur de larges intervalles angulaires. Ce sont ces dernières mesures qui nous intéressent et il apparaît que tous les résultats présentent des écarts avec la théorie, similaires à ceux que nous avons observés. On remarquera toutefois, à propos de ce dernier type d'expériences, les faits suivants :

- très souvent, il n'est pas tenu compte des diffusions multiples [34];

- dans la plupart des cas, il ne s'agit que de mesures relatives, les courbes théorique et expérimentale étant arbitrairement raccordées au mieux [35];
- on trouve inversement des mesures faites en valeurs absolues, mais ce sont alors les calculs théoriques qui n'ont pas été faits [36];
- enfin, les rares discussions des écarts entre résultats expérimentaux et théoriques se réduisent à un encadrement approximatif de la courbe expérimentale par des courbes théoriques correspondant à des valeurs de l'indice et de la dimension des particules voisines des valeurs théoriques [37]

Nous n'avons relevé qu'une seule expérience, en tous points similaire aux nôtres; il s'agit d'une mesure de Kratochvil [38] ayant comparé, avec un assez bon accord, pour un latex, les valeurs absolues théorique et expérimentale de $p(\theta)$.

3) Courbes théoriques et résultats expérimentaux

Le calcul théorique des fonctions de phase correspondant à chaque latex a été fait en utilisant les coefficients β_1 tabulés précédemment.

Les particules étant dans l'eau, l'indice relatif sera :

$$m_r = 1,20 .$$

Nous avons utilisé presque exclusivement la longueur d'onde $\lambda = 546 \text{ m}\mu$ du mercure (raie la plus intense). Les paramètres α seront donnés par :

$$\alpha = \frac{2\pi r}{\lambda} m_s ,$$

où l'indice m_s du milieu dans lequel les particules sont en suspension est ici 1,33. Ceci donne :

| | | |
|------------------|-------------|------------------|
| pour le diamètre | 0,088 μ | $\alpha = 0,675$ |
| " | 0,188 μ | $\alpha = 1,45$ |
| " | 0,264 μ | $\alpha = 2,025$ |

| | | |
|------------------|-------------|----------------|
| pour le diamètre | 0,365 μ | $\alpha = 2,8$ |
| " | 0,557 μ | $\alpha = 4,2$ |
| " | 0,796 μ | $\alpha = 6,1$ |

Pour $\alpha = 0,675, 1,45$ et $2,025$ les coefficients β_1 ont été interpolés à partir des valeurs calculées. Les erreurs possibles sont d'ailleurs tout-à-fait négligeables, les diagrammes $p(\theta)$ variant peu lorsque α varie de $0,6$ à $0,7$, de $1,4$ à $1,5$ ou de 2 à $2,1$.

Toutes les courbes théoriques ainsi obtenues sont données en trait plein sur les figures (III.11) à (III.16) correspondant, dans l'ordre croissant, aux valeurs croissantes de α .

Les mesures ont été faites en suivant la méthode décrite plus haut. Remarquons simplement que les principales difficultés expérimentales sont dues aux impuretés de l'eau et aux inhomogénéités qui dispersent les mesures et rendent vite très délicate la méthode d'extrapolation à la dilution infinie. Il est donc indispensable d'utiliser une eau parfaitement pure et d'homogénéiser les produits soigneusement, mais sans mélanger d'air aux suspensions. On observe qu'en général les courbes à extrapoler, $\Phi^c(\theta)/k$, sont sensiblement linéaires, ce qui semble indiquer que l'expression (III.53) est limitée aux termes du 2ème ordre, et donc que les diffusions multiples sont pratiquement réduites aux diffusions secondaires.

Les valeurs expérimentales de $p(\theta)$ finalement obtenues à partir des mesures par les formules (III.55) et (III.56) sont reportées sur les courbes correspondant aux valeurs de α considérées, figures (III.11) à (III.16). Les mesures ont été faites de 2° en 2° pour θ compris entre 20° et 30° , puis par pas de 5° jusqu'à 125° .

On a également mesuré, pour ces particules, les variations de la section efficace de diffusion $K(m, \alpha)$. Nous n'avons fait qu'une mesure relative. Pour chaque type de particules on a relevé, à une concentration arbitraire, le coefficient de diffusion k pour les 5 raies intenses du mercure; ce qui donne chaque fois, pour les 5 valeurs de α correspondant aux longueurs d'onde utilisées, les valeurs relatives de $K(m, \alpha) = k(\lambda)/N\pi r^2$, où l'on ne connaît pas le nombre N de particules.

(Nous supposons les particules sans absorption. Dans le cas contraire, c'est la section efficace d'extinction totale qui est ici relevée.)

Sur la figure (III.17) on a tracé, en fonction de α , le logarithme de la valeur théorique de $K(m,\alpha)$, pour l'indice 1,20. On a reporté ensuite les tronçons de courbes, de 5 points chacun, obtenus expérimentalement à partir de $k(\lambda)$ par :

$$(III.58) \quad \log k(\lambda) = \log K(m,\alpha) + C^{st} ,$$

la constante indéterminée étant ajustée pour amener ces tronçons de courbes sensiblement en coïncidence avec la courbe théorique.

4) Analyse des résultats - Précision des mesures

Une vue d'ensemble de ces résultats conduit à plusieurs conclusions.

- Au point de vue de l'ordre de grandeur de $p(\theta)$ (figures III.11) à (III.16)) nous obtenons une confirmation très satisfaisante de la théorie de Mie et du facteur d'appareil. On remarquera que le faisceau incident est de 10^4 à 10^7 fois plus intense que les faisceaux diffusés, et qu'un accord des résultats à quelques pourcents, comme dans les cas de $\alpha = 0,675$ et $\alpha = 6,1$ constitue une bonne performance pour ce type de mesures.

- Par ailleurs ces mesures plus générales permettent de retrouver les résultats partiels précédemment obtenus par d'autres auteurs et d'en comprendre mieux les contradictions apparentes. Pratiquement tous les diagrammes, tout en respectant l'allure générale et l'ordre de grandeur donnés par la théorie de Mie, s'en écartent très nettement en certains points, avec des divergences qui atteignent 50 %. Donc, si l'on se contente de mesures limitées à des angles particuliers, on peut obtenir des résultats très satisfaisants ou au contraire aberrants, suivant les particules utilisées. C'est ainsi que la valeur prévue pour $p(\theta = 90^\circ)$ est très bien vérifiée pour $\alpha = 0,675$, 2,025 et 6,1; le rapport $p(\theta = 45^\circ)/p(\theta = 135^\circ)$ pour $\alpha = 0,675$, 2,8, 4,2 et 6,1. Pour les autres dimensions les divergences seront très fortes. Par ailleurs il semble que le coefficient K expérimental (figure (III.17)) présente une croissance systématiquement plus forte que la croissance théorique.

- Enfin, il semble bien que ce n'est pas un étalonnage de l'appareil, c'est-à-dire un ajustement de la constante F_a dans (III.55), qui permettrait d'amener, par glissement, les courbes expérimentales et théoriques en coïncidence.

Comme nous l'avons dit, les écarts entre valeur théorique et valeur expérimentale atteignent 50 % dans certaines zones, tantôt par excès et tantôt par défaut. Or, il faut insister sur la grande répétabilité de ces mesures. Les points expérimentaux portés sur les courbes sont relatifs à une seule manipulation, mais chacun des produits a été en fait étudié plusieurs fois, avec des concentrations de départ différentes, et les résultats sont absolument constants à la précision de la méthode d'extrapolation (soit $\pm 5\%$ environ). Les seules exceptions sont les directions avant (20° à 24°), pour lesquelles le réglage de la cuve est critique, et les directions arrière, pour les courbes très dissymétriques; dans ce cas l'importance du faisceau réfléchi, donnant une diffusion parasite qui peut atteindre la valeur de la diffusion étudiée, entraîne une erreur assez forte due à la répercussion de l'erreur expérimentale sur $\sin(\pi - \theta)$. Il n'en reste pas moins que les écarts entre nos résultats et les courbes théoriques ne sont pas imputables à des erreurs de mesure aléatoires et ne peuvent être attribués qu'à des erreurs systématiques liées au dispositif, ou aux particules elles-mêmes.

- Un dernier point à préciser, en ce qui concerne l'appareil, est son pouvoir de résolution. On pourrait en effet penser, en particulier pour les courbes (III.15) et (III.16) qui présentent des oscillations assez aiguës, qu'un effacement partiel des extrêma est dû à l'intégration de $p(\theta)$ sur les ouvertures angulaires de l'appareil. En fait, la résolution de ce dernier, que nous pouvons évaluer grossièrement par la formule (III.33), est assez bonne et ne semble pas expliquer l'effet observé. Partons des valeurs théoriques des fonctions de phase correspondant à $\alpha = 4,2$ et $6,1$. En première approximation, on déterminera $\frac{d^2p(\theta)}{d\theta^2}$, au voisinage de θ_0 , en supposant que sur l'intervalle $\theta_0 \pm \Delta\theta$, $p(\theta)$ s'écrit :

$$(III.59) \quad p(\theta) = K_0 + K_1 \theta + K_2 \theta^2,$$

avec θ exprimé en radians. On aura donc :

$$(III.60) \quad \frac{d^2 p(\theta)}{d\theta^2} = 2K_2 = \frac{2p(\theta_0) - p(\theta_0 + \Delta\theta) - p(\theta_0 - \Delta\theta)}{2\Delta\theta^2}$$

et la perturbation systématique à laquelle on peut s'attendre d'après (III.33) sera obtenue en reportant dans cette expression la valeur (III.60) de $d^2 p(\theta)/d\theta^2$, ce qui donne :

$$(III.61) \quad p(\theta_0)_{\text{mesuré}} = p(\theta_0) + \frac{C}{\Delta\theta^2} \left[2p(\theta_0) - p(\theta_0 + \Delta\theta) - p(\theta_0 - \Delta\theta) \right].$$

Les fonctions de phase étant tabulées de 5° en 5° , on prend $\Delta\theta = 5^\circ$, soit :

$$C/\Delta\theta^2 \sim 3,2 \cdot 10^{-2}.$$

Le calcul de $p(\theta)_{\text{mesuré}}$, à partir des valeurs théoriques de $p(\theta)$, pour $\alpha = 6,1$ et $4,2$, indique un abaissement ou un relèvement systématiques des points expérimentaux qui ne dépasse pas 10 % de la valeur exacte, dans les cas les plus défavorables (soit aux maxima et minima des fonctions de phase considérées). On voit donc que la résolution de l'appareil ne suffit pas à expliquer les divergences des résultats, même dans ce cas.

III - Miliens polydispersés. Afcolacs.

1) Matériel expérimental

Les latex précédents ne sont disponibles qu'en quantités très faibles et coûteuses et ne peuvent donc convenir pour les études de transfert en milieux troubles, qui nécessitent des quantités très importantes de particules (plusieurs centaines de grammes de diffusant pur). Les travaux de nos prédécesseurs ont montré que certaines émulsions de résines synthétiques, disponibles en quantités industrielles, se prêtaient assez bien aux expé-

riences envisagées. Ces émulsions sont en particulier fabriquées par la Société Pechiney-Saint-Gobain, dont nous remercions le Directeur Commercial, Monsieur Gouriou, pour sa grande amabilité.

Parmi les différentes suspensions de résines disponibles, nous avons retenu les Afcolacs. Il s'agit d'acétates de polyvinyle qui présentent pour nous les intérêts suivants :

- ils sont très stables, en suspension, et décantent peu;
- ils tolèrent assez bien l'addition des pigments colorés, qui nous sont nécessaires pour faire varier l'absorption des milieux étudiés, dans les expériences de transfert;
- enfin les particules de ces suspensions sont d'apparence sensiblement sphérique et surtout de dimensions faibles ($0,1 \mu$ à 1μ environ). Le diffusiomètre permet donc l'étude directe de leur fonction de phase et d'autre part, les développements théoriques de ces indicatrices sont relativement courts et maniables.

L'indice de réfraction de ces particules est encore, en principe, celui des différentes résines qui entrent en jeu, c'est-à-dire $n = 1,59$ par rapport à l'air, et $n_r = 1,20$ par rapport à l'eau.

Le problème est que les suspensions industrielles ne sont évidemment pas calibrées et que les dimensions indiquées ne constituent qu'un ordre de grandeur. D'un échantillon à l'autre, la dimension moyenne des particules et leur dispersion en dimension varient, ce qui nécessite une étude particulière de la granulométrie par microscopie électronique.

Les Afcolacs que nous avons principalement étudiés ont les caractéristiques probables suivantes :

| Afcolac | Diamètre moyen |
|----------------|----------------|
| A 451.91.5 (B) | 0,16 μ |
| A 451.91.5 (D) | 0,5 μ |
| A 451.91.5 (E) | 0,32 μ |
| A 451.01.7 | 0,4 μ |
| F 2 | 0,2 μ |

2) Etablissement de la granulométrie

Cette partie de notre travail ne présente aucune originalité et nous n'avons fait que quelques mesures de routine. Nous ne disposons pas, en effet, de microscope électronique et nous avons simplement pu faire tirer quelques photographies de nos particules, à l'Institut Pasteur de Lille et au C.E.N. de Fontenay-aux-Roses, grâce à l'amabilité de Messieurs les Professeurs Vivier et Madeleine que nous remercions vivement ici. Il nous est apparu que ces Afcolacs, et en particulier ceux du type A, se prêtaient très mal aux méthodes classiques d'investigation par microscopie électronique. Les figures (III.18) à (III.23) donnent quelques reproductions des différents types de photographies obtenus et montrent clairement les difficultés rencontrées.

- Les figures (III.18) à (III.22) montrent les résultats obtenus pour divers produits en utilisant le procédé de "coloration négative", qui consiste à noyer la couche monoparticulaire observée dans un liquide opaque aux électrons. Les particules n'absorbant pas les électrons se détachent alors sur le fond constitué par le liquide. Les latex étudiés plus haut donnent d'excellents résultats sous ce traitement (figure III.18), de même que l'Afcolac F.2 (figure (III.19)). Mais il semble au contraire que les conditions de surface des Afcolacs du type A (figures (III.20) à (III.22)) facilitent, par capillarité, un recouvrement partiel du colorant. On obtient ainsi une sous-estimation systématique des dimensions des particules, sous-estimation peut-être importante et difficilement évaluable.

- On a également essayé d'utiliser la méthode d'ombrage. Les échantillons étudiés sont d'abord soumis, sous incidence oblique, à la vaporisation d'un métal (chrome ou palladium) qui recouvre les particules et la plaque support en laissant des traces vierges correspondant aux ombres portées des particules. La préparation est ensuite observée au microscope; les fines particules du métal vaporisé absorbent les électrons et ce sont les ombres des particules qui apparaissent, et également les particules elles-mêmes, dont le recouvrement par le métal n'offre pas le même aspect que celui du support. Ici encore les latex donnent d'excellents résultats mais la figure (III.23), qui correspond à l'Afcolac A 451.91.5 (D), ne permet d'obtenir qu'un ordre de grandeur des dimensions des particules.

En dehors de ces difficultés liées à la nature des Afcolacs, le microscope de l'Institut Pasteur, sur lequel presque toutes les photos ont été obtenues, n'est pas équipé de grilles étalon, et le grossissement annoncé n'est valable qu'à 30 % environ. Nous avons pu le vérifier en remarquant que les photos prises pour les latex donnaient des dimensions de 25 % à 35 % supérieures aux dimensions probables de ces particules. Cette erreur systématique de grossissement, jouant en sens inverse de l'erreur provoquée par le recouvrement du colorant négatif, explique sans doute qu'on ait pour certains Afcolacs obtenu un assez bon accord entre les résultats des mesures de diffusion et les photographies, mais il semble finalement très difficile, dans le cas des Afcolacs, d'obtenir une granulométrie précise par des procédés de microscopie. On pourrait sans doute améliorer ces résultats. Mais il faudrait pour cela disposer assez longtemps d'un microscope électronique, et il est de toute façon très probable que les particules considérées sont profondément perturbées par les conditions expérimentales de la microscopie électronique, et on ne peut espérer obtenir un résultat précis qu'en les observant dans leurs conditions normales, c'est-à-dire en suspensions aqueuses, et donc par des méthodes optiques.

Ces photos ont néanmoins l'intérêt de nous indiquer la forme, sensiblement sphérique, des particules, et un ordre de grandeur valable de leurs dimensions. De plus, la distribution relative en diamètres des dispersions reste sans doute exacte, quelles que soient les erreurs systématiques de grossissement. Plutôt que de chercher à corriger plus ou moins judicieusement les grossissements indiqués, nous avons donc préféré prendre les renseignements bruts que donnaient ces photos et en déduire les granulométries "théoriques" de nos milieux, en nous réservant de discuter des résultats obtenus et d'évaluer alors les erreurs d'estimation en comparant courbes théoriques et expérimentales.

On a donc relevé sur les photographies le nombre de particules observées en fonction de leurs diamètres. Ceux-ci sont en principe mesurés à $\pm 0,5$ μ m, ce qui donne en moyenne, pour les dispersions étudiées, 10 à 15 classes distinctes de comptage des particules. On sait statistiquement [40] que le nombre de particules relevées dans une classe n'est significatif que pour un comptage de plus de 10 particules; l'ensemble des photographies don-

nant généralement pour chaque milieu de 150 à 300 particules répertoriées, les granulométries sont assez bien déterminées sauf sur les ailes. Par ailleurs, nous nous sommes contentés de prendre des courbes moyennes, à partir de ces dénombrements, sans chercher à attribuer aux suspensions des lois de distribution mathématiques. On a tracé sur la figure (III.24) quelques exemples des granulométries ainsi obtenues. Les distributions sont dissymétriques, par rapport au rayon moyen, ce qui laisse supposer qu'elles répondent sans doute à des distributions du type logarithmico-normal (loi de distribution de Gauss en prenant comme variable le logarithme du rayon). On remarquera d'autre part que les courbes (a) et (b), sur cette figure, correspondent au même produit, l'Afcolac A 451.91.5 (D), étudié, pour (a), suivant la méthode de coloration négative, et pour (b), suivant la méthode d'ombrage au palladium. L'écart entre ces deux courbes est important, mais le rapport (diamètre moyen)/(largeur moyenne de la dispersion) est sensiblement conservé.

3) Résultats théoriques et expérimentaux

Le calcul des indicatrices théoriques revient à déterminer les coefficients β_1 correspondant aux distributions étudiées, à partir des formules (III.9) et (III.10). On obtient une précision suffisante en approximant les intégrales par une simple méthode de trapèzes et en décomposant les granulométries en P intervalles égaux de largeur Δr suffisamment faible ($0,01 \mu$ à $0,03 \mu$ ici suivant les dispersions). Le nombre $N(r_i)$ de particules affectées au $i^{\text{ème}}$ intervalle, centré sur r_i , est déterminé sur les courbes moyennes du type de la figure (III.24). On aura alors :

$$k = \Delta r \sum_{i=1}^P \pi r_i^2 K(m, r_i, \lambda) N(r_i) , \text{ et} \quad (\text{III.62})$$

$$\beta_1 = \frac{\Delta r}{k} \sum_{i=1}^P \pi r_i^2 K(m, r_i, \lambda) \beta_1(m, r_i, \lambda) N(r_i) .$$

L'obtention des courbes expérimentales ne présente aucune particu-

larité par rapport à ce qui a été vu plus haut au sujet des latex. Les figures (III.25) à (III.28) donnent quelques exemples de résultats; les courbes en trait plein correspondant aux indicatrices théoriques déduites des granulométries photographiques.

On retrouve sur ces courbes, et en particulier sur celles de la figure (III.26), les difficultés signalées plus haut; il est évident que la grosse imprécision sur les dimensions des particules est ici la principale difficulté et empêche toute conclusion quant à la validité de la théorie de Mie.

F - DISCUSSION DES RESULTATS

I - Introduction

L'ensemble de ces résultats demande évidemment à être discuté. Dans le cas des latex, dont les dimensions sont presque certaines, il semble que ni l'appareil, ni la méthode de mesure ne soient en cause et qu'il faille chercher au niveau des particules l'explication des écarts observés entre résultats expérimentaux et théoriques. Avec les Afcolacs apparaît un problème supplémentaire lié à la détermination de leurs dimensions.

Pour discuter valablement des résultats, il semble préférable de ne pas reprendre les méthodes qui consistent à calculer les courbes théoriques correspondant à des valeurs du diamètre ou de l'indice voisines des valeurs attribuées en principe aux particules, et à montrer que l'on peut effectivement encadrer plus ou moins grossièrement la courbe expérimentale par ces diverses courbes théoriques. Ce procédé ne prouve finalement rien, puisqu'il ne

donne qu'une idée qualitative des variations possibles des points théoriques mais reste beaucoup trop complexe pour permettre de calculer l'indice, la dimension ou la dispersion en dimensions qui donneraient la courbe observée.

Il nous a semblé préférable d'utiliser les résultats de la première partie et d'essayer de déduire des courbes expérimentales les coefficients β_1 développant ces courbes en polynômes de Legendre. L'intérêt de ce procédé est que nous connaissons les variations de ces coefficients en fonction des divers paramètres caractérisant les particules, et qu'en reportant les β_1 expérimentaux sur des diagrammes tels que celui de la figure (I.3), nous pouvons déterminer quantitativement la valeur du paramètre correspondant aux observations. De plus, pour les Afcolacs, nous pouvons introduire ces coefficients β_1 dans l'équation de transfert et vérifier s'il y a accord entre les expériences de diffusion primaire et de diffusion multiple.

II - Méthode d'inversion.

1) Formulation

La précision actuelle de notre dispositif étant relativement faible, il est inutile d'avoir recours à une technique mathématique trop raffinée, dont la précision serait sans doute illusoire. Nous avons donc supposé que la fonction de phase expérimentale était développée avec suffisamment d'exactitude par N termes en écrivant :

$$(III.62) \quad p(\theta) = \sum_{l=0}^{N-1} \beta_l P_l(\mu) .$$

Cette relation écrite pour les N angles θ_i donne la relation matricielle :

$$(III.63) \quad [A_i^1] [\beta_1] = [p(\theta_i)] \quad \text{où } (A_i^1) = P_l(\mu_i) .$$

Les N points θ_i étant choisis une fois pour toute, on pourra inverser la matrice $[A_i^1]$ et déterminer les β_1 à partir des mesures $p(\theta_i)$ par :

$$(III.64) \quad \beta_1 = \sum_{i=0}^{N-1} (A^{-1})_1^i p(\theta_i) .$$

On a choisi de prendre $N = 19$. On sait que pour $\alpha < 10$ ce nombre de polynômes suffit à représenter les fonctions de phase, et un nombre plus élevé créerait, en calcul numérique, des difficultés d'inversion de la matrice $[A_i^1]$. On a préféré faire couvrir tout l'intervalle $(0, \pi)$ aux points θ_i , plutôt que de les limiter à l'intervalle expérimental $(20^\circ, 135^\circ)$. Ce choix nous oblige à extrapoler les courbes expérimentales dans les deux régions extrêmes, mais permet par contre :

- de faire un bilan énergétique en comparant le flux disparu du faisceau direct, au flux total diffusé,
- et aussi, en essayant plusieurs types d'extrapolations à l'avant, de tenir compte d'éventuelles variations de $p(\theta)$ dans cette zone certainement importante que nous ne pouvons pas atteindre expérimentalement. On remarquera à ce sujet que le diffusionomètre utilisé pourrait certainement être amélioré et rendu plus performant pour les mesures vers l'avant. Mais la question de la diffusion aux petits angles reste néanmoins un problème délicat nécessitant à lui seul une étude particulière. Les méthodes d'Ivanoff [39] présentent peut-être une solution intéressante; mais il ne semble pas que l'on possède encore de mesures absolues, confirmées théoriquement, dans cette région des petits angles.

Finalement, sous réserve d'extrapolation, nous avons donc pris, dans (III.63) et (III.64) :

$$(III.65) \quad \theta_i = i \times 10^\circ, \text{ avec } i \text{ entier} = 0 \text{ à } 18;$$

le calcul de la matrice inverse de $[A_i^1]$ a été effectué par le laboratoire de Calcul Numérique de Lille.

2) Extrapolation

L'extrapolation dans les directions arrière ($\theta < 135^\circ$) est sans grande importance. Les indicatrices observées sont en effet très dissymétriques, sauf dans le cas de $\alpha = 0,675$, et les β_1 sont essentiellement déterminés par les valeurs de $p(\theta)$ vers l'avant. On s'est donc contenté pour extrapoler jusqu'à $\theta = 180^\circ$, de suivre grossièrement l'allure des courbes entre $\theta = 110^\circ$ et $\theta = 135^\circ$. On vérifie bien, en extrapolant de différentes façons dans les directions arrière, que les β_1 significatifs obtenus par (III.64) sont pratiquement insensibles à ces variations.

Le problème est plus délicat pour les directions avant. L'extrapolation directe à partir des points expérimentaux serait trop imprécise, et il y a intérêt à opérer un changement de variable $u(\theta)$ donnant à $p(u(\theta))$ une allure aussi linéaire que possible. Empiriquement, en utilisant les valeurs théoriques de $p(\theta)$, nous avons constaté que, pour $m = 1,20$ et pour les valeurs de α comprises dans l'intervalle 1,5 à 5 environ, on obtenait cette linéarité, entre $\theta = 0^\circ$ et $\theta = 30^\circ$ ou 40° , en portant le logarithme de $p(\theta)$ en fonction de $u(\theta) = \sin^2(\theta/2)$ (cf. figure (III.29)).

La linéarité des courbes $\log p(\theta)$ en fonction de $u(\theta)$ étant également assez bien vérifiée par les résultats expérimentaux entre $\theta = 20^\circ$ et $\theta = 40^\circ$, nous avons effectué sur ces courbes l'extrapolation à $\theta = 0^\circ$. Elle n'est évidemment valable que dans la mesure où la fonction $p(\theta)$ garde une allure continue dans la région des petits angles, et n'y subit pas, par exemple, un brusque relèvement. Ce serait en particulier le cas si de très grosses particules existaient dans la suspension (agglomérats); leur diffusion, pratiquement localisée aux petits angles, nous échapperait et fausserait le résultat.

3) Validité

Nous avons d'abord testé la méthode d'inversion en partant des courbes théoriques, tracées en ordonnées logarithmiques, et en lisant sur ces courbes les valeurs de $p(\theta_i)$ à introduire dans (III.64). Les erreurs de lecture sur $p(\theta_i)$ étant alors de 2 % à 5 %, on a une idée assez exacte des possibilités de l'inversion, supposée appliquée à une bonne courbe expérimentale.

On constate que les valeurs ainsi obtenues pour les β_1 sont satisfaisantes. Les 2 ou 3 premiers coefficients sont obtenus à mieux que 1 %; la précision décroît ensuite assez vite mais sans que cela nuise au résultat cherché. Pour les Afcolacs, nous avons en effet vu que seuls les premiers β_1 déterminaient de façon critique le régime asymptotique. Quant aux Latex si nous utilisons les β_1 expérimentaux pour les reporter sur un diagramme tel que celui de la figure (I.3), nous voyons que la pente des courbes théoriques augmente d'abord avec l'ordre des coefficients, de sorte qu'avec une précision de plus en plus faible sur β_1 , on obtient quand même le α moyen considéré avec une précision sensiblement constante, pour plus des 3/4 des coefficients significatifs considérés.

Il reste à passer au cas des mesures réelles, pour lesquelles les erreurs sont évidemment plus importantes, et à voir la répétabilité qu'elles présentent et la confiance qu'on peut leur accorder.

III - Résultats et Précision.

1) Coefficient β_0 . Etalonnage indirect de l'appareil

Si l'extrapolation des courbes vers l'avant est correcte, et si les particules ne présentent pas d'absorption propre, le calcul de β_0 par (III.64) à partir des mesures absolues de $p(\theta)$ doit donner, pour toutes les particules étudiées, une valeur constante, et égale à 1, si le calcul de F_a dans (III.55) est exact. Cette mesure des β_0 , qui revient à faire un bilan du flux, constitue donc un étalonnage indirect de notre appareil.

Sur l'ensemble des résultats, nous avons obtenu :

$$(III.66) \quad \beta_0 = 0,840 \pm 0,060 .$$

La dispersion des résultats ($\sim 7\%$) est tout-à-fait tolérable. Elle est due principalement :

- aux erreurs de mesure de k ;
- aux erreurs systématiques dans l'extrapolation des courbes $(\Phi^c(\theta)/k)$ à la dilution infinie. Ces courbes présentent en effet, pour tous les angles, sensiblement la même allure avec les mêmes écarts pour les mêmes concentrations (écarts dus sans doute aux défauts d'homogénéité des mélanges); on est donc amené à extrapoler toutes ces courbes de la même façon et donc à commettre une erreur systématique de même sens pour tout le diagramme;
- enfin à l'extrapolation des courbes dans les directions avant. Toutefois, on peut vérifier empiriquement, en essayant plusieurs extrapolations différentes, que les erreurs ainsi introduites ont une influence faible sur les coefficients. Ce qu'on peut prévoir en remarquant que le calcul des β_1 par (III.64) revient à calculer :

$$(III.67) \quad \beta_1 = \frac{21+1}{2} \int_0^\pi p(\theta) P_1(\cos \theta) \sin \theta \, d\theta \quad ,$$

et la présence de $\sin \theta$ dans l'intégrale minimise l'effet des erreurs sur $p(\theta)$ aux petits angles.

En ce qui concerne la valeur moyenne de β_0 , inférieure à 1, on pourrait, a priori, l'interpréter par l'existence d'une absorption propre des particules; on mesure dans ce cas $\omega_0 p(\theta)$ au lieu de $p(\theta)$, et donc $\omega_0 \beta_1$ au lieu de β_1 . Mais nous verrons plus loin qu'une absorption aussi importante des particules est peu probable. Nous pouvons donc considérer que cette valeur moyenne de β_0 constitue l'étalonnage de l'appareil et que la valeur probable de F_a est :

$$(III.68) \quad F_a = \frac{1,56 \cdot 10^4}{0,84} = 1,85 \cdot 10^4 \quad ;$$

une erreur de 15 % dans le calcul théorique de F_a est en effet tout-à-fait acceptable.

2) Autres coefficients

Pour les autres coefficients du développement, il est tout-à-fait logique de repasser à une courbe normalisée, tenant compte de la correction à faire sur F_a . On prendra donc comme valeur du coefficient d'ordre 1, $\overline{\beta}_1 = \beta_1 / \beta_0$, où β_1 et β_0 sont calculés à partir des résultats expérimentaux par (III.64).

On constate que, pour un même produit, la dispersion des résultats, sur ces coefficients, est beaucoup plus faible (1 % à 2 % pour les premiers). Le résultat est prévisible puisque, en normalisant la courbe :

- l'erreur sur k n'intervient plus;
- dans une large mesure, les erreurs systématiques dans l'extrapolation à la dilution infinie sont effacées;
- enfin, les erreurs d'extrapolation dans les directions avant se compensent partiellement; par (III.67) on a, en effet :

$$(III.69) \quad \overline{\beta}_1 = \frac{\beta_1}{\beta_0} = (2l+1) \frac{\int_0^\pi p(\theta) P_l(\cos \theta) \sin \theta d\theta}{\int_0^\pi p(\theta) \sin \theta d\theta} ,$$

et puisque tous les polynômes $P_l(+1)$ sont égaux à +1, puis décroissent quand l augmente, les erreurs d'extrapolation donnent dans (III.69) des erreurs de même sens au numérateur et au dénominateur.

On obtient finalement pour ces $\overline{\beta}_1$ une bonne répétabilité d'une expérience à l'autre. Sur les figures (III.30) à (III.32) qui reproduisent le diagramme de la figure (I.3) (β_1 en fonction de α pour $m = 1, 20$), on a reporté les résultats ainsi obtenus pour les latex et les acfolacs utilisés. Dans le cas des latex, en principe monodispersés, les coefficients devraient s'aligner sur une verticale $\alpha = 0^{st}$. Pour les acfolacs, les coefficients théoriques sont indiqués.

IV - Discussion pour les latex.

1) Paramètres caractérisant une particule

Nous séparerons la discussion en deux parties, et envisagerons plus loin la possibilité d'effets d'ensemble des particules. Discutons d'abord des propriétés d'une seule particule. Nous supposons qu'elle respecte la théorie de Mie, c'est-à-dire que l'on a toujours des sphères homogènes, de façon à pouvoir utiliser les résultats de la 1^{ère} partie. Les causes possibles des divergences observées sont alors les imprécisions sur les paramètres caractérisant la particule : rayon, dispersion en dimensions et indice.

a) Rayon

Quelles que soient les imprécisions des méthodes de microscopie, il est inutile de chercher l'origine des écarts dans une erreur de diamètre. Dans ce cas en effet, les $\overline{\beta_1}$ expérimentaux s'aligneraient simplement, figure (III.30), sur une verticale voisine de la verticale prévue.

b) Dispersion en dimensions

Bien que la monodispersion des latex ne soit pas parfaite, elle ne peut expliquer non plus les effets observés, et on peut sans calcul écarter cette cause d'erreur. Il suffit de remarquer que pour des granulométries aussi étendues que celles des afcolacs, les coefficients théoriques β_1 , figures (III.30) et (III.31), sont moins dispersés que ne le sont, figure (III.30), les $\overline{\beta_1}$ expérimentaux obtenus pour les latex.

c) Indice

Il n'est pas évident que l'indice des particules colloïdales soit celui d'un spécimen macroscopique des résines constituantes; mais il semble encore impossible d'interpréter les résultats par un simple écart de l'indice, par rapport à sa valeur théorique. En prenant la théorie de Mie pour calculer la valeur théorique de l'indice du mélange eau - particules, et en mesurant

cet indice par des méthodes interférométriques, Heller et Rugh [41] ont obtenu, pour tous les latex étudiés, la même valeur absolue de l'indice des particules : $m = 1,59$. On peut d'autre part supposer que l'indice des particules est complexe, quoique l'hypothèse semble intenable, puisque les polystyrènes ne présentent pas d'absorption propre dans le visible. Et effectivement, outre que les coefficients théoriques β_1 ne sont pratiquement pas modifiés par la présence d'un terme imaginaire dans l'indice (cf. tableau IV), l'albédo des particules varie alors très vite avec leur dimension, et on devrait obtenir un coefficient β_0 expérimental (égal à ω_0) très différent pour les divers latex étudiés, comme le montre le tableau V, tiré des calculs de la 1^{ère} partie.

Tableau V - Valeurs de ω_0

| $\gamma \backslash \alpha$ | 0,67 | 0,76 | 2 | 2,2 | 4,2 | 4,6 | 6,1 | 6,7 |
|----------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| $- 5 \cdot 10^{-3}$ | 0,473 | 0,546 | 0,882 | 0,896 | 0,945 | 0,949 | 0,956 | 0,957 |
| $- 10^{-2}$ | 0,310 | 0,376 | 0,789 | 0,811 | 0,897 | 0,903 | 0,915 | 0,917 |

2) Effets d'ensemble des particules

Il semble donc impossible, en conservant les hypothèses d'applicabilité de la théorie de Mie, d'expliquer les résultats expérimentaux par une simple variation des paramètres caractérisant les particules. Il reste à envisager les mécanismes par lesquels un effet d'ensemble des particules peut déformer le diagramme expérimental. Lorsqu'on observe plusieurs particules, on doit s'attendre à deux phénomènes perturbateurs : les diffusions multiples et les relations de phase entre les différentes sources constituées par les particules.

Nous n'insisterons pas sur les diffusions multiples; il semble qu'en extrapolant les mesures à la dilution infinie, on s'affranchisse de ce premier mécanisme perturbateur.

D'autre part, on considère généralement que les relations de phase entre les sources secondaires que sont les particules diffusantes deviennent sans effet lorsque les distances entre les particules dépassent 5 à 6 fois leur diamètre, les particules étant supposées réparties au hasard [17]. Aux concentrations où nous opérons, on a $N = 10^7$ à 10^9 particules par cm^3 , ce qui satisfait largement à la condition d'écartement précédente. Ces considérations théoriques sont d'ailleurs parfaitement corroborées par les expériences récentes de Harris, Sherman et Morse [42]. Ceux-ci ont relevé, sensiblement pour les mêmes zones de concentrations que nous, les diagrammes de diffusion des latex, en utilisant alternativement comme source un laser à gaz He-Ne ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$), puis un arc à xénon, dont le rayonnement était limité, par un filtre interférentiel, à une bande passante de 100 \AA autour de la même longueur d'onde. En passant d'une source à l'autre, le nombre de particules contenues dans un élément de volume éclairé de façon cohérente passe de 10^5 environ à 1,13 sans que les diagrammes de diffusion présentent de différence.

Finalement, le seul effet d'ensemble des particules qui reste à étudier est la formation d'agglomérats. Nous avons vu que, d'après les observations de Bénarie [26], on peut espérer que les seuls agglomérats rencontrés dans les latex sont des doublets, avec une fréquence de 2 % environ. Même dans le cas simple d'un doublet, le calcul théorique exact de la fonction de phase ne paraît pas évident. Par ailleurs, il serait trop simpliste d'assimiler la diffusion d'un doublet à celle d'une particule sphérique, quel que soit le rayon attribué à cette particule équivalente. En première approxima-

tion, nous avons préféré considérer le doublet comme constitué de deux sources cohérentes, situées aux centres des 2 particules, chaque source rayonnant avec la fonction de phase des particules isolées.

Prenons l'origine d'un référentiel au centre O du doublet, l'axe Oy dans le sens de la lumière incidente, et la direction d'observation OM dans le plan xOy, avec $(OM, Oy) = \theta$ (figure III.32).

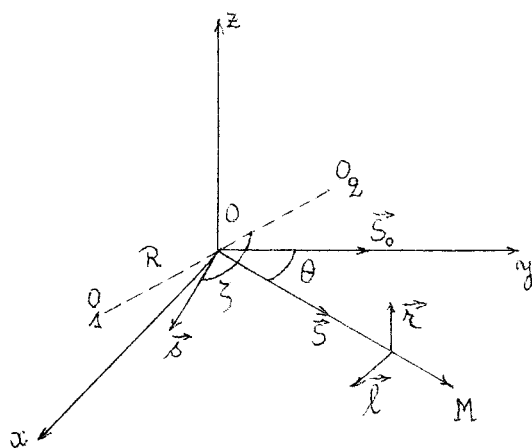


Figure (III.32)

Introduisons les vecteurs unitaires :

\vec{S}_0 sur Oy

\vec{S} sur OM

\vec{u} sur O_1O_2 (O_1 et O_2 centres des particules (1) et (2)).

On posera :

$$\vec{s} = \vec{S} - \vec{S}_0 ; \text{ soit } s = 2 \sin(\theta/2)$$

(III.70)

$$\vec{OO}_1 = -R\vec{u} \text{ et } \vec{OO}_2 = +R\vec{u}, \text{ où } R \text{ est le rayon des particules.}$$

Prenons l'origine des phases en O. Soient E_l et E_r les composantes du champ incident, suivant les axes \vec{l} et \vec{r} , respectivement parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion xOy. Suivant ces mêmes axes, et à une distance $r \gg R$ de O, les composantes des champs diffusés par les particules sont :

- pour la particule (1) :

$$E'_l = \frac{\lambda}{i2\pi r} e^{i(\omega t - \frac{2\pi r}{\lambda})} e^{-i\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}} S_2(\theta) E_l$$

(III.71)

$$E'_r = \frac{\lambda}{i2\pi r} e^{i(\omega t - \frac{2\pi r}{\lambda})} e^{-i\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}} S_1(\theta) E_r$$

- et pour la particule (2) :

$$E'_l = \frac{\lambda}{i2\pi r} e^{i(\omega t - \frac{2\pi r}{\lambda})} e^{+i\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}} S_2(\theta) E_l$$

(III.72)

$$E'_r = \frac{\lambda}{i2\pi r} e^{i(\omega t - \frac{2\pi r}{\lambda})} e^{+i\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}} S_1(\theta) E_r .$$

Faisons interférer les deux faisceaux. Pour un champ incident non polarisé et d'éclairement E_0 , l'éclairement total diffusé par les deux particules sera :

$$(III.73) E'(\theta) = \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} 4 \cos^2 \left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u} \right) (S_1 \tilde{S}_1 + S_2 \tilde{S}_2) E_0 .$$

En remarquant que $(S_1 \tilde{S}_1 + S_2 \tilde{S}_2) = \alpha^2 K p(\theta)/2$, où α , K et $p(\theta)$ correspondent à une particule du doublet, cette relation devient :

$$(III.74) E'(\theta) = \frac{R^2 K}{r^2} \cos^2 \left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u} \right) p(\theta) E_0 .$$

Et en identifiant à l'expression classique $E'(\theta) = \frac{k_d}{r^2} \cdot \frac{p_d(\theta)}{4\pi} E_0$ où k_d est le coefficient de diffusion du doublet et $p_d(\theta)$ sa fonction de phase normalisée, on aura :

$$(III.75) k_d \cdot p_d(\theta) = 4\pi R^2 K \cos^2 \left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u} \right) \cdot p(\theta) .$$

Le calcul du coefficient k_d , attribué au doublet avec nos hypothèses, pourrait se faire en intégrant l'expression précédente sur θ , avec $p(\theta)$ et $p_d(\theta)$ normalisées. Le calcul serait difficile et ne présente pas ici un grand intérêt; nous voyons simplement qu'on majorera ce coefficient en posant :

$$(III.76) k_d \cdot p_d(\theta) < 4\pi R^2 K p(\theta) \quad , \quad \text{soit } k_d < 4\pi R^2 K ;$$

L'égalité serait obtenue si les deux vibrations étaient toujours en phase, quel que soit θ , comme ce serait le cas pour $R = 0$.

Revenons à la fonction de phase $p_d(\theta)$. Nous observons un grand nombre de doublets. Supposons qu'un doublet peut prendre une orientation quelconque avec la même probabilité, on aura alors en moyenne, pour l'intensité diffusée :

$$(III.77) \overline{j(\theta)} = r^2 \overline{E'(\theta)} = 4\pi R^2 K p(\theta) \overline{\cos^2 \left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u} \right)}$$

avec :

$$(III.78) \overline{\cos^2\left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}\right)} = \frac{1}{4\pi} \iiint_{\text{espace}} \cos^2\left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}\right) d\omega .$$

La quantité à intégrer ne dépend pas des axes. Prenons suivant \vec{s} l'axe origine des ζ , en coordonnées sphériques, avec $d\omega = \sin\zeta d\zeta d\xi$ (voir figure (III.32)). On aura $\vec{s} \cdot \vec{u} = s \cos \zeta$, et donc :

$$\begin{aligned} \overline{\cos^2\left(\frac{2\pi}{\lambda} R \vec{s} \cdot \vec{u}\right)} &= \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\xi \int_0^\pi \cos^2\left(\frac{2\pi}{\lambda} R s \cos \zeta\right) \sin\zeta d\zeta \\ &= \frac{1}{2} \int_{-q}^{+q} \cos^2 u du = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\sin(2q)}{2q}\right), \text{ où } q = \frac{\lambda}{2\pi R s} ; \end{aligned}$$

ce qui donnera finalement :

$$(III.79) \overline{j(\theta)} = 2\pi R^2 K p(\theta) \left(1 + \frac{\sin 4\alpha \sin(\theta/2)}{4\alpha \sin(\theta/2)}\right) .$$

Puisque le coefficient de diffusion d'un doublet est inférieur à 4 fois celui d'une particule isolée, avec 2 % de doublets dans le milieu, la fonction de phase observée sera perturbée au plus par :

$$p_m(\theta) = 0,08 p_d(\theta) + 0,92 p(\theta) , \text{ soit} \\ (III.80)$$

$$\beta_1^{(m)} = 0,08 \beta_1^{(d)} + 0,92 \beta_1 .$$

A titre d'exemple, dans le cas du latex LS.057.A ($\alpha = 2,025$), on a calculé par (III.79) $\overline{j(\theta)}$ qui est proportionnelle à la fonction de phase $p_d(\theta)$ et on l'a ensuite développée en polynômes $P_1(\mu)$, par (III.64), en la normalisant ($\beta_0 = 1$). Les coefficients $\beta_1^{(d)}$ ainsi obtenus étant reportés dans (III.80), on a :

$$\begin{aligned}
 & \beta_1^{(m)} = \beta_1 (1+0,008) & \beta_4^{(m)} = \beta_4 (1+0,225) \\
 \text{(III.81)} & \beta_2^{(m)} = \beta_2 (1+0,034) & \beta_5^{(m)} = \beta_5 (1+0,460) \\
 & \beta_3^{(m)} = \beta_3 (1+0,099) & \beta_6^{(m)} = \beta_6 (1+0,735)
 \end{aligned}$$

Sauf pour β_1 , la correction joue bien dans le sens observé, mais elle reste beaucoup plus faible que l'écart expérimental déjà égal, pour β_3 , à 50 % (figure (III.30)). L'expression (III.79) n'est évidemment qu'approchée; par ailleurs, il est possible que, sous la pression de radiation, les doublets prennent une orientation privilégiée dans le sens du champ incident, ce qui augmenterait la perturbation du diagramme. Mais il semble quand même que la présence des doublets est insuffisante à expliquer les divergences expérimentales, et il ressort finalement de cette analyse que les latex ne permettent pas une vérification précise de la théorie de Mie. On peut alors penser que la condition d'homogénéité des particules n'est pas respectée; et en particulier il est possible que la couche de surface des latex présente des propriétés particulières.

V - Discussion pour les Afcolacs.

On voit que pour ces particules, de granulométries mal définies, la méthode employée permet de trouver facilement et sans tâtonnements, la dimension moyenne probable correspondant à la fonction de phase expérimentale. On peut alors discuter brièvement des méthodes de microscopie.

Il apparait que les méthodes d'ombrage donnent, pour les A.451.91.5 (D) et (E), une dimension apparente 40 % trop forte. Ces mesures ayant été faites avec le microscope de l'Institut Pasteur, dont le grossissement théorique est 30 % trop fort comme on l'a vu, il semble que la méthode d'ombrage donne finalement un diamètre apparent 10 % trop fort, pour les Afcolacs.

Dans le cas de la méthode par coloration négative la discussion est plus difficile. Pour l'Afcolac A.451.91.5(B), dont la granulométrie a été faite à l'Institut Pasteur, la dimension théorique est 15 % trop forte. Compte tenu de l'erreur de grossissement, plus forte et de sens contraire, la coloration négative diminuerait donc de 15 % environ le diamètre réel. Pour l'A.451.91.5(D), étudié en coloration négative au C.E.N., avec grille étalon, le grossissement doit être bon et l'erreur due au recouvrement donnerait ici un diamètre trop faible de 40 %. Il est possible que le recouvrement du colorant varie d'un produit à l'autre. Encore une fois, une étude plus complète nécessiterait l'utilisation intensive d'un microscope électronique et nous ne pouvons obtenir ici, sur les méthodes de microscopie, que quelques aperçus qualitatifs. L'essentiel reste pour nous de déterminer la fonction de phase réelle à introduire dans l'équation de transfert et nous comparerons les résultats dans la dernière partie.

Il reste à signaler un point important pour ces afcolacs. Leurs dimensions sont trop imprécises pour que nous puissions discuter valablement de la théorie de Mie à leur sujet. Mais on remarquera néanmoins que pour les trois afcolacs du type A retenus, mis à part cette question de dimension, les β_1 expérimentaux reportés sur les figures (III.31) et (III.32) suivent assez bien l'allure des coefficients déduits des granulométries, et restent raisonnablement dispersés par rapport aux coefficients correspondant au rayon moyen des particules. On comparera en particulier les cas de l'afcolac A.451.91.5(D) et du latex $\alpha = 4,2$ et ceux de l'afcolac A.451.91.5(B) et du latex $\alpha = 2,025$; les coefficients obtenus pour les latex apparaissent nettement plus dispersés que ceux des afcolacs; ces derniers correspondent donc beaucoup mieux à ce qu'on peut attendre de la théorie de Mie. L'afcolas F.2 présente au contraire le même effet de dispersion que les latex, cette différence de comportement n'apparaissant évidemment pas sur les fonctions de phase expérimentales et n'étant révélée que par cette méthode d'analyse. Il est donc possible que la divergence des résultats doive être cherchée dans la nature même des particules, les latex et l'afcolac F.2 étant des polystyrènes, particules électriquement chargées, alors que les afcolacs du type A sont des acétates de polyvinyle non ioniques.

En conclusion, le dispositif et la méthode de mesure utilisés, per-

mettant un contrôle satisfaisant des fonctions de phase des milieux étudiés, suffisent à notre étude. Mais il semble bien qu'un problème soit posé au niveau des conditions de surface des particules. Ce problème sort du cadre de notre étude actuelle, mais sa résolution serait intéressante, et un premier pas serait la mise au point d'un dispositif expérimental plus performant et plus précis, permettant en particulier la détermination de $p(\theta)$ dans les directions avant, dont les informations sont essentielles.

QUATRIEME PARTIE

ETUDE EXPERIMENTALE
DU REGIME ASYMPTOTIQUE

A - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le dispositif utilisé a déjà été décrit [24]. On cherche à réaliser une représentation satisfaisante d'une couche plane-parallèle, homogène, limitée par deux plans parallèles infinis, uniformément éclairée sur sa face supérieure par un faisceau parallèle. En outre, dans le cas étudié ici, on s'intéresse au régime asymptotique de grande profondeur, ce qui suppose a priori la couche semi-infinie. Rappelons enfin que dans le travail expérimental, nous nous sommes limité à des mesures de luminance totale, sans étudier les caractéristiques de polarisation.

On verra que le dispositif, bien que rudimentaire, est satisfaisant pour l'étude envisagée. Il comporte (voir figure (IV.1))

- une cuve (C) de section carrée de 1m^2 de surface et de profondeur 25cm dont les parois et le fond sont noircis et qui contient le milieu diffusant et absorbant;

- un phare (P), à miroir sphérique, qui donne à partir d'une lampe (L) de 1000 Watts, un faisceau sensiblement uniforme et parallèle: l'orientation du faisceau est variable;

- le détecteur optique appelé "Troublomètre" (T), construit par la maison R.E.O.S.C. suivant nos indications, et dont le schéma est donné sur la figure (IV.2). Il amène sur un photomultiplicateur (1) le rayonnement diffusé se propageant dans une direction (θ, ϕ) en un point M du milieu. C'est un appareil à faible champ (3°), assurant une excellente transmission de la lumière par une tige de silice (2) placée à l'intérieur du corps de l'appareil. Un boîtier (3) permet d'insérer un filtre interférenciel sélectionnant une bande de longueurs d'ondes suffisamment étroite. Un jeu de filtres

gris (4) permet en outre de travailler dans une zone de sensibilité convenable du photomultiplicateur.

En translatant l'ensemble de l'appareil à travers le joint étanche (5) on peut relever les luminances à des profondeurs variables. Enfin, deux alidades (6) permettent, l'une, de faire tourner l'ensemble du troublemètre autour de son axe vertical yy' en repérant l'angle ϕ , l'autre, de faire pivoter la partie mobile de la tête de l'appareil autour de l'axe xx' (voir figure IV.2) en repérant l'angle θ .

B - METHODE DE MESURE. CAUSES D'ERREURS

A l'aide de ce dispositif, et en utilisant un diffusant donné, nous nous proposons alors :

- 1) de mettre en évidence expérimentalement l'existence du régime asymptotique;
- 2) de mesurer les caractéristiques de ce régime, c'est-à-dire :
 - la variation du coefficient d'extinction ν en fonction du paramètre ω_0 ,
 - et celle du diagramme $g(\mu)$ en fonction de ce même ω_0 ;
- 3) de comparer ces résultats aux résultats théoriques obtenus comme on l'a vu dans la 2ème partie.

I - Réalisation du milieu trouble.-

Pour pouvoir varier facilement le paramètre ω_0 , on est amené à

réaliser avec deux produits différents les propriétés d'absorption et de diffusion du milieu. Pour ce faire

- l'absorption, caractérisée par le coefficient b , est déterminée par une certaine quantité d'un colorant noir, en l'occurrence un triazoïque de la benzidine, mis en solution avec l'eau dont on remplit la cuve.

- le diffusant est ensuite mis en suspension dans cette solution. Il s'agit, comme on l'a vu dans la 3ème Partie, d'Afcolacs; mais nous avons également utilisé du lait. Ce dernier milieu, très diffusant, est très stable mais mal caractérisé optiquement (indices et dimensions des particules constituantes inconnus). On considère, en première approximation, comme négligeable l'absorption propre de ces diffusants; donc leur coefficient de transmission comme dépendant uniquement du coefficient de diffusion pure k du milieu. On verra plus loin les corrections à apporter à cette approximation.

Pour calculer théoriquement la luminance $I(\tau, \mu)$, nous devons connaître, en plus de la fonction de phase $p(\theta)$ étudiée comme on l'a vu dans la 3ème Partie, les paramètres ω_0 et K du milieu, ou, ce qui est équivalent, les coefficients k et b . On mesure donc d'abord par transmission, au Diffusiomètre, les valeurs des coefficients d'absorption b du colorant et de diffusion k du diffusant, en fonction de la concentration de ces produits. Les concentrations des deux produits dans le milieu final sont ajustées pour réaliser le paramètre ω_0 et le coefficient K désirés.

On a alors réalisé un milieu optiquement connu qu'on éclaire à l'aide du phare. Si on relève à des profondeurs et dans les directions variables le courant débité par le photomultiplicateur, on aura, à une constante d'appareil près, les valeurs correspondantes de la luminance $I(h, \theta, \phi)$; Nous ne chercherons pas à déterminer ce facteur d'appareil, puisque nous ne nous intéressons qu'aux variations de I et non à sa valeur absolue. Toutefois avant de passer aux mesures proprement dites, il est nécessaire de vérifier certaines propriétés de notre milieu.

II - Tests préliminaires.-

- On teste d'abord la compatibilité du colorant et du diffusant. On prélève pour cela un échantillon du milieu, dont on mesure, après dilution convenable, la fonction de phase $p(\theta)$ au diffusiomètre. On a constaté que pour le lait et les afcolacs que nous avons utilisés, les fonctions $p(\theta)$ ainsi mesurées étaient pratiquement inchangées par rapport à celles des diffusants purs.

- On étudie ensuite la stabilité du mélange en pointant, en fonction du temps, la luminance $I(h_0, \theta_0, \phi_0, t)$ à une profondeur h_0 et dans une direction (θ_0, ϕ_0) constantes, et la variation de la luminance, avec h , autour de ce point. A titre d'exemple, on a tracé figure (IV.3) les courbes donnant, pour un afcolac :

$$(IV.1) \quad I(h_0, \theta_0, \phi_0) = f(t) \quad \text{et} \quad \frac{\Delta \log I(h, \theta_0, \phi_0, t)}{\Delta h} = g(t) \quad .$$

Les allures de ces courbes sont générales; luminance et pente varient d'abord rapidement, puis restent sensiblement constantes. On constate en outre que dans le temps qui suit la phase de stabilisation, les valeurs relatives de la luminance restent constantes à la précision des mesures. C'est donc dans cette seconde phase que l'on effectuera les mesures. On pourra, si nécessaire, rajuster de temps à autre la constante multiplicative des résultats en pointant une valeur de référence de $I(h, \theta, \phi)$.

- On peut enfin s'assurer que les produits utilisés ne présentent pas de défauts d'homogénéité ou de décantation lorsqu'ils sont dilués dans la cuve; aucune modification sensible des mesures n'est en effet apportée par un brassage du milieu en cours d'expérience.

Pour chacun des produits diffusants utilisés, ces différents tests sont effectués une fois pour toutes sur un bain d'essai.

III - Obtention du régime asymptotique.-

Le milieu ayant eu le temps de se stabiliser, nous relevons, dans un plan vertical fixe, $I(h, \theta)$ en fonction de h , pour différentes valeurs de l'angle θ . Si on trace le réseau des courbes :

$$(IV.2) \quad \log I(h, \theta) = f(h)$$

l'angle θ étant pris comme paramètre, on obtient, dans les conditions expérimentales précisées ci-dessous, un réseau du type de la figure (IV.4) sur lequel, entre les profondeurs h_a et h_b , les courbes sont linéaires.

Au-delà de h_b et en deçà de h_a , les influences du fond et de la surface se font sentir. Au voisinage de la surface, en particulier, on remarque que la luminance se réduit à la luminance transmise (incidence oblique à 30° dans ce cas de figure).

Mais dans la zone intermédiaire les conditions d'un milieu infini sont réalisées et la linéarité des courbes correspond bien à l'allure théorique du transfert asymptotique cherché. C'est sur cette partie rectiligne du réseau que nous mesurerons donc les quantités ν et $g(\mu)$.

On aura $g(\mu)$ ou $g(\cos \theta)$ en relevant les valeurs de $I(h_0, \theta)$ à une profondeur h_0 fixe de l'intervalle (h_a, h_b) , en fonction de θ . On corrigera, bien sûr, la profondeur de visée lue, par un facteur d'appareil dépendant de θ , et exprimant les variations de profondeur du centre de la glace d'entrée du troublomètre, lorsqu'on tourne la tête mobile pour faire varier θ .

D'autre part, si l'on appelle p la pente des droites $\log I(h, \theta_0) = f(h)$ nous aurons ν en écrivant :

$$(IV.3) \quad 10^{-ph} = e^{-\nu \tau},$$

soit :

$$(IV.4) \quad \nu = p \cdot \text{Log}_e 10 / (k+b) .$$

En général, les coefficients usuels d'absorption et de diffusion sont plutôt exprimés en cm^{-1} et en valeurs décimales. Par la suite, nous utiliserons donc ces coefficients, repérés par le symbole ($'$), et tels que :

$$(IV.5) \quad 10^{-k'x} = e^{-kx} \quad \text{et} \quad 10^{-b'x} = e^{-bx} ,$$

ce qui donnera donc :

$$(IV.6) \quad v = p/(k'+b') = p/K' .$$

On constate expérimentalement que la zone de linéarité des courbes précédentes n'apparaît que si l'on réunit les conditions suivantes :

- l'épaisseur optique totale de la couche (soit $\tau_1 = (k+b)h_1$, où $h_1 = 20$ cm dans nos mesures) est au minimum de l'ordre de 20;
- l'intervalle de longueurs d'ondes sur lequel on opère est suffisamment étroit, même si les propriétés des produits utilisés varient peu avec λ ; d'où l'utilisation de filtres interférentiels (bande passante de $0,01 \mu$ environ dans le visible).

La première condition est d'ordre empirique. La zone $0 < \tau < \tau_a$ ($\tau_a = (k+b)h_a$) nécessaire à l'établissement du régime asymptotique croît un peu avec l'angle θ_0 du faisceau incident et avec la grosseur des particules, mais reste voisine de 10. Au-delà de $\tau_b = (k+b)h_b$, et surtout pour les directions visant le fond, l'influence de ce fond noir se fait sentir et perturbe à nouveau le régime asymptotique; suivant les valeurs de ω_0 (c'est-à-dire de l'absorption) on a $\tau_1 - \tau_b$ de l'ordre de 5 à 10 pour les visées vers le bas. En conclusion, nous avons été amenés à utiliser des concentrations de diffusant donnant τ_1 de l'ordre de 40 à 200, soit des coefficients k' de 1 à 4 cm^{-1} , le coefficient b' étant fixé par le choix de ω_0 .

La seconde condition correspond au fait que si l'on travaille sur un intervalle $\Delta\lambda$ de longueurs d'ondes trop grand, une variation même très légère du coefficient d'absorption b' avec λ suffira, sur d'aussi grandes épaisseurs optiques, à faire varier fortement la distribution spectrale $I(\lambda)$

sur $\Delta\lambda$, au fur et à mesure qu'on s'enfoncera dans la couche. De sorte que le paramètre apparent ω'_0 , défini par :

$$(IV.7) \quad \omega'_0(\tau) = \frac{\int_{\Delta\lambda} \frac{k'(\lambda) I(\tau, \lambda)}{k'(\lambda) + b'(\lambda)} d\lambda}{\int_{\Delta\lambda} I(\tau, \lambda) d\lambda}$$

variera avec λ ; et donc, la pente ν variant, on n'aura plus le régime exponentiel simple. Cette condition oblige à travailler avec des filtres interférentiels, ce qui limite fortement la lumière reçue et donc les possibilités d'étude.

IV - Précision des mesures.-

Remarquons enfin que la rapidité avec laquelle on constate l'établissement du régime asymptotique dépend évidemment de la précision avec laquelle se font les mesures, et donc de la rigueur avec laquelle on détecte la linéarité des courbes $\log I(h, \theta) = f(h)$. La précision donnée par la chaîne de détection elle-même, est conditionnée par les erreurs :

- de relevé de la profondeur h ,
- de pointé des angles θ et ϕ ,
- de détection et d'enregistrement du courant de photomultiplicateur (dus principalement au bruit de fond et aux variations du courant d'obscurité).

L'ensemble de ces erreurs donne une répétabilité expérimentale de l'ordre de :

$$\Delta \log I(h, \theta) = \pm 0,005$$

(enregistrement logarithmique du courant).

A ces différentes erreurs s'ajoute, dans des mesures relatives, l'erreur d'étalonnage des filtres gris; cette dernière erreur enlève toutefois peu de précision à la détermination de ν et de $g(\mu)$. Le relevé d'un diagramme $g(\mu)$ à une profondeur donnée nécessite en effet rarement plus d'un seul changement de filtre, et on prendra pour la pente p , dont on déduit ν , la valeur moyenne d'un grand nombre de pointés. Finalement, les précisions moyennes des mesures sont environ de :

$$\Delta p/p = 2 \%$$

(IV.8)

$$\Delta g(\mu) / g(\mu) = 5 \%$$

V - Etude des diverses erreurs systématiques.

A partir des réseaux de courbes tels que celui de la figure (IV.4), nous pouvons étudier les influences, sur le régime asymptotique, des différentes erreurs systématiques introduites dans la réalisation de notre couche plane-parallèle et semi-infinie.

1) Influence du fond

On vérifie facilement que, dans leur zone de linéarité, les courbes de luminance ne sont pas affectées par la présence du fond noir, limitant le milieu théoriquement infini. Il suffit pour s'en assurer de revêtir le fond d'un matériau blanc ou réfléchissant; les courbes sont alors fortement modifiées pour les profondeurs supérieures à h_p , mais inchangées dans la zone linéaire. Ce résultat est d'ailleurs prévisible. L'influence d'un fond noir placé à $\tau = \tau_1$ est analogue à celle de pseudo-sources "négatives" disposées sur ce fond, et rayonnant vers le haut avec, en valeur absolue, la luminance $I(h_1, \theta > 0)$ du régime non perturbé (de façon à respecter la condition limite $I(h_1, \theta > 0) = 0$ sur le fond). De telles sources agiront comme le faisceau incident, mais en sens inverse, et donneront également, dans la zone $h_a < h < h_p$ un régime asymptotique qui représente la perturbation du fond sur

notre mesure. Si on remarque alors que les sources négatives sont 100 ou 1.000 fois plus faibles que le faisceau incident, on comprend que leur influence reste négligeable.

2) Influence des parois

Par rapport à la géométrie du milieu, la présence des parois introduit une seconde perturbation systématique. Plus exactement, la limitation transversale de la couche est due, non seulement aux parois de la cuve, mais aussi à la structure du faisceau éclairant, de diamètre = 60 cm, qui ne recouvre pas entièrement la surface libre de la couche.

Ici encore, le plus simple est de faire varier l'effet perturbateur pour étudier son importance. On introduit pour cela dans la cuve, éclairée normalement, des parois mobiles, soit en tôle noircie, soit en glace réfléchissante. On trace les réseaux de courbes relevés pour divers écartements de ces parois. Remarquons d'ailleurs que lorsque les parois de glace ne sont plus distantes que de 40 cm environ, elles s'inscrivent dans la tache du faisceau, de sorte que, pour un éclairage perpendiculaire, on obtient artificiellement un milieu infiniment étendu latéralement, aux défauts près d'absorption des glaces. On constate que tant que les parois mobiles restent à une distance de l'appareil supérieure à environ 10 cm, les mesures sont indépendantes de la nature comme de la position de ces parois, sauf dans le cas où l'absorption devient très faible ($\omega_0 > 0,975$ à $0,980$). Nous n'avons pas approfondi ce cas particulier des milieux quasi-conservatifs; il présenterait sans doute une difficulté expérimentale nouvelle en raison du rôle important qu'y jouent les parois. Mais pour les taux d'absorption utilisés dans nos mesures, notre dispositif est à ce point de vue satisfaisant et les limitations latérales de l'éclairement et du milieu sont sans importance.

Comme dans le cas du fond, on pourrait expliquer le rôle négligeable des parois en considérant que la luminance relevée est la luminance théorique diminuée d'une luminance correctrice, $I'(h, \theta)$, due à des pseudo-sources "négatives" convenables qu'il faut placer sur les parois pour y satisfaire aux nouvelles conditions limites. Plus simplement essayons de relier l'influence des parois à l'importance de l'absorption, et d'évaluer numéri-

quement l'erreur maximum à laquelle on peut s'attendre. Pour cela, dans l'hypothèse d'une incidence normale, considérons la luminance en un point M du milieu situé sur l'axe du faisceau. Pour pouvoir contribuer au régime lumineux en M, un photon tombant en P sur la surface de la couche doit parcourir au minimum la distance PM. La probabilité pour qu'il atteigne M sans être absorbé est alors approximativement

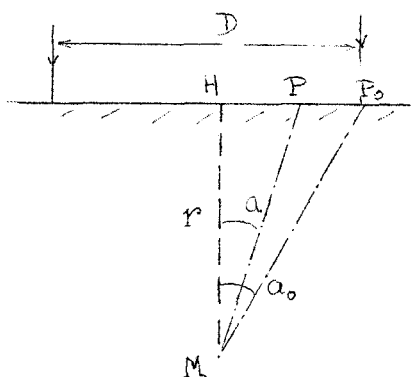


Figure (IV.5)

$$p = e^{-b \cdot PM}$$

La valeur adoptée pour

Cette probabilité est ainsi d'autant plus fortement majorée que le point P est plus écarté de l'axe, puisqu'on n'a pas tenu compte :

- des allongements de trajet entre P et M dus aux diffusions multiples, et d'autant plus probables que PM est plus grand
- ni du fait que, lors de la diffusion primaire en P, la dissymétrie de la fonction de phase $p(\theta)$ donne une probabilité de déflexion du photon vers M d'autant plus faible que le point P est plus éloigné. Même avec une probabilité aussi défavorable, on peut pourtant montrer le rôle négligeable de la limitation du faisceau incident à un cylindre de rayon HP_0 (de l'ordre de 30 cm ici), dès que le coefficient d'absorption b est suffisamment élevé. Avec nos hypothèses précédentes, appelons en effet P_1 et P_2 les poids des contributions au régime lumineux en M des photons arrivant sur la couche, respectivement à l'intérieur du cercle de rayon HP_0 et sur le reste de la surface. En posant $HM = r$ et $HMP = a$, et en prenant pour élément de surface réceptrice une couronne circulaire $2\pi \cdot HP \cdot dHP$, on aura :

$$P_1 = \int_0^{HP_0} 2\pi HP \exp(-b \cdot MP) dHP = \int_{br}^{br/\cos a_0} \frac{2\pi}{b^2} e^{-u} \cdot u \cdot du$$

$$P_2 = \int_{HP_0}^{\infty} 2\pi HP \exp(-b \cdot MP) dHP = \int_{br/\cos a_0}^{\infty} \frac{2\pi}{b^2} e^{-u} \cdot u \cdot du$$

($a_0 = HMP_0$; figure (IV.5))

.../...

où on a posé :

$$u = rb/\cos a$$

ce qui donne :

$$P_1 = \frac{2\pi}{b^2} \left[e^{-rb} (1+rb) - e^{-rb/\cos a_0} (1+rb/\cos a_0) \right]$$

(IV.9)

$$P_2 = \frac{2\pi}{b^2} \left[e^{-rb/\cos a_0} (1+rb/\cos a_0) \right]$$

Si l'on considère alors que le régime asymptotique apparaît déjà à des profondeurs moyennes $r \sim 10$ cm, avec des coefficients $K' = k' + b'$ de 1 à 4 cm^{-1} , on voit que, pour $\omega < 0,900$, le coefficient népérien d'absorption b est supérieur à $0,25 \text{ cm}^{-1}$, ce qui donne, avec $HP_0 = 30$ cm,

$$(IV.10) \quad P_2 / P_1 \sim 5.10^{-3} ;$$

et même ainsi majorée, la contribution des photons absents se révèle négligeable.

3) Influence des défauts d'éclairage.

La simulation d'un faisceau parallèle et uniforme à l'aide du phare (P) reste évidemment assez grossière du fait de la position de la lampe (L) qui masque partiellement la lumière réfléchiée et provoque une ombre gênante sur l'axe du système où est justement placé le détecteur optique.

Le choix principal dans le mode d'éclairage est donc celui de la lampe. Ou bien on cherchera à réaliser un parallélisme aussi rigoureux que possible du faisceau en utilisant une source ponctuelle, mais l'enveloppe de la lampe et son filament provoqueront alors toujours une ombre très marquée. Ou bien au contraire, on sacrifiera le parallélisme pour gagner en uniformité, en utilisant une lampe à enveloppe large et dépolie; le rayonnement direct de la lampe masquera alors plus facilement l'ombre beaucoup moins mar-

quée sur le faisceau dispersé donné par la source étendue que constitue le verre dépoli de la lampe.

Le régime asymptotique ne dépendant pas en valeurs relatives de la direction du faisceau incident, (comme on l'a dit dans la deuxième partie et comme on a pu le vérifier en variant l'inclinaison du phare), on est amené à choisir plutôt le second mode d'éclairage qui donnera des défauts de parallélisme, en principe sans importance dans notre étude, mais réalisera mieux l'uniformité d'éclairage indispensable.

On a donc utilisé comme source une lampe à verre dépoli, en maintenant en outre le phare aussi loin que possible de la surface pour gagner encore en uniformité. On a tracé sur la figure (IV.6) le diagramme de la lumière incidente, mesuré hors de la couche pour une incidence normale. Ce diagramme a été relevé sur l'axe du faisceau et se déformerait légèrement si l'on s'écartait de l'axe, mais on voit que la lumière incidente reste localisée dans un angle d'ouverture assez faible. On a également relevé de place en place l'éclairage reçu par la surface, en l'intégrant par une cellule photo-électrique. Cet éclairage reste uniforme à 20% environ dans la zone éclairée.

Enfin, pour les mesures en milieux fortement absorbants, nous interposons un large verre dépoli, sur le faisceau du phare, utilisé en incidence normale. Ce verre corrige partiellement les défauts d'uniformité et présente surtout l'intérêt d'éclairer la couche avec un rayonnement diffus dont le diagramme de luminance est plus proche du diagramme asymptotique que celui du faisceau direct; la plus grande rapidité avec laquelle s'établit alors ce régime asymptotique compense largement les pertes lumineuses par réflexion ou absorption du verre dépoli, et permet une étude plus facile des milieux très absorbants.

Les défauts d'éclairage étant ainsi compensés au maximum, on étudie leur influence en relevant les pentes p et les diagrammes $g(\mu)$ dans divers plans verticaux autour de l'axe de l'appareil. La partie horizontale de la tête du détecteur se déplace alors dans un rayon de 8cm environ, c'est à dire dans une région où les défauts d'uniformité de l'éclairage sont déjà assez importants. On constate que ces défauts persistent en profondeur, et

que dans une rotation autour de la verticale, les luminances ont, à l'intérieur de la couche, les mêmes maxima et minima que l'intensité incidente. Cependant, à la précision des mesures, les pentes restent les mêmes, ainsi que les diagrammes relatifs. A titre d'exemple on a tracé, figure(IV.7) 4 diagrammes, arbitrairement ramenés à une même valeur à 90° , et correspondant à 4 plans verticaux perpendiculaires entre eux. On voit que la corrélation des mesures est assez bonne en valeurs relatives, bien que les écarts absolus atteignent 30 %. Ceci est encore à rapprocher de la remarque précédente sur le faible rôle des points éloignés, dans le régime lumineux en un point donné; pour un éclairage non parfaitement uniforme de la couche, on observe donc à l'intérieur du milieu la juxtaposition de régimes asymptotiques présentant les mêmes caractéristiques, mais dont les intensités absolues varient en reproduisant les variations de l'éclairage incident.

Il n'en reste pas moins que les défauts d'éclairage sont la principale cause d'erreur et diminuent fortement la précision de $g(\mu)$. Dans les mesures définitives, on a essayé de compenser au maximum ces erreurs en prenant pour $g(\mu)$ la valeur moyenne de 4 diagrammes relevés dans des plans perpendiculaires. On verra que les résultats ainsi obtenus sont finalement assez bons si on les compare aux valeurs théoriques, mais cette limitation de précision, bien supérieure à celle que donnerait le détecteur lui-même, rend difficile une analyse plus poussée des résultats. Une amélioration ultérieure de l'éclairage de la couche apparaît donc souhaitable.

4) Influence du détecteur optique

La dernière perturbation systématique de la mesure est due à la présence même du détecteur à l'intérieur du milieu. Les faces de ce détecteur ont été noircies pour éviter les réflexions parasites, de sorte que l'introduction du troublomètre revient à ôter un certain volume diffusant au voisinage immédiat du point où l'on fait la mesure. Le fait, déjà plusieurs fois souligné, que le régime lumineux, en un point d'un milieu trouble, soit principalement régi par les points voisins, va jouer ici défavorablement, et l'on doit s'attendre à ce que cette élimination d'un volume diffusant capital, au voisinage du point où l'on fait la mesure, perturbe le diagramme expérimental.

Des faces réfléchissantes, pour le troublomètre, compenseraient

sans doute partiellement ce défaut de volume; mais outre que les réflexions de lumière deviendraient gênantes pour les études de régimes moins symétriques (au voisinage de la surface, par exemple), le volume immédiatement situé derrière la glace d'entrée du détecteur ne peut être remplacé par aucun artifice et joue un rôle primordial.

Il est à peu près hors de question de calculer théoriquement la perturbation de l'appareil. Néanmoins, pour se faire une idée de la façon dont elle doit jouer, et comme il semble peu rigoureux de raisonner sur des "ombres portées" dans le cas d'un régime diffus dont le flux direct a disparu, on peut essayer d'assimiler l'influence du volume diffusant absent à celle d'une source correctrice convenable. Ici encore, la luminance détectée en un point A de la glace d'entrée de l'appareil est la luminance théorique $I(h(A), \theta, \phi)$, diminuée d'une luminance diffuse "négative" due aux pseudo-sources "négatives" que nous devons répartir aux différents points M de la surface de l'appareil pour y satisfaire aux conditions limite. L'appareil étant noirci, ces sources émettront dans toutes les directions (θ, ϕ) avec la luminance théorique $I(h(M), \theta, \phi)$ comptée négativement. En première approximation, on peut raisonnablement substituer à ces sources une unique source ponctuelle négative, placée vers le centre O de la tête de l'appareil (volume le plus actif), et dont on pondérera l'émission de façon à retrouver sensiblement, dans une direction (θ, ϕ) , la somme de toutes les luminances négatives précédentes. Ce qui revient à attribuer à cette source ponctuelle une intensité énergétique :

$$(IV.11) \quad j(\theta, \phi) = - \iint_{S(\theta, \phi)} I(h(M), \theta, \phi) \, dS ,$$

où $I(h(M), \theta, \phi)$ représente la luminance non perturbée tombant en un point M de la surface de l'appareil, et $S(\theta, \phi)$ la section apparente de l'appareil dans la direction (θ, ϕ) . (voir figure (IV.8))

Il apparait alors que la perturbation considérée sera beaucoup plus forte pour les visées vers le fond que pour celles vers la surface, et

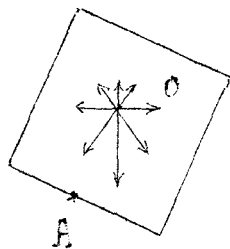


Figure (IV.8)

augmentera avec l'absorption. On voit en effet qu'en un point A de la face d'entrée de l'appareil :

- la dissymétrie dans l'émission de la source ponctuelle, liée à celle de $g(\mu)$ dans (IV.11), donne une correction croissante lorsque μ passe de -1 à $+1$, cette croissance étant d'autant plus rapide que $g(\mu)$ est plus dissymétrique, donc que ω_0 est plus faible;
- cette correction, déjà dissymétrique, se superpose à une grandeur à détecter également dissymétrique mais justement en sens inverse : d'où une importance relative $\Delta I/I$ de la correction, beaucoup plus grande pour $\mu > 0$ que pour $\mu < 0$, et encore croissante avec $(1-\omega_0)$;
- enfin les pondérations relatives de l'émission négative, par le facteur $e^{-\nu\tau(o)}$ dans (IV.11), et de la grandeur à mesurer $I(\tau, \mu)$, par $e^{-\nu\tau(A)}$, sont encore dans un rapport défavorable pour $\mu > 0$ ($\tau(A) > \tau(o)$) et croissant avec ν , donc avec l'absorption.

Pour mettre en évidence cette perturbation et pouvoir l'estimer de façon quantitative, le plus simple reste de faire varier son importance, et pour cela, puisqu'on ne peut réduire les dimensions de l'appareil, de faire varier la concentration du milieu étudié. Pour une dilution infinie de ce milieu, le volume optique occupé par l'appareil tendra vers zéro, et on peut espérer s'affranchir de cette perturbation en extrapolant les résultats expérimentaux à la concentration nulle. On est bien sûr limité dans la zone où l'on peut faire varier la concentration de notre milieu puisque :

- si la dilution est trop forte ($k'+b' < 0,75$ ou 1 cm^{-1}) le régime asymptotique n'apparaît plus,
- si la concentration est trop élevée, la décroissance très rapide de l'intensité à détecter, la saturation du milieu en absorbant, la tendance à la décantation de la suspension et d'éventuelles relations de phases entre particules diffusantes trop rapprochées, perturbent fortement les résultats.

Ayant donc préalablement déterminé, pour les produits utilisés, une zone de concentration où les mesures restent suffisamment précises, on effectue sur chaque bain, de ω_0 donné, 4 ou 5 séries de mesures, en partant de la concentration la plus forte et en diluant peu à peu le milieu de façon convenable. Si on trace sur une même figure les diagrammes relevés pour ces différentes concentrations, et arbitrairement ramenés à un même maximum pour $\theta = \pi$, l'allure générale des courbes est celle donnée sur la figure (IV.9) qui montre bien la localisation vers le bas ($0^\circ < \theta < 90^\circ$) de la perturbation d'appareil, et permet de la corriger; sur cette même figure on a en effet tracé en pointillés la courbe $g(\mu)$ déduite des points expérimentaux par extrapolation à une dilution infinie. On constate d'ailleurs que l'erreur $\Delta I(\mu)$ est sensiblement proportionnelle à la concentration (figure IV.10). A la précision des mesures, la pente p des courbes $\log I(h, \theta)$ en fonction de h reste, comme prévu théoriquement, proportionnelle à la concentration. La présence de l'appareil ne perturbe donc pas cette quantité, ce qui semble logique d'après le modèle de perturbation que nous avons adopté et qui donne une erreur $\Delta I/I$ indépendante de h . Notre problème est ainsi expérimentalement résolu.

Remarquons par ailleurs qu'en extrapolant de cette façon nos résultats nous pouvons éviter une autre correction de la mesure, correspondant à l'erreur systématique due à la dimension non négligeable de la glace d'entrée de l'appareil. En effet, si on considère comme linéaires les variations de $g(\mu)$ sur l'intervalle étroit du champ angulaire $\Delta\omega$ de l'appareil, le flux détecté à une profondeur h_0 dans une direction θ ne correspond pas rigoureusement à la luminance $I(h_0, \theta)$ mais à :

$$\phi_1 = \Delta\omega \iint_S I(M, \theta) dS ,$$

où M est un point courant de la surface S de la glace d'entrée.

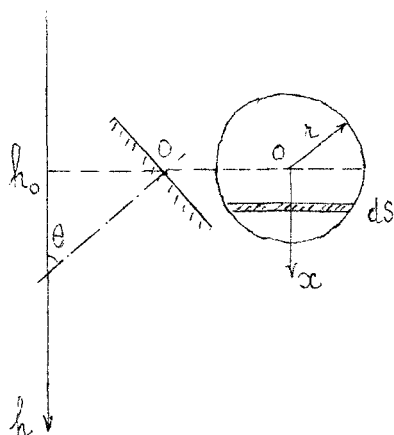


Figure (IV.11)

En appelant r le rayon de cette glace, h_0 la profondeur de son centre O , et en remarquant que l'extinction du faisceau est en $e^{-\nu K h}$, on relève en fait le flux :

$$\Phi_1 = \int_{-r}^{+r} I(h_0, \mu) e^{-\nu K r} \sin \theta \, 2\sqrt{r^2 - x^2} \, dx$$

au lieu de :

$$\Phi_2 = \pi r^2 \Delta \omega \, I(\mu, h_0) .$$

Ce qui donne :

$$(IV.12) \quad \frac{\Phi_1}{\Phi_2} = J_0(-iA) + J_2(-iA), \text{ avec } A = -\frac{\nu K}{r} \sin \theta ,$$

et où $J_0(z)$ et $J_2(z)$ sont les fonctions de Bessel classiques. En développant on trouve une erreur maximum à $\pi/2$ et pouvant atteindre 10 % aux concentrations moyennes utilisées. Mais comme on peut s'y attendre, cette erreur, proportionnelle à K , donc à la concentration, s'élimine d'elle-même si on extrapole à une dilution infinie, ce qui correspond à un détecteur ponctuel, donc exact.

VI - Réalisation des mesures.

En résumé, pour étudier le régime asymptotique, sur les divers produits diffusants considérés, nous avons suivi la méthode de mesure suivante :

1) Tests et mesures préliminaires

- On détermine au diffusiomètre la fonction de phase $p(\theta)$ du diffusant pur, et son coefficient k' de diffusion en fonction de sa concentration. On détermine le coefficient d'absorption b' du colorant en fonction de sa concentration.

- Sur un premier bain on teste la compatibilité des deux produits (en vérifiant au diffusiomètre que $p(\theta)$ ne change pas), la stabilité du mélange en fonction du temps et son homogénéité.

- On détermine enfin les zones de concentration et l'intervalle de valeurs de ω_0 où les mesures sont possibles.

- On peut alors passer aux mesures proprement dites.

2) Mesures du régime asymptotique

Pour chacun des produits et pour diverses valeurs ω_0 choisies dans l'intervalle valable on réalise la série de mesures suivantes :

- on établit un bain de ω_0 donné (à l'aide des déterminations préalables de k' et b') avec la concentration maximum choisie et on vérifie au diffusiomètre le coefficient $(k'+b')$ total;
- on relève dans quatre plans verticaux perpendiculaires les intensités en fonction de h pour les directions $\theta = 0, (10^\circ), 180^\circ$;
- on dilue ensuite 3 ou 4 fois le bain de départ en répétant sur chacun des nouveaux bains ainsi obtenus les mesures précédentes.

3) Dépouillement des mesures

On calcule alors, pour les diverses concentrations du milieu :

- la pente moyenne des droites $\log I(h, \theta) = f(h)$, d'où $v = p/(k'+b')$,
- le diagramme moyen $g(\mu)$ en prenant la moyenne des quatre diagrammes relevés

On extrapole enfin à la concentration nulle le diagramme $g(\mu)$ en ramenant à un même maximum avant les différents relevés et on prend pour v la moyenne des valeurs obtenues pour les différents bains.

C - DETERMINATION RIGoureuse DE ω_0 - ABSORPTION PROPRE DU DIFFUSANT

Avant de comparer les résultats expérimentaux aux courbes théoriques, il reste à préciser un dernier paramètre du milieu, non accessible directement, qui est l'absorption propre du diffusant. En effet, si le diffusant présente une légère absorption propre, de coefficient b'_d , on n'aura qu'une valeur approchée $\omega_0^{(th)}$ de ω_0 en le calculant à partir des mesures préalables des coefficients d'extinction $K' = k' + b'_d$ du diffusant et b'_c du colorant. On aura en fait

$$(IV.13) \quad \omega_0 = \frac{k'}{k' + b'_d + b'_c} = \frac{K'}{K' + b'_c} \cdot \frac{k'}{K'} = \omega_0^{(th)} \cdot \omega_0^{(d)}$$

où le coefficient $\omega_0^{(d)}$ caractérise le diffusant. Si celui-ci est presque un diffusant pur ($\omega_0^{(d)}$ voisin de 1) l'écart entre la valeur prévue $\omega_0^{(th)}$ et la valeur exacte ω_0 sera faible; mais cette erreur risque pourtant d'être gênante, ν variant rapidement avec ω_0 pour les milieux peu absorbants (cf. figure (II.3)).

Nous avons vu dans la 3ème Partie qu'une détermination directe de $\omega_0^{(d)}$ au Diffusiomètre dépassait les possibilités actuelles du dispositif; et nous devons donc chercher une mesure indirecte de b'_d . Ceci est théoriquement tout à fait possible, à partir des mesures de luminance diffuse. Levin et Ivanov ont montré que, dans un cas de transfert absolument général, on pouvait déterminer l'absorption propre totale du milieu à partir des variations de la luminance dans 3 directions perpendiculaires entre elles autour d'un point quelconque [43]. Dans le cas particulier du régime asymptotique, nous obtenons ce résultat en écrivant simplement la relation de récurrence (II.22) pour $l=0$. On aura alors en effet

$$(IV.11) \quad -\nu g_1 = (1 - \omega_0) g_0,$$

soit

$$(IV.15) \quad b' = b'_c + b'_d = -p \frac{g_1}{g_0} = -p \frac{\int_{-1}^{+1} \mu g(\mu) d\mu}{\int_{-1}^{+1} g(\mu) d\mu}$$

où p est défini par (IV.3). A partir des valeurs expérimentales de p et $g(\mu)$ on peut donc déterminer b' , donc b'_d , connaissant b'_c . On a calculé les quantités g_1 et g_0 en utilisant la matrice $[A_i^l]$ établie dans la 3ème partie. En comparant (III.62), (III.64) et (II.15), on voit qu'on aura

$$\sum_{i=0}^{19} (A^{-1})_{\ell}^i g(\theta_i) = (2\ell+1) g_{\ell} \quad , \quad \text{où } \theta_i = i \times 10^\circ, \text{ avec } i = 0, 1 \dots 18;$$

donc le calcul numérique de b' , à partir des valeurs expérimentales $g(\theta_i)$ s'écrit

$$(IV.16) \quad b' = -\frac{p}{3} \frac{\sum_{i=0}^{19} (A^{-1})_{\ell}^i g(\theta_i)}{\sum_{i=0}^{19} (A^{-1})_0^i g(\theta_i)}$$

Connaissant b' on aura la valeur réelle de ω_0 , à partir des mesures par

$$(IV.17) \quad \omega_0 = \frac{K' + b'_c - b'}{K' + b'_c}$$

C'est cette valeur (IV.17) de ω_0 qu'on a utilisée pour exprimer les résultats expérimentaux. On remarquera que la relation (IV.14) est exacte, la relation (II.22), à l'ordre $\ell=0$, étant inchangée que l'on tienne compte ou non de la polarisation. Notons encore que cette méthode de mesure avait déjà été utilisée, sur des milieux très faiblement absorbants ($\omega_0 > 0,900$) par Timofeeva [44].

.../...

Revenons sur l'absorption propre des diffusants utilisés. Nous avons fait des mesures avec une quantité constante de diffusant, soit avec $K' = \text{cst}$, seule la concentration du colorant, C_c , variant d'un bain à l'autre. Si on porte la valeur expérimentale b' de l'absorption totale, obtenue par (IV.16), en fonction de C_c , on aura en principe pour les différents diffusants utilisés, des droites d'équation

$$(IV.18) \quad b' = b'_o \cdot C_c + b'_d$$

où b'_o est le coefficient d'absorption du colorant pour la concentration unité, et b'_d la valeur constante de l'absorption propre du diffusant. En extrapolant les droites (IV.18) à $C_c = 0$, on peut déterminer b'_d et en déduire le coefficient $\omega_o^{(d)}$ du diffusant considéré par

$$(IV.19) \quad \omega_o^{(d)} = \frac{K' - b'_d}{K'}$$

La figure (IV.12) donne les courbes d'équation (IV.18) obtenues pour quelques uns des diffusants étudiés. Les courbes (II) et (III) correspondent à un même échantillon de colorant et sont sensiblement parallèles. On voit que cette méthode de mesure permet d'atteindre de très faibles niveaux d'absorption. Le lait apparaît comme un excellent diffusant, avec $\omega_o^{(d)} \simeq 0,990$. Pour les différents afcolacs étudiés, le coefficient $\omega_o^{(d)}$ reste voisin de 0,970 quelle que soit la dimension moyenne des particules (α_{moy} allant de 2 à 4 environ). La méthode de mesure n'est pas assez précise pour que l'on puisse mettre en évidence, si elle existe, une variation de $\omega_o^{(d)}$ avec α_{moy} . Tout ce qu'on peut dire, est que, si les afcolacs suivent la théorie de Mie, leur indice est complexe avec une partie imaginaire de l'ordre de

$$y = \cdot (2 \pm 0,5) \cdot 10^{-3}$$

D -- RESULTATS

I -- Exemple généraux

Pour indiquer les possibilités du dispositif expérimental, nous avons tracé figure (IV.13) quelques courbes expérimentales $v(\omega_0)$ obtenues pour divers diffusants. Les courbes (I) à (III) correspondent respectivement aux afcolacs A.451.91.5(A), A.451.91.5(D) et A.451.01.7. Les α moyens de ces dispersions, donnés par les granulométries, valent respectivement 2,5; 4,5 et 8, et on retrouve bien qualitativement la variation prévue pour la fonction $v(\omega_0)$ (voir figure (II.3)). Comme prévu également, l'anisotropie des diagrammes $g(\mu)$ augmente avec l'absorption; on en aura un exemple plus loin, figure (IV.15), pour l'afcolac A.451.91.5(D).

Dans le cas de l'afcolac A.451.0A.7, on a tracé la courbe prévue par la granulométrie sur la figure (IV.13), (courbe (IV)). On voit qu'elle correspondrait à des particules beaucoup plus petites, ce qui est dû, comme on l'a vu plus haut, au recouvrement des particules par le colorant négatif qui fausse la mesure des particules au microscope électronique. Il est malheureusement impossible, pour ce produit, de déterminer valablement l'indicatrice au Diffusiomètre, la diffusion avant étant trop intense et ne permettant plus d'extrapoler suivant la méthode utilisée ($\alpha \gg 5$).

L'afcolac A.451.91.5(A) a déjà fait l'objet d'une publication antérieure [24]. Pour ce produit les résultats expérimentaux suivent assez bien les résultats déduits de la granulométrie, mais dans ce cas, comme pour d'autres produits non cités ici, cet accord provient probablement d'une compensation d'erreur, toutes leurs granulométries ayant été effectuées à l'Institut Pasteur, par coloration négative; l'erreur de grossissement du microscope compense alors partiellement, comme l'a déjà souligné, les erreurs dues au recouvrement des particules, et à la précision des mesures, il est dif-

ficile de trancher. La courbe (I) en trait plein, figure (IV.13), est déduite de la granulométrie.

De tous les produits étudiés, c'est finalement l'afcolac A.451.91.5(D) qui se relève le plus intéressant. Nous avons pu en effet effectuer sur ce produit des expériences parallèles complètes, en régime de diffusions multiples et au Diffusiomètre, les dimensions moyennes des particules donnant dans les deux cas de bonnes conditions expérimentales. D'autre part, comme on l'a vu dans la 3ème partie, les deux granulométries que nous avons pu obtenir de ce produit ont donné des résultats très nettement différents, de sorte que les expériences de diffusion vont permettre ici de trancher nettement.

II - Afcolac A.451.91.5(D)

Nous disposons, pour la fonction de phase de ce produit, de trois développements distincts, obtenus, d'une part à partir des mesures au Diffusiomètre, et d'autre part à partir des granulométries réalisées par les procédés d'ombrage et de coloration négative. Ces trois développements ont été reportés plus haut, sur la figure (III.31). On a calculé les caractéristiques v et $g(\mu)$ du régime asymptotique pour ces 3 séries de coefficients.

- Sur la figure (IV.14), on a tracé les 3 courbes théoriques $v=f(\omega_0)$ ainsi obtenues, et on a reporté les points expérimentaux. Les courbes (I) et (II) correspondent respectivement à la granulométrie du C.E.N., par coloration négative, et à celle de l'Institut Pasteur, par ombrage. La courbe (III), correspond au développement expérimental, déduit des mesures au Diffusiomètre; l'accord des points expérimentaux avec cette courbe est excellent.

- Les résultats sont tout aussi concluants pour le diagramme $g(\mu)$. Sur la figure (IV.15) on a tracé, pour les valeurs de ω_0 utilisées expérimentalement, les diagrammes théoriques calculés avec le développement obtenu au

diffusionmètre, et arbitrairement ramenés à la même valeur $g(\pi) = +1$. Les points expérimentaux correspondants sont portés sur la figure; ils suivent les diagrammes théoriques de façon satisfaisante, compte tenu de la précision médiocre sur $g(\mu)$ et de la forte sensibilité des diagrammes théoriques aux erreurs sur les β_1 . Les résultats prévus par les granulométries restent au contraire nettement différents, comme le montre la figure (IV.16), sur laquelle on a porté, pour $\omega_0 = 0,880$, les trois courbes théoriques et les points expérimentaux.

L'ensemble des figures (III.31) et (IV.14) à (IV.16) exprime clairement les conclusions de ce travail. Elles mettent en évidence les difficultés des études directes de granulométries, et d'autre part l'excellent accord entre les expériences en diffusion primaire et en diffusions multiples; ce qui justifie les deux méthodes expérimentales, et souligne l'intérêt des mesures optiques, dans ce domaine de dimensions.

III - Possibilité d'une méthode d'inversion. Cas du lait.

Un développement intéressant de ce genre de mesures est de partir des résultats expérimentaux pour remonter aux caractéristiques du milieu, comme on l'a fait dans la 3^{ème} partie, pour les mesures au diffusionmètre. La donnée de k' , b' et des β_1 permettant de déduire $g(\mu)$ et v , l'inverse devrait être possible, et la mesure des caractéristiques de la luminance diffuse devrait permettre de retrouver, dans une certaine mesure, celles du milieu.

On a abordé ce problème en essayant de généraliser à tous les coefficients du développement de $p(\theta)$, la méthode appliquée au coefficient β_0 . Le calcul de b' , par (IV.16), revient en effet à un calcul indirect de β_0 à partir de v et de $g(\mu)$, la connaissance à priori de ce coefficient, égal à 1, permettant de retrouver b' . Il semble donc que, de façon générale,

on puisse en principe déterminer β_1 à partir de la relation de récurrence

$$(IV.19) \quad v \left[(1+1) \varepsilon_{1+1} + 1 \varepsilon_{1,1} \right] = (21+1 - \omega_0 \beta_1) \varepsilon_1 ;$$

les ε_1 se calculant à partir du diagramme expérimental par

$$(IV.20) \quad \varepsilon_1 = \frac{1}{2} \int_{-1}^{+1} P_1(\mu) g(\mu) d\mu .$$

Cette façon de procéder présente à priori deux inconvénients qui limiteront ses possibilités.

La relation (IV.19) est approchée et la relation exacte (II.22) contient, sauf pour β_0 et β_1 , le terme complémentaire $h_1 \gamma_1$. Il faudrait donc en principe mesurer également le taux de polarisation pour pouvoir inverser rigoureusement les équations.

D'autre part, les ε_1 déterminés par (IV.20) étant peu précis, la forme de l'équation (IV.19) rend le procédé délicat. En effet, pour la même raison qui nous a permis, dans la 2^{ème} partie, de calculer v en faisant $\varepsilon_{2L} = 0$, on voit que les erreurs sur v et ε_1 entraîneront des erreurs importantes sur les β_1 , qui apparaissent dans (IV.19) comme des différences de grandeurs voisines.

Nous ne pouvons donc essayer ce procédé, avec une chance raisonnable de succès, que sur des particules assez grosses, la polarisation jouant alors un faible rôle, et les termes en $h_1 \gamma_1$ devenant certainement inférieurs aux erreurs de mesure; de plus, nous utiliserons des milieux aussi absorbants que possible, de façon à obtenir une décroissance rapide des ε_1 , puisque les erreurs sur β_1 seront d'autant plus fortes que les différents ε_1 seront plus voisins, dans (IV.19).

Nous avons donc essayé cette méthode pour le lait, ce milieu stable ayant permis de bonnes mesures et apparaissant, d'après la forme de la courbe expérimentale $v(\omega_0)$, comme constitué de grosses particules. Les points expérimentaux sont reportés sur la figure (IV.17). Plutôt que de calculer les ε_1 à partir de (IV.20), par une méthode graphique ou par

quadrature, nous avons simplement repris le procédé d'équations linéaires et la matrice $[A_{11}^{-1}]$ précédente. L'équation (II.16) donne, pour les différents angles θ_i

$$(IV.21) \quad (1 + \mu_i \nu) g(\mu_i) = \omega_0 \sum_{l=0}^{18} \beta_l g_l P_l(\mu_i)$$

et on a par hypothèse

$$(IV.22) \quad g(\mu_i) = \sum_{l=0}^{18} (2l+1) g_l P_l(\mu_i)$$

Compte tenu de l'expression (III.63) de la matrice $[A_{11}^{-1}]$, on aura

$$(IV.23) \quad \sum_{i=0}^{18} (A^{-1})_{11}^i g(\mu_i) = (21+1) g_1$$

et

$$(IV.24) \quad \sum_{i=0}^{18} (A^{-1})_{11}^i [g(\mu_i) + \nu \mu_i g(\mu_i)] = \omega_0 \beta_1 \sum_{i=0}^{18} (A^{-1})_{11}^i g(\mu_i)$$

Avec l'expression (IV.23) de g_1 , et en posant

$$(IV.25) \quad (21+1) g_1' = \sum_{i=0}^{18} (A^{-1})_{11}^i \mu_i g(\mu_i)$$

on aura finalement

$$(IV.26) \quad \beta_1 = \frac{21+1}{\omega_0} \frac{g_1 + \nu g_1'}{g_1}$$

Nous avons appliqué l'expression (IV.26) aux résultats obtenus, sur le lait, pour les 5 milieux les plus absorbants qu'on ait pu réaliser. On a obtenu ainsi

$$(IV.27) \quad \begin{aligned} \beta_1 &= 2,717 \pm 0,020 \\ \beta_2 &= 3,730 \pm 0,100 \\ \beta_3 &= 4,600 \pm 0,400 \end{aligned}$$

Au delà, les coefficients β_1 deviennent trop dispersés et aberrants. Cette limitation est peut-être due en partie au fait qu'un développement à 19 termes soit un peu court, pour un milieu à grosses particules : mais ce sont surtout les erreurs expérimentales qui provoquent cette imprécision. Quoiqu'il en soit, on a essayé de compléter les coefficients (IV.27) pour bâtir sur eux deux indicatrices arbitraires correspondant à des rapports diffusion avant diffusion arrière respectivement de 30 et 150. Les courbes théoriques $v(\omega_0)$ calculées à partir de ces deux développements se recouvrent au 1/1000^{ème} près. On retrouve donc, pour le régime asymptotique, la nette prépondérance des premiers coefficients β_1 . D'autre part, on a tracé sur la figure (IV.17) la courbe théorique $v(\omega_0)$ quasi commune aux deux développements. Elle est en excellent accord avec tous les points expérimentaux, qu'ils aient servi ou non au calcul des β_1 (IV.27); ce qui montre la bonne cohérence des mesures pour ce milieu dont les β_1 théoriques ne sont pas connus.

Cette méthode d'inversion peut donc apporter certains renseignements sur le milieu. Mais dans le cas du régime asymptotique, il semble que ces renseignements soient limités, par le fait même que seuls les premiers coefficients déterminent ce régime; et il est probable que dans ce cas de transfert, la méthode d'inversion, même améliorée, ne permettrait de remonter à la fonction de phase complète du milieu que pour des particules diffusantes petites.

CONCLUSION

Le travail qui nous était proposé a donc, dans une certaine mesure, été mené à bien. Ce sont les développements établis dans la première partie qui sont la base de ce travail. Ces calculs ne représentent évidemment aucun apport théorique de fond aux problèmes considérés, mais constituaient simplement un travail pénible qu'il était nécessaire d'achever, ces intermédiaires mathématiques représentant un outil intéressant. A partir de là, on peut distinguer deux directions principales dans notre rapport.

Sous l'aspect du transfert radiatif, nous avons pu réaliser un modèle réduit satisfaisant de milieu diffusant, et les principales difficultés expérimentales semblent résolues. Plus particulièrement, dans le cas du régime de grande profondeur, on a vérifié rigoureusement la validité de la simplification consistant à négliger la polarisation pour calculer la luminance diffuse: mais on a également pu évaluer les renseignements donnés par l'étude de la polarisation. On a mis expérimentalement en évidence ce régime asymptotique, sur lequel on a vérifié les équations théoriques avec une bonne précision. Enfin, ces mesures semblent susceptibles de donner des indications assez précises sur la constitution du milieu diffusant.

D'autre part, en diffusion primaire, la méthode expérimentale exposée n'a encore que des possibilités limitées. Mais cette étude montre l'intérêt qu'il y a à conjuguer les deux types d'expériences, en diffusion primaire et en diffusions multiples. De plus nous avons pu mettre en évidence certaines insuffisances de la théorie de Mie appliquée à des particules de latex ou d'afcolac dont les dimensions sont déterminées par microscopie électronique, et localiser assez précisément le problème. Cette méthode de mesure se révèle donc finalement précise et fructueuse et, sous réserve d'améliorations, susceptible d'orienter de façon très utile l'étude

théorique sur la constitution exacte des particules diffusantes.

Le problème principal, dans un développement ultérieur de ce travail, serait une étude plus complète de la matrice de phase $P_{\lambda}(\theta)$ du milieu. Cette donnée est en effet essentielle, dans toute étude de transfert, et il semble bien que ce soit dans sa détermination exacte que l'on rencontre le plus de difficultés. Cette étude nécessiterait, du point de vue expérimental, la mise au point d'un dispositif plus performant et plus précis que le Diffusiomètre utilisé, permettant à la fois des mesures dans les directions avant, où sont contenues toutes les informations sur les particules si celles-ci deviennent grosses, et aussi des mesures en polarisation, qui donneraient des renseignements complémentaires souhaitables. Parallèlement, du point de vue théorique, il faudrait améliorer la méthode d'inversion, trop embryonnaire, et reprendre la théorie de Mie, en envisageant les influences sur $P_{\lambda}(\theta)$ de conditions de surface différentes, puisqu'il semble bien que le problème soit posé à ce niveau. Un certain nombre d'études théoriques ont d'ailleurs déjà été entreprises dans ce sens [45], et constitueraient un sérieux point de départ.

Quant aux études en diffusions multiples, dans la mesure où la matrice de phase est connue, le problème est déjà bien avancé. Si l'on néglige la polarisation, les calculs théoriques semblent maintenant réalisables, dans un cas de transfert général [13], et notre dispositif expérimental est valable, non seulement, comme on vient de le voir, pour l'étude du régime asymptotique, mais également pour des études en couches minces [46], [47]. L'étape suivante serait donc de passer au problème plus complet tenant compte de la polarisation, en mettant au point un dispositif de mesure et des méthodes de calcul numérique générales. On pourrait alors aborder, avec tous les outils indispensables, l'étude de l'inversion, la vérification des équations théoriques ne représentant qu'une étape, et l'intérêt principal de ces travaux étant de pouvoir déduire des mesures le maximum de renseignements sur le milieu étudié.

Appendice

Les tables numériques publiées sur les séries de Mie expriment généralement les quantités complexes $S_1(\theta)$ et $S_2(\theta)$ en fonction de l'angle supplémentaire de l'angle de diffusion. Ces fonctions sont alors données sous la forme

$$(A.1) \quad S_1(\theta) = +i \sum_{n=1}^{\infty} \{A_n \Pi_n(\theta) + B_n T_n(\theta)\}$$

$$(A.2) \quad S_2(\theta) = -i \sum_{n=1}^{\infty} \{A_n T_n(\theta) + B_n \Pi_n(\theta)\}$$

où

$$(A.3) \quad \Pi_n(\theta) = \frac{dP_n(\cos\theta)}{d(\cos\theta)}$$

$$(A.4) \quad T_n(\theta) = \cos\theta \frac{dP_n(\cos\theta)}{d(\cos\theta)} - \sin^2\theta \frac{d^2P_n(\cos\theta)}{d(\cos\theta)^2}$$

et

$$(A.5) \quad A_n = \frac{(-1)^{n+1/2}(2n+1)}{n(n+1)} \left\{ \frac{S'_n(\beta) S_n(\alpha) - m S_n(\beta) S'_n(\alpha)}{S'_n(\beta) \Phi_n(\alpha) - m \Phi'_n(\alpha) S_n(\beta)} \right\}$$

$$(A.6) \quad B_n = \frac{(-1)^{n+3/2}(2n+1)}{n(n+1)} \left\{ \frac{m S_n(\alpha) S'_n(\beta) - S_n(\beta) S'_n(\alpha)}{m S'_n(\beta) \Phi_n(\alpha) - \Phi'_n(\alpha) S_n(\beta)} \right\}$$

Enfin, on a $\alpha = \frac{2\pi R}{\lambda}$ et $\beta = m\alpha$

$$S_n(\alpha) = \sqrt{\frac{\pi\alpha}{2}} J_{n+1/2}(\alpha) \quad \text{à partir des fonctions de Bessel.}$$

$$C_n(\alpha) = \sqrt{\frac{\pi\alpha}{2}} (-1)^n J_{-n-1/2}(\alpha)$$

$$\Phi(\alpha) = S_n(\alpha) + iC_n(\alpha)$$

Toutes ces définitions restent valables si les variables sont complexes. Nous considérons le cas général d'un indice complexe $m + iy$. Les calculs se feront par récurrence, en partant de

$$(A.7) \quad S_0(z) = \sin z \quad \text{et} \quad C_0(z) = \cos z ,$$

par définition des fonctions de Bessel; et des relations

$$(A.8) \quad J_{p+1}(z) + J_{p-1}(z) = \frac{2p}{z} J_p(z)$$

$$(A.9) \quad \frac{dJ_p(z)}{dz} = \frac{1}{2} J_{p-1}(z) - \frac{1}{2} J_{p+1}(z) .$$

1) Calcul des quantités $S_n(\alpha)$, $C_n(\alpha)$ et de leurs dérivées.

Ces quantités sont réelles. Il n'y a pas de difficulté. On aura, à partir de (A.8) et de la définition de $S_n(\alpha)$

$$(A.10) \quad S_{n+1}(\alpha) = \frac{2n+1}{\alpha} S_n(\alpha) - S_{n-1}(\alpha)$$

avec

$$(A.11) \quad S_0(\alpha) = \sin \alpha \quad \text{et} \quad S_{-1}(\alpha) = \cos \alpha$$

En dérivant (A.10) et en comparant à (A.9), on aura enfin

$$(A.12) \quad S'_n(\alpha) = -\frac{n}{\alpha} S_n(\alpha) + S_{n-1}(\alpha)$$

De façon analogue, on aura pour $C_n(\alpha)$ et $C'_n(\alpha)$

$$(A.13) \quad C_{n+1}(\alpha) = \frac{2n+1}{\alpha} C_n(\alpha) \cdot C_{n-1}(\alpha), \text{ avec}$$

$$(A.14) \quad C_0(\alpha) = \cos \alpha \quad \text{et} \quad C_{-1}(\alpha) = \sin \alpha$$

et

$$(A.15) \quad C'_n(\alpha) = -\frac{n}{\alpha} C_n(\alpha) + C_{n-1}(\alpha)$$

2) Calcul des quantités $S_n(\beta)$, $C_n(\beta)$ et de leurs dérivées.

Ce sont des quantités complexes. Les relations de récurrence restent valables, mais nous séparerons parties réelles et parties imaginaires pour ces grandeurs. On a, avec $\beta = m\alpha + i y\alpha$,

$$\sin \beta = -C_{-1}(\beta) = S_0(\beta) = \sin m\alpha \cdot \operatorname{ch} y\alpha + i \operatorname{sh} y\alpha \cdot \cos m\alpha$$

$$\cos \beta = C_0(\beta) = S_{-1}(\beta) = \cos m\alpha \cdot \operatorname{ch} y\alpha - i \operatorname{sh} y\alpha \cdot \sin m\alpha$$

La quantité $C_n(\beta)$ et sa dérivée n'apparaissent d'ailleurs pas dans les formules de A_n et B_n . En explicitant les parties réelle et imaginaire $\operatorname{Re}\{S_n(\beta)\}$, $\operatorname{Im}\{S_n(\beta)\}$, $\operatorname{Re}\{S'_n(\beta)\}$ et $\operatorname{Im}\{S'_n(\beta)\}$, et en substituant dans les relations (A.8) et (A.9), on aura

$$(A.16) \quad \operatorname{Re}\{S_{n+1}(\beta)\} = \frac{2n+1}{(m^2+y^2)\alpha} m \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\} + y \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\} \cdot \operatorname{Re}\{S_{n-1}(\beta)\}$$

$$(A.17) \quad \operatorname{Im}\{S_{n+1}(\beta)\} = \frac{2n+1}{(m^2+y^2)\alpha} m \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\} - y \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\} \cdot \operatorname{Im}\{S_{n-1}(\beta)\}$$

Où, avec les expressions précédentes de $\sin \beta$ et $\cos \beta$, on a

$$(A.18) \quad \begin{aligned} \operatorname{Re}\{S_0(\beta)\} &= \sin m\alpha \cdot \operatorname{ch} y\alpha & \operatorname{Im}\{S_0(\beta)\} &= \cos m\alpha \cdot \operatorname{sh} y\alpha \\ \operatorname{Re}\{S_{-1}(\beta)\} &= \cos m\alpha \cdot \operatorname{ch} y\alpha & \operatorname{Im}\{S_{-1}(\beta)\} &= -\sin m\alpha \cdot \operatorname{sh} y\alpha \end{aligned}$$

Pour la dérivée $S'_n(\beta)$, on aura enfin

$$(A.19) \operatorname{Re}\{S'_n(\beta)\} = \frac{1}{2n+1} \{ (n+1) \operatorname{Re}\{S_{n-1}(\beta)\} - n \operatorname{Re}\{S_{n+1}(\beta)\} \}$$

$$(A.20) \operatorname{Im}\{S'_n(\beta)\} = \frac{1}{2n+1} \{ (n+1) \operatorname{Im}\{S_{n-1}(\beta)\} - n \operatorname{Im}\{S_{n+1}(\beta)\} \}$$

Si nous exprimons, dans (A.5) et (A.6), $A_n(\alpha)$ et $B_n(\alpha)$, et qu'on développe ces expressions de A_n et B_n en séparant parties réelles et parties imaginaires, on a

$$(A.21) \operatorname{Re} A_n = (-1)^n \frac{n \cdot 2n+1}{n(n+1)} \left[\frac{\operatorname{Re}\{\sigma'_n\} \operatorname{Re}\{\sigma''_n\} + \operatorname{Im}\{\sigma'_n\} \operatorname{Im}\{\sigma''_n\}}{\operatorname{Re}\{\sigma''_n\} + \operatorname{Im}\{\sigma'_n\}^2 + \operatorname{Im}\{\sigma''_n\} - \operatorname{Re}\{\sigma'_n\}^2} \right]$$

$$\operatorname{Im} A_n = (-1)^n \frac{n \cdot 2n+1}{n(n+1)} \left[\frac{\operatorname{Im}\{\sigma'_n\}^2 + \operatorname{Re}\{\sigma'_n\}^2 + \operatorname{Im}\{\sigma'_n\} \operatorname{Re}\{\sigma''_n\} - \operatorname{Re}\{\sigma'_n\} \operatorname{Im}\{\sigma''_n\}}{\operatorname{Re}\{\sigma''_n\} + \operatorname{Im}\{\sigma'_n\}^2 + \operatorname{Im}\{\sigma''_n\} - \operatorname{Re}\{\sigma'_n\}^2} \right]$$

$$\operatorname{Re} B_n = (-1)^n \frac{n \cdot 2n+1}{n(n+1)} \left[\frac{\operatorname{Re}\{\pi'_n\} \operatorname{Re}\{\pi''_n\} + \operatorname{Im}\{\pi'_n\} \operatorname{Im}\{\pi''_n\}}{\operatorname{Re}\{\pi''_n\} + \operatorname{Im}\{\pi'_n\}^2 + \operatorname{Im}\{\pi''_n\} - \operatorname{Re}\{\pi'_n\}^2} \right]$$

$$\operatorname{Im} B_n = (-1)^n \frac{n \cdot 2n+1}{n(n+1)} \left[\frac{\operatorname{Im}\{\pi'_n\}^2 + \operatorname{Re}\{\pi'_n\}^2 + \operatorname{Im}\{\pi'_n\} \operatorname{Re}\{\pi''_n\} - \operatorname{Re}\{\pi'_n\} \operatorname{Im}\{\pi''_n\}}{\operatorname{Re}\{\pi''_n\} + \operatorname{Im}\{\pi'_n\}^2 + \operatorname{Im}\{\pi''_n\} - \operatorname{Re}\{\pi'_n\}^2} \right]$$

Ces relations permettront donc de calculer A_n et B_n , à partir des relations (A.10) à (A.18), par l'intermédiaire des quantités complexes $\sigma'_n, \sigma''_n, \pi'_n$ et π''_n qu'on a prises, par commodité de notation, égales à

$$\operatorname{Re}\{\sigma'_n\} = S_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S'_n(\beta)\} - m S'_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\} + y S'_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\}$$

$$\operatorname{Im}\{\sigma'_n\} = S_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S'_n(\beta)\} - m S'_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\} - y S'_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\}$$

$$\operatorname{Re}\{\sigma_n''\} = C_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n'(\beta)\} - m C_n'(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\} + y C_n'(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\}$$

$$\operatorname{Im}\{\sigma_n''\} = C_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n'(\beta)\} - m C_n'(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\} - y C_n'(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\}$$

$$\operatorname{Re}\{\pi_n'\} = -S_n'(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\} + m S_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n'(\beta)\} - y S_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n'(\beta)\}$$

$$\operatorname{Im}\{\pi_n'\} = -S_n'(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\} + m S_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n'(\beta)\} + y S_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n'(\beta)\}$$

$$\operatorname{Re}\{\pi_n''\} = -C_n'(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n(\beta)\} + m C_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n'(\beta)\} - y C_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n'(\beta)\}$$

$$\operatorname{Im}\{\pi_n''\} = -C_n'(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n(\beta)\} + m C_n(\alpha) \operatorname{Im}\{S_n'(\beta)\} + y C_n(\alpha) \operatorname{Re}\{S_n'(\beta)\}$$

Enfin, à partir des valeurs (A.21) des coefficients A_n et B_n , on pourra calculer les sections efficaces de diffusion pure, k , et d'extinction totale, K , par

$$(A.22) \quad K = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n n(n+1) \{ \operatorname{Im}(A_n) - \operatorname{Im}(B_n) \}$$

$$(A.23) \quad k = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n^2(n+1)^2}{2n+1} \{ \operatorname{Re}(A_n)^2 + \operatorname{Im}(A_n)^2 + \operatorname{Re}(B_n)^2 + \operatorname{Im}(B_n)^2 \}$$

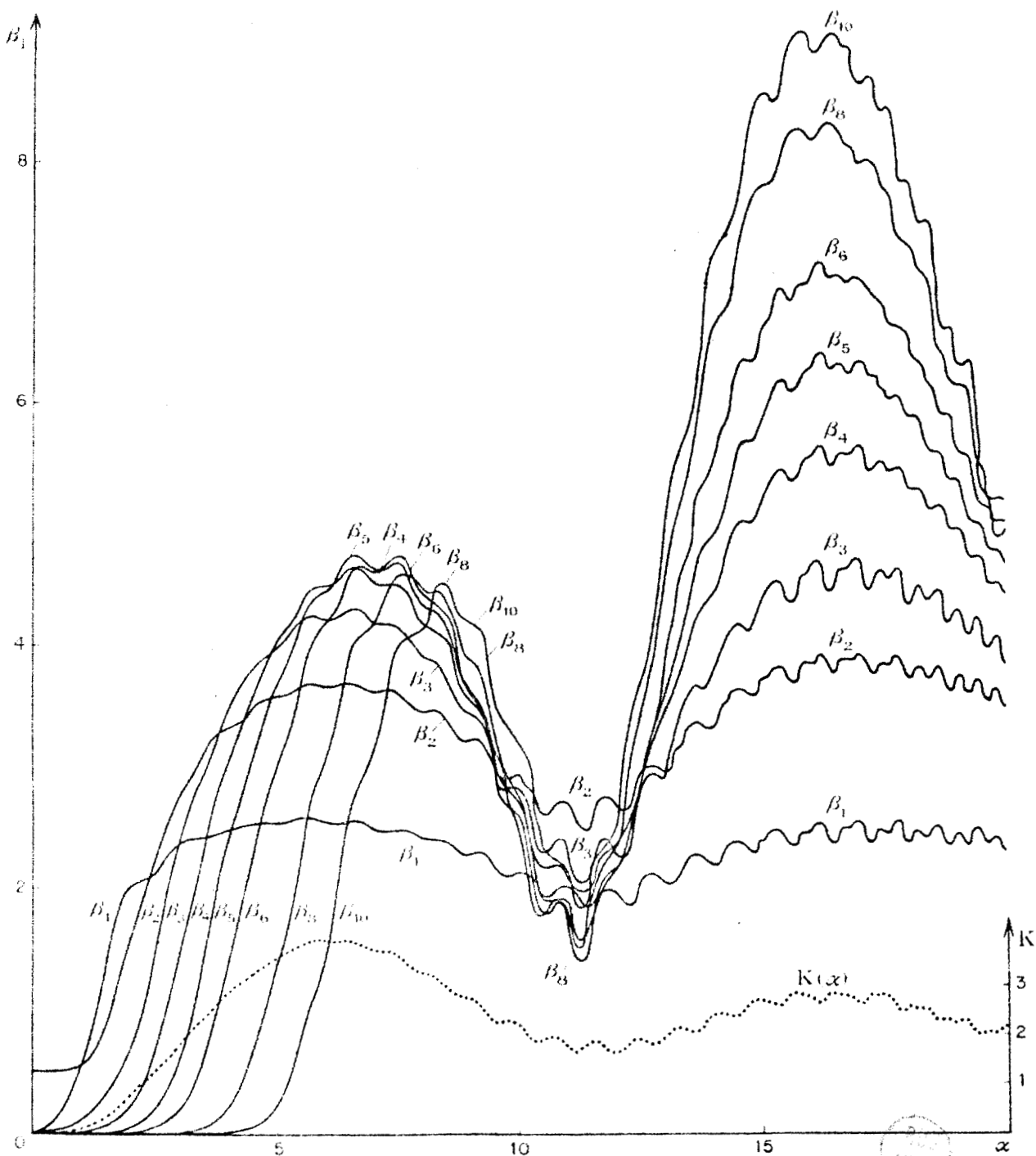


Figure (I.2): Coefficients β_1 en fonction de α . $m = 1,33$
 $y = 0$

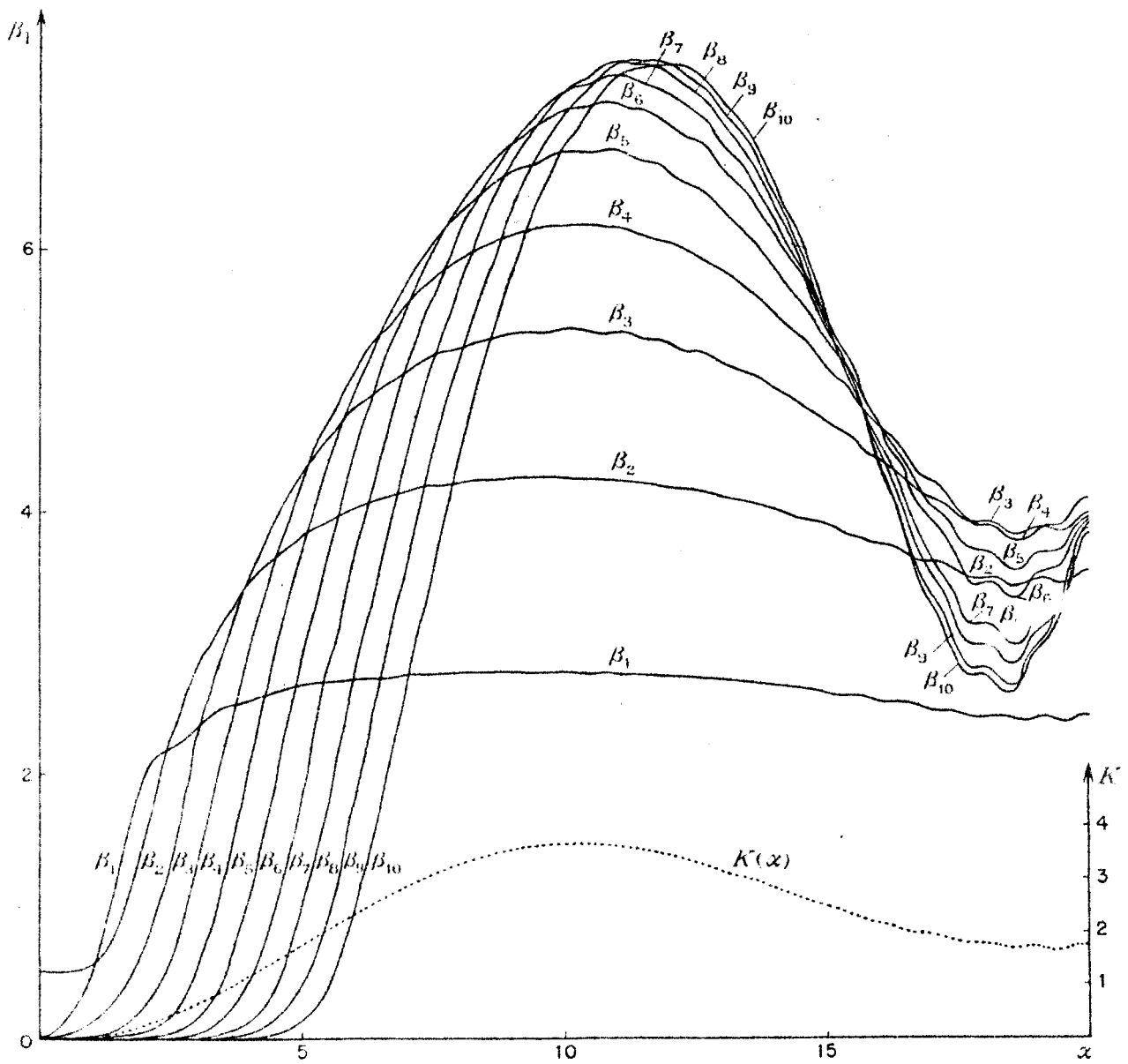


Figure (I.3): Coefficients β_1 en fonction de α .
 $m = 1,20 - y \equiv 0$



Figure (I.4): Coefficients β_1 en fonction de α .

$m = 1,33$, $y = 0$

l'ordre 1 est porté sur les courbes

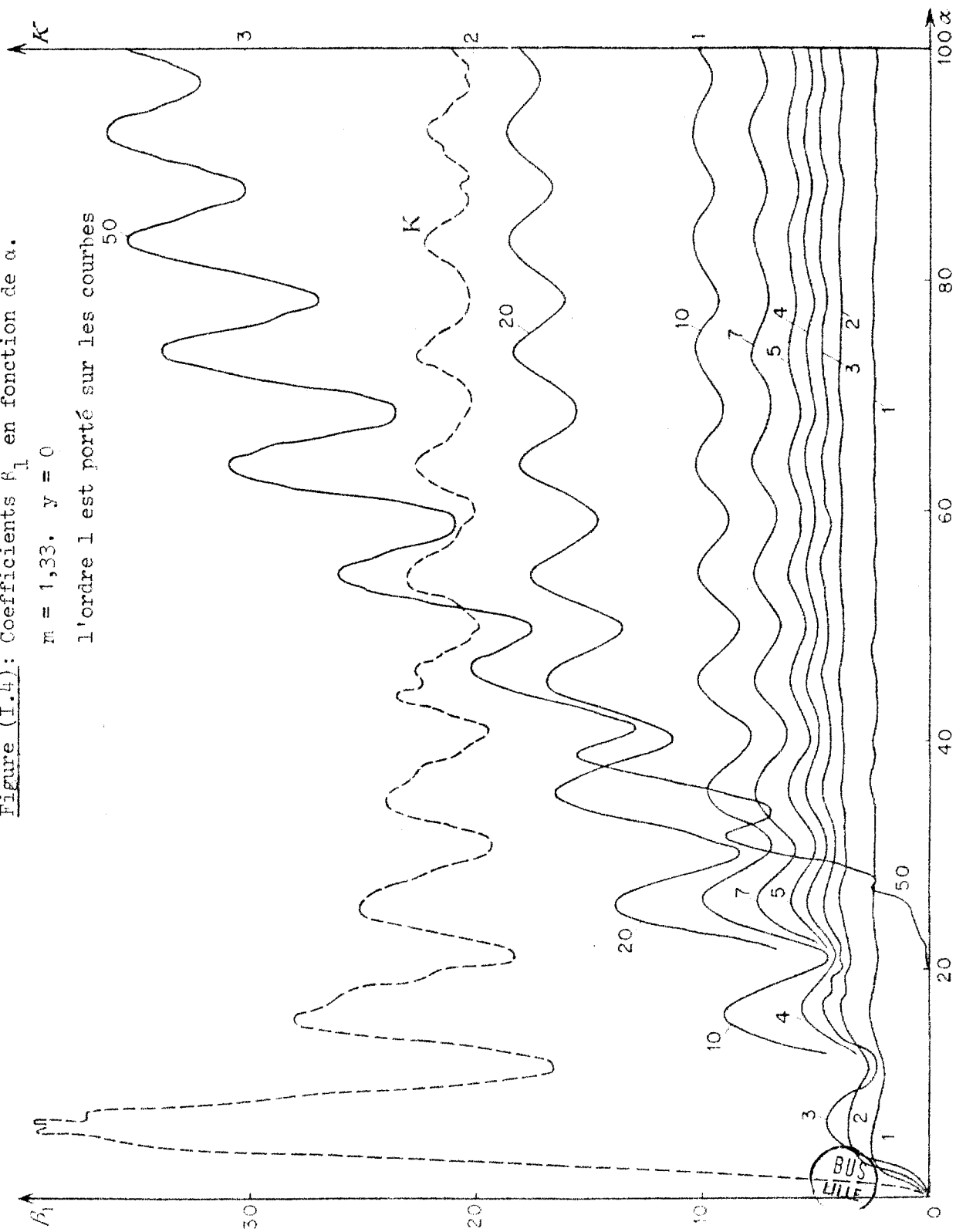


Figure (I.5): $m = 1,33$ $y = 0$.

courbe (a): $\beta_1 = (2l+1)(\beta_1/3)^{1/3}$

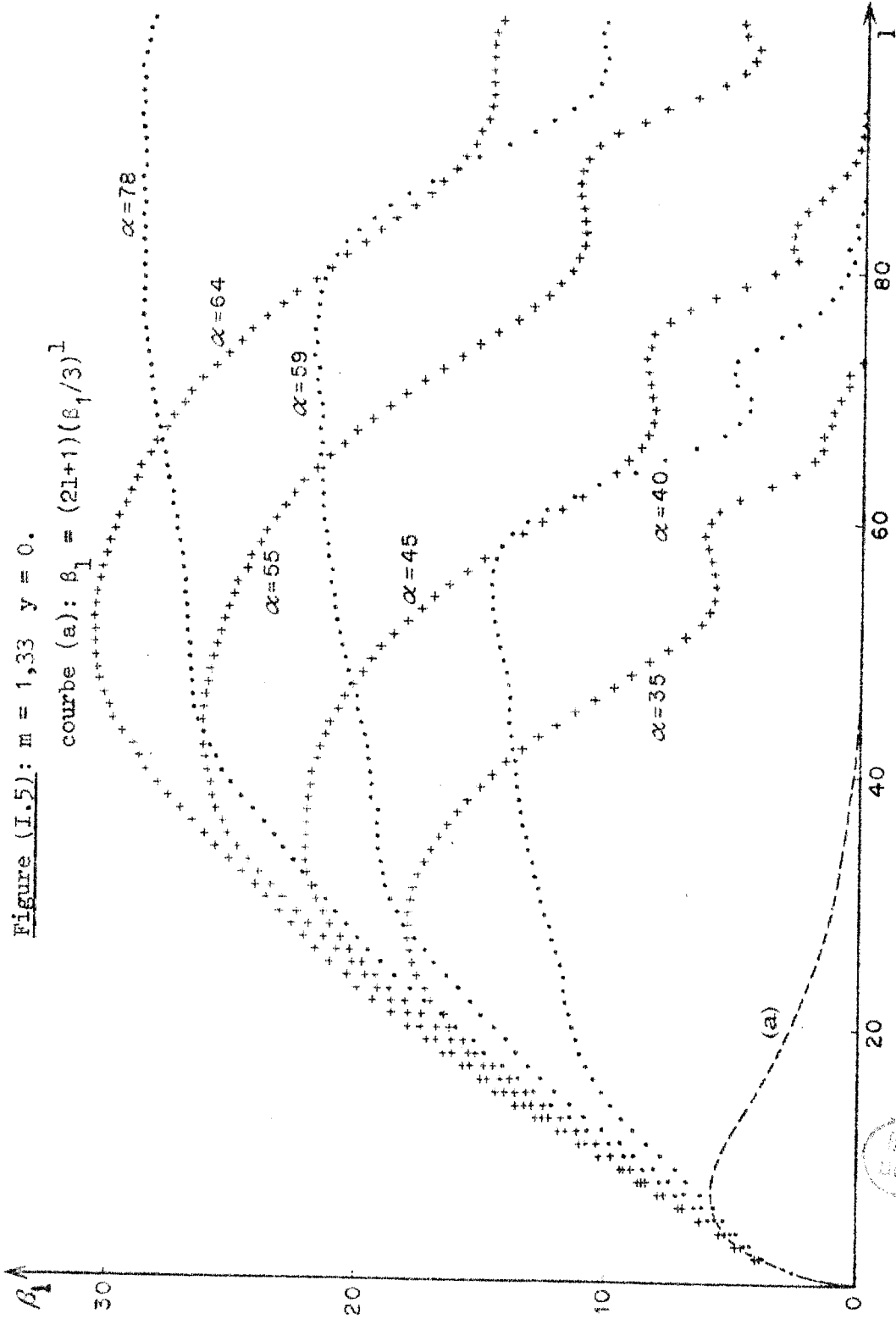
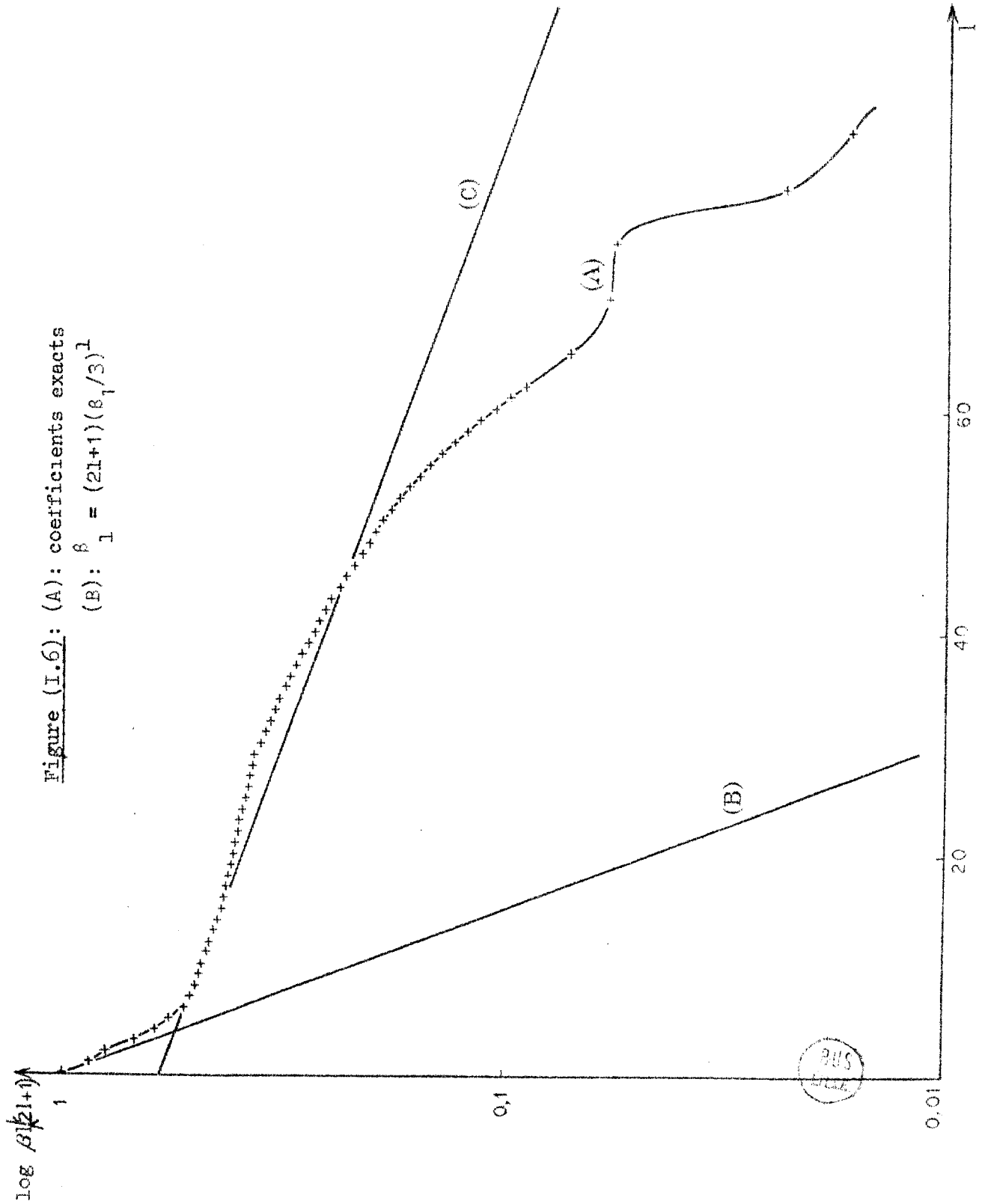


Figure (I.6): (A): coefficients exacts

$$(B): \beta_1 = (2l+1)(\epsilon_1/3)^l$$



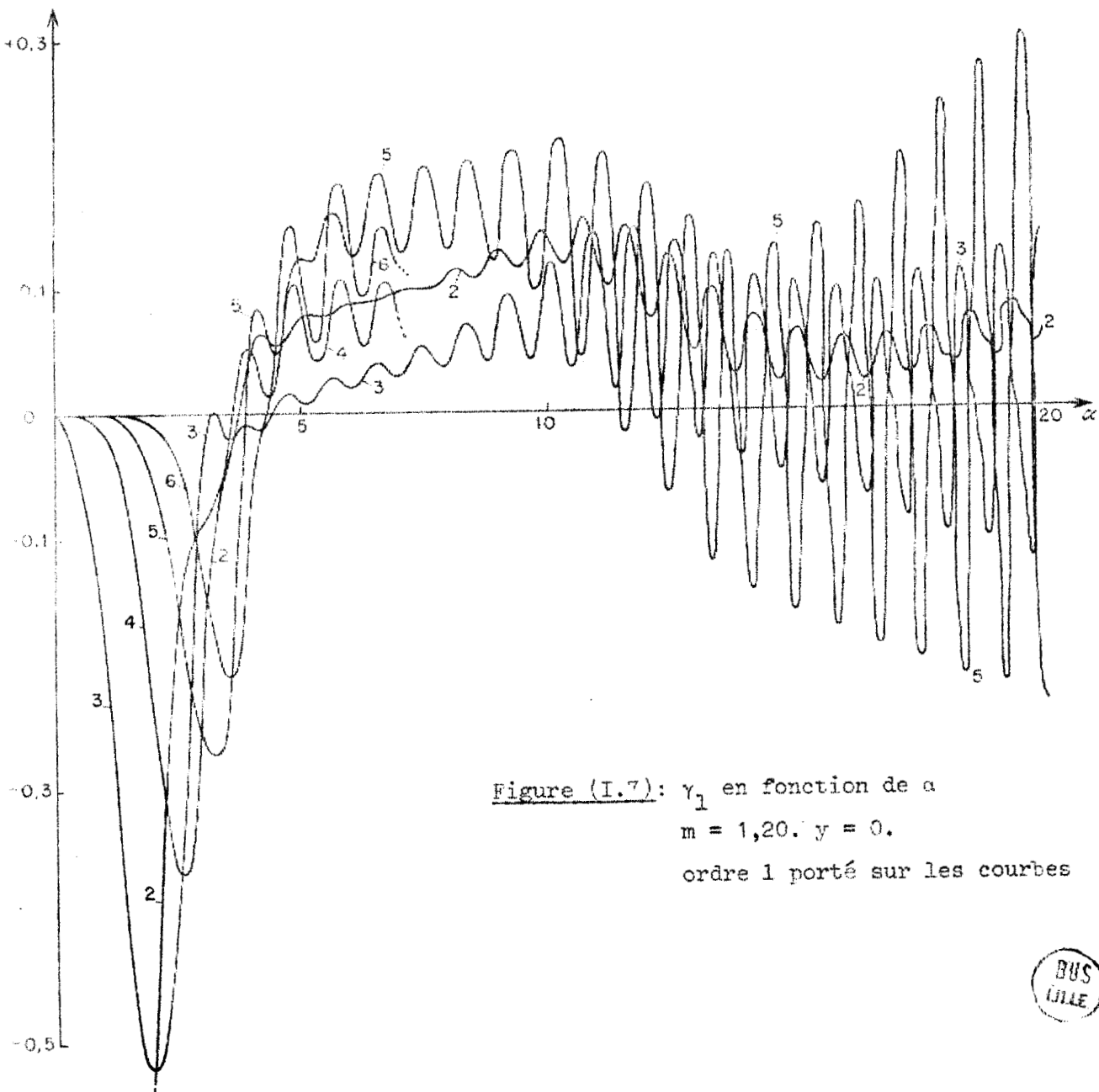


Figure (I.7): γ_1 en fonction de x
 $m = 1, 20, \dots, y = 0.$
 ordre 1 porté sur les courbes



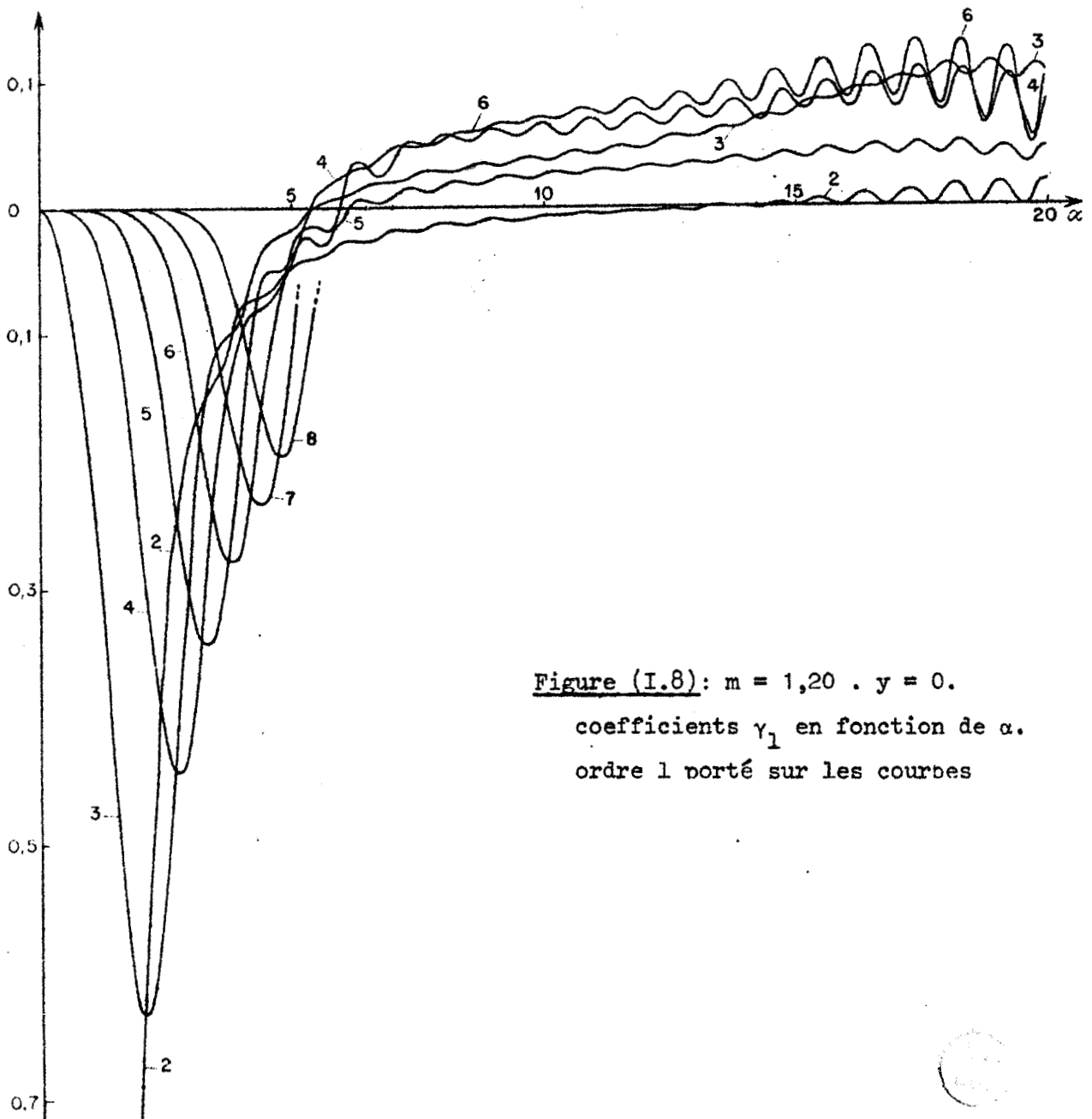


Figure (I.8): $m = 1,20$. $y = 0$.
 coefficients γ_1 en fonction de α .
 ordre 1 porté sur les courbes

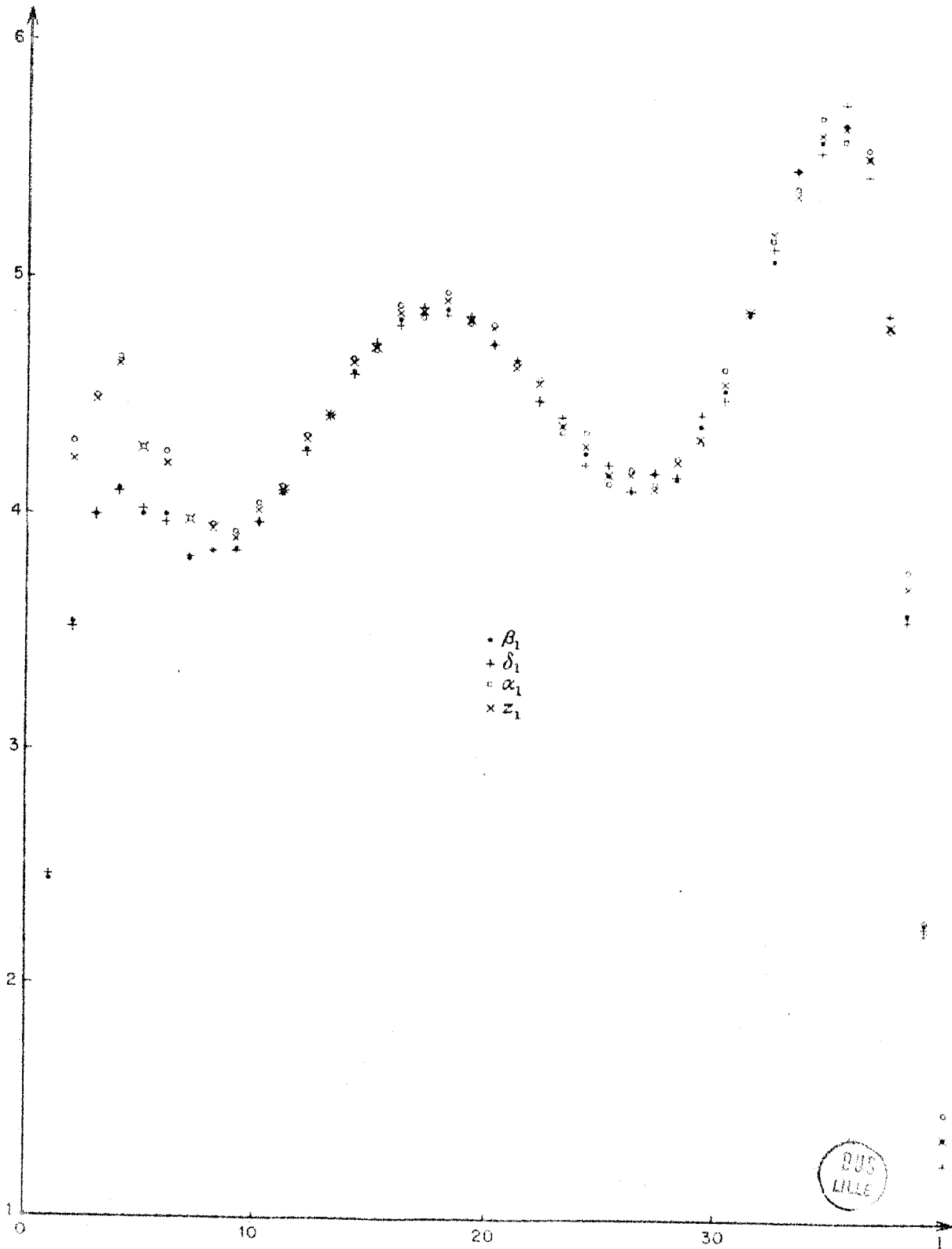


Figure (I.9): $\alpha = 20$. $\pi = 1, 20$

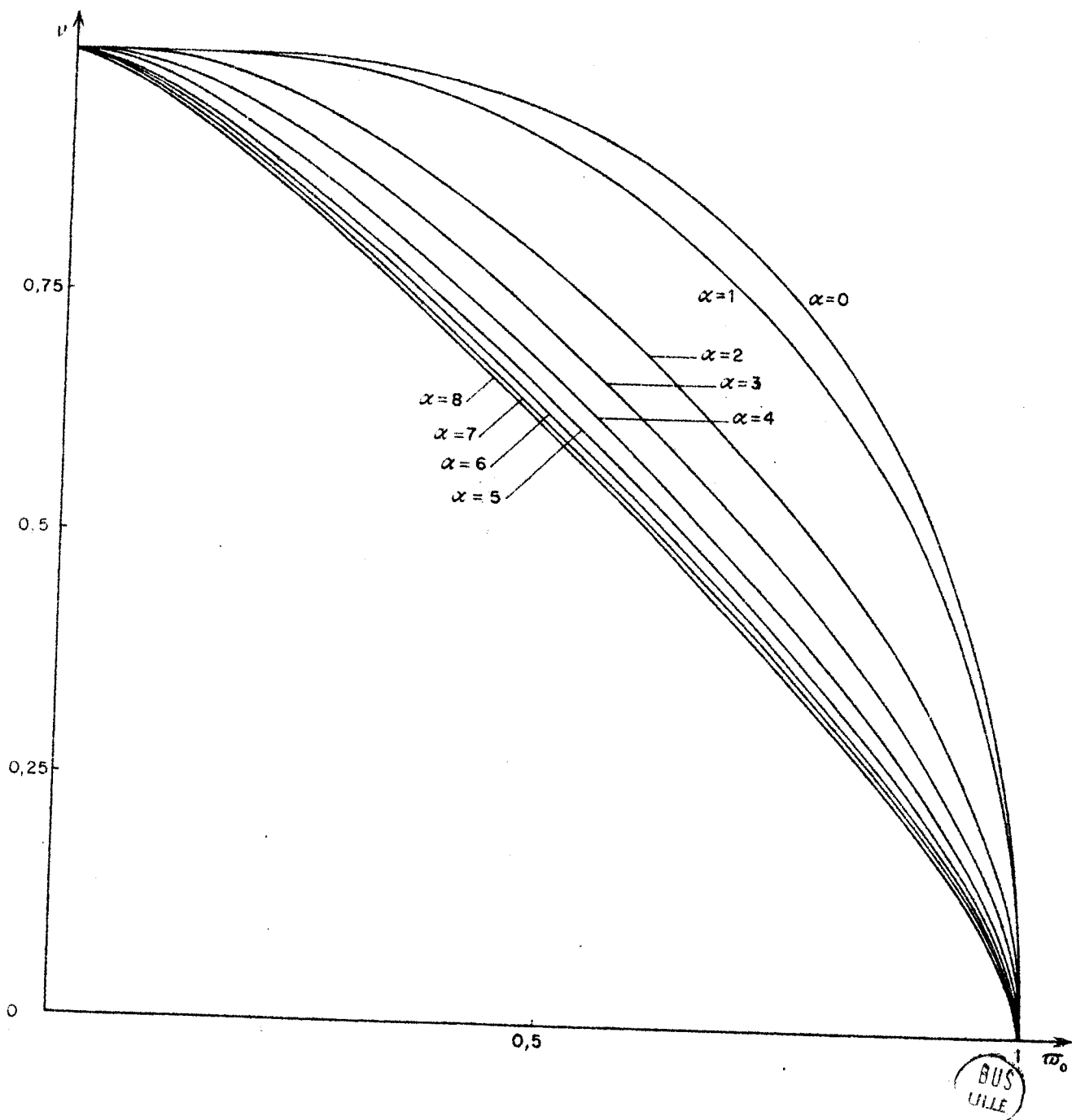


Figure (II.3)

$m = 1,20$. $y = 0$; α entier

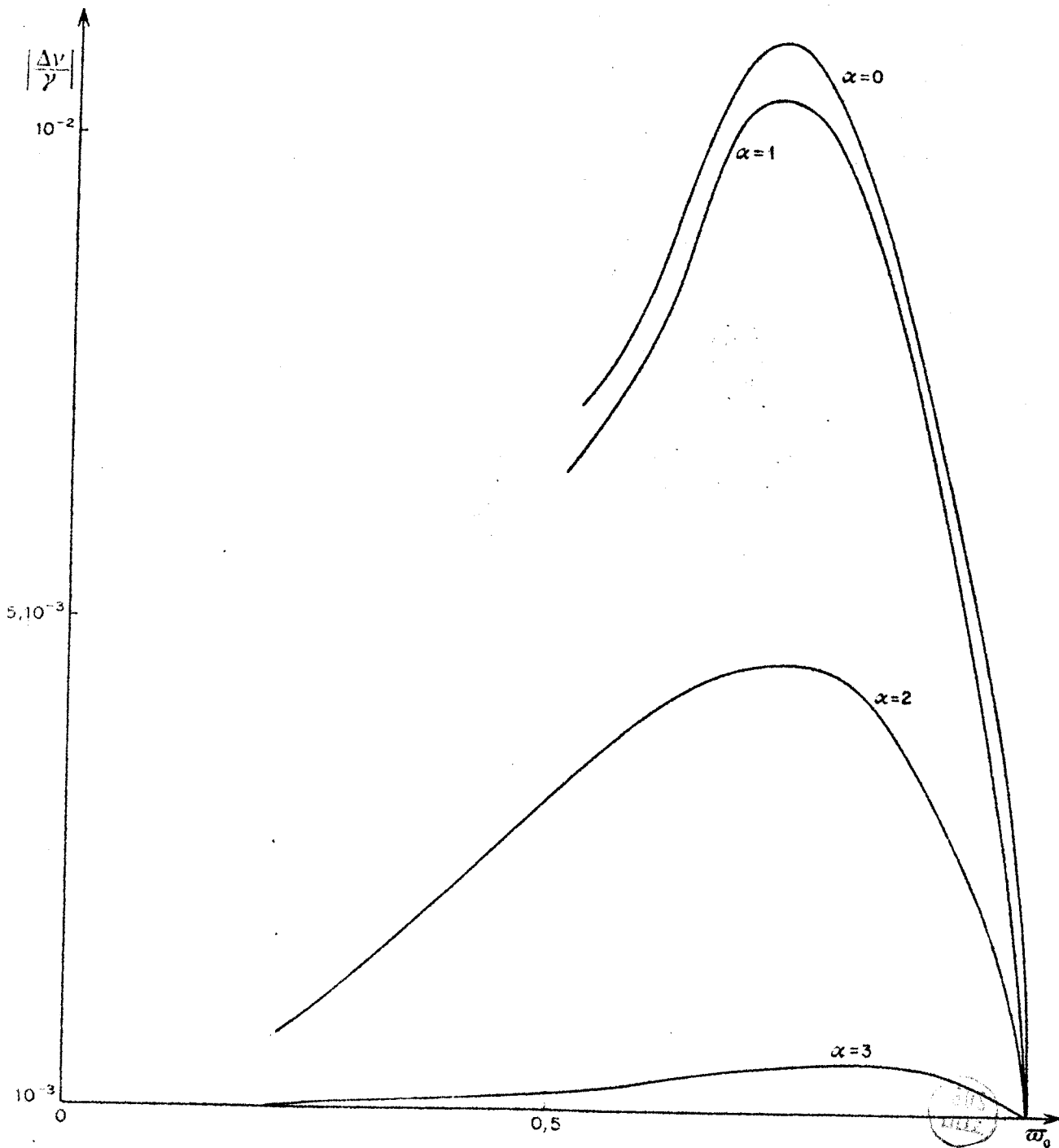


Figure (II.4)

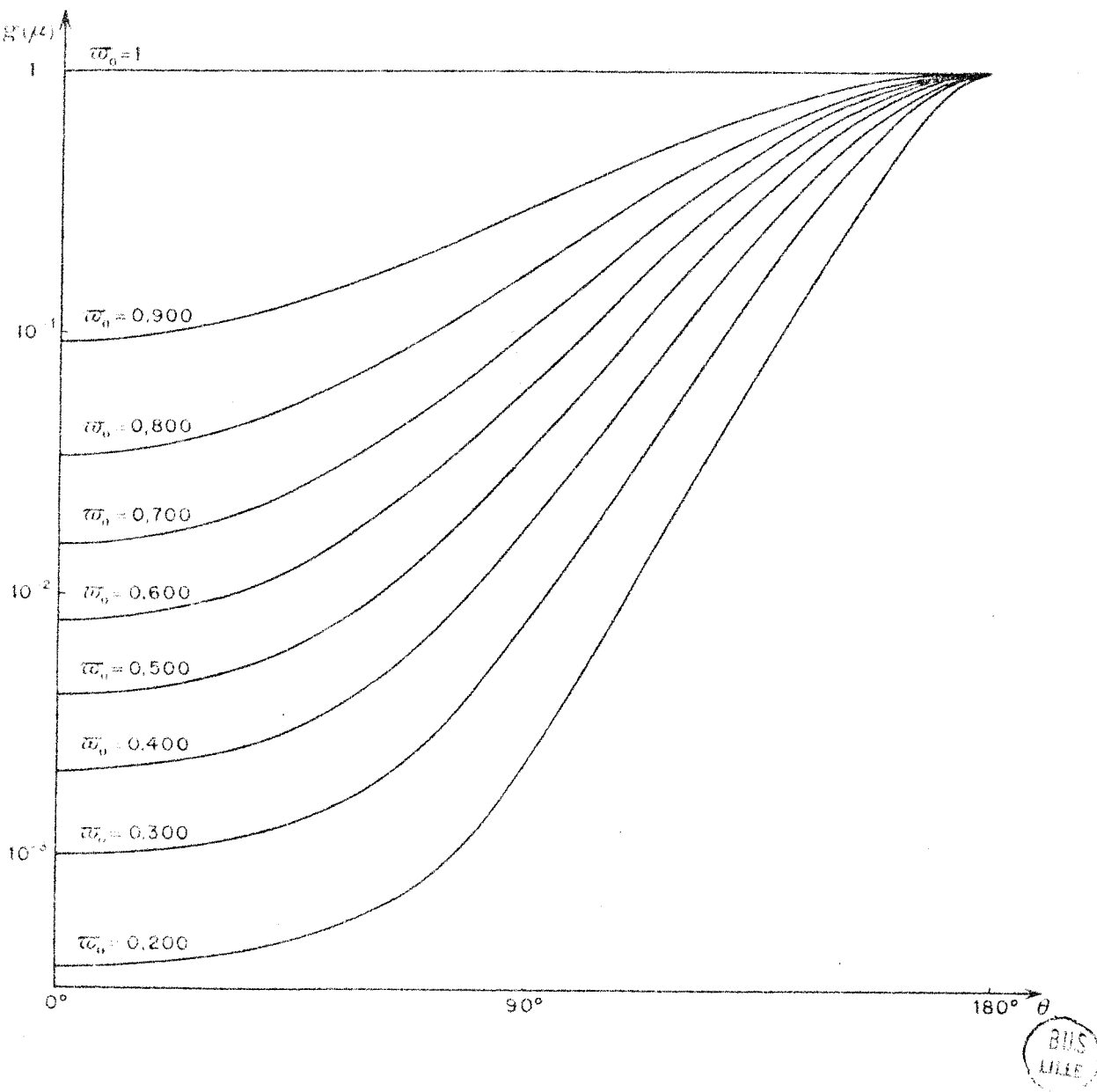


Figure (II.5): $m = 1,20. y = 0;$

$$\alpha = 3$$

Figure (II.6): $\omega_0 = 0,750$

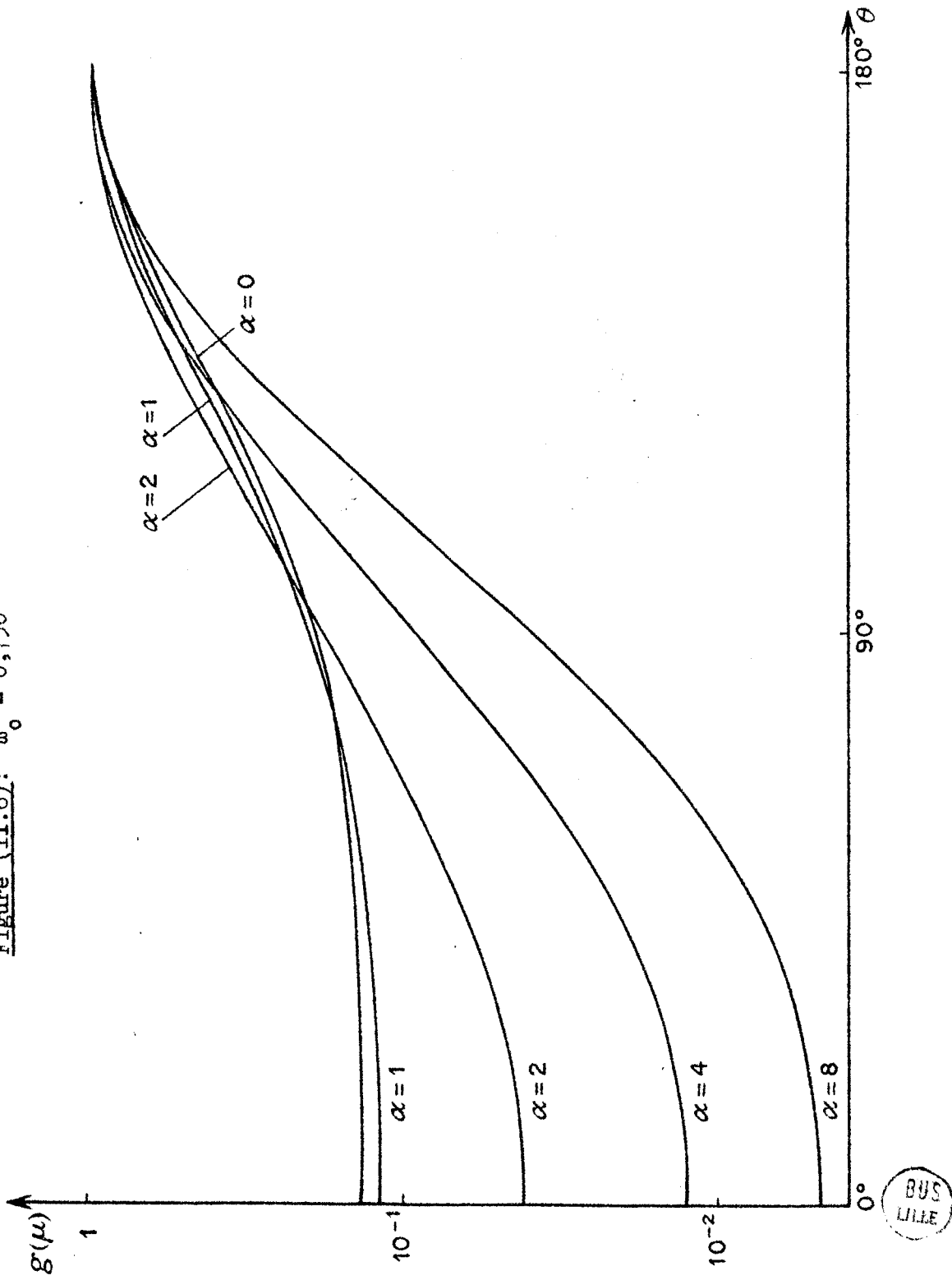
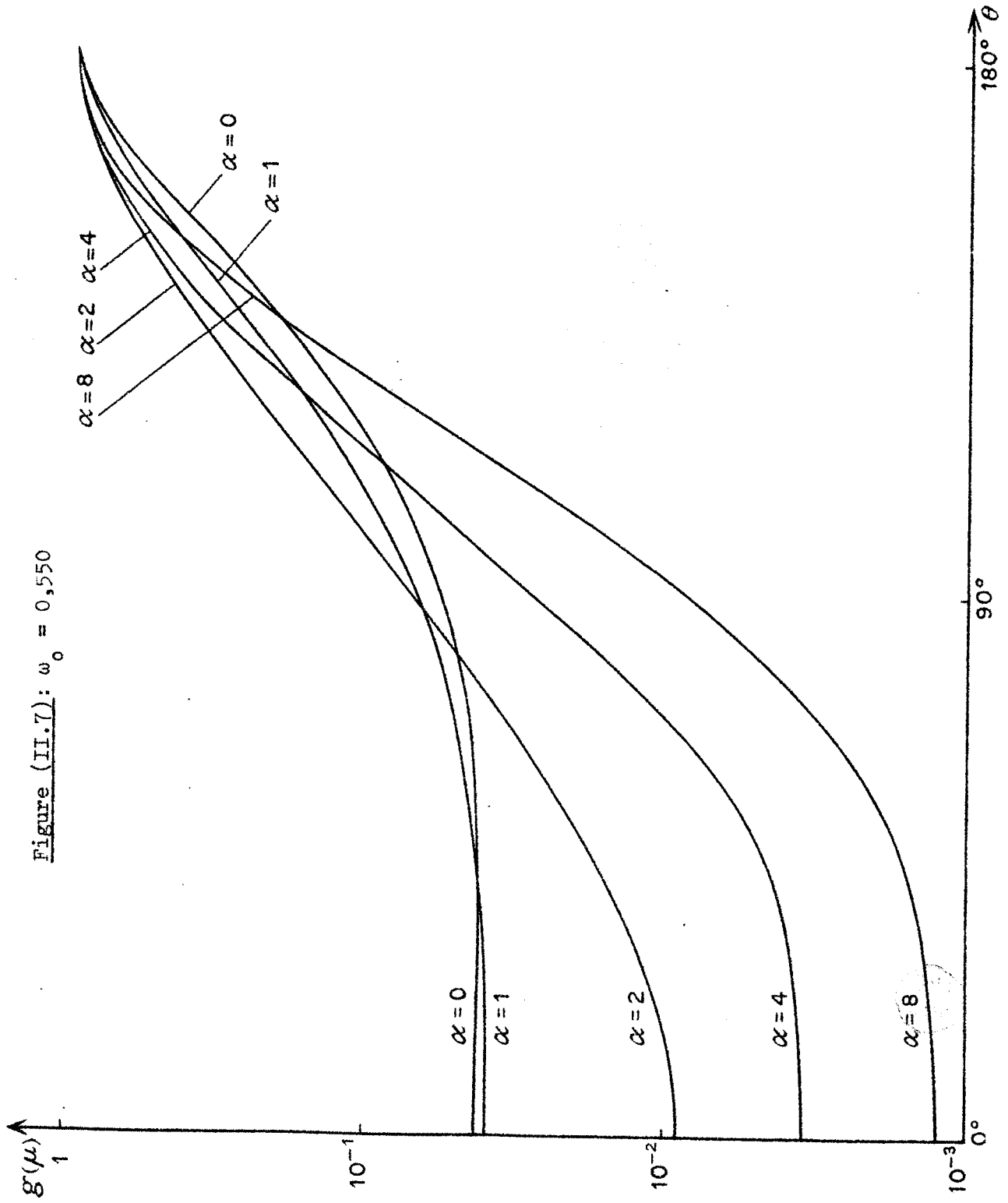


Figure (II.7): $\omega_0 = 0,550$



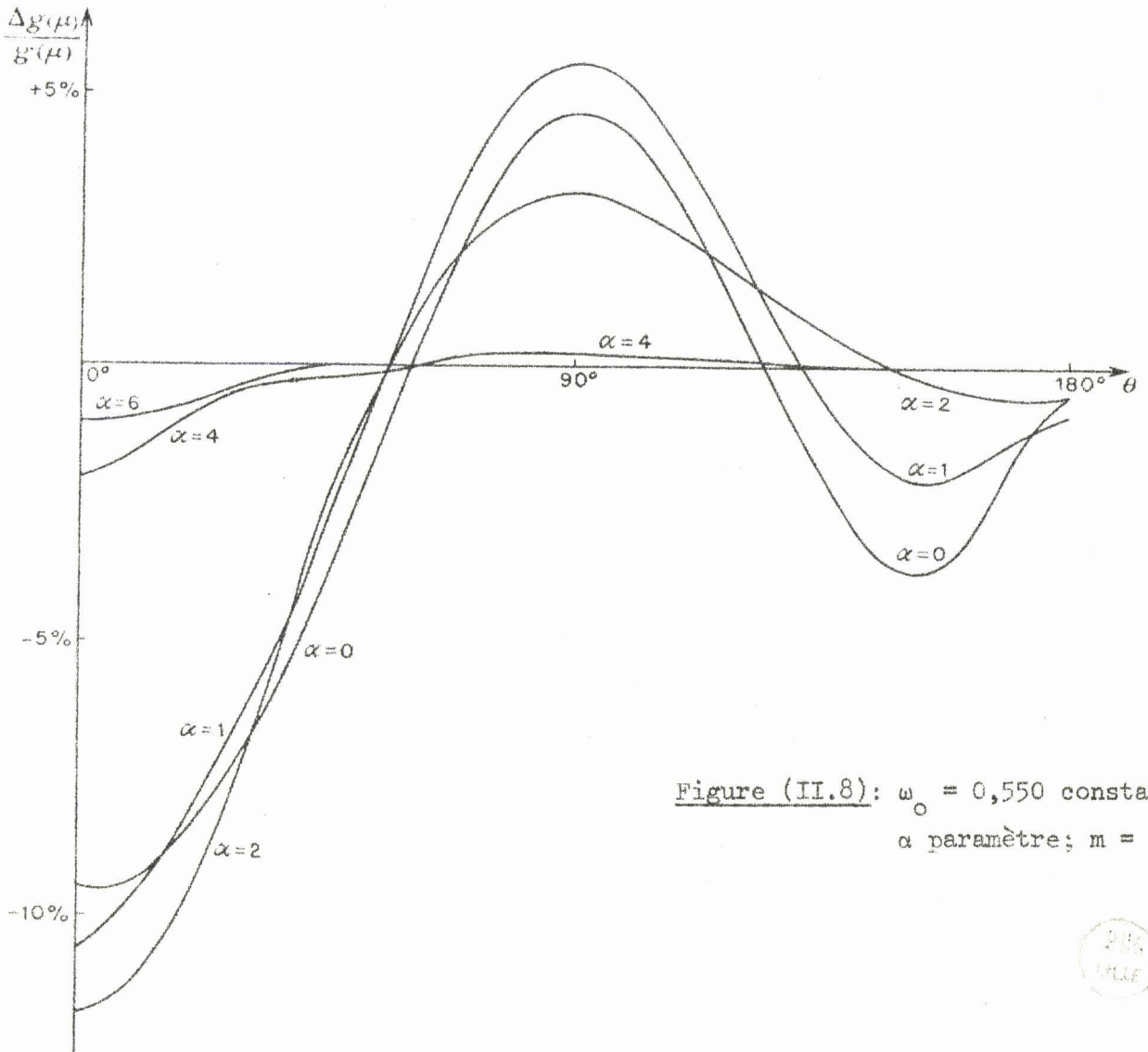


Figure (II.8): $\omega_0 = 0,550$ constant
 α paramètre; $m = 1,20$. $y = 0$



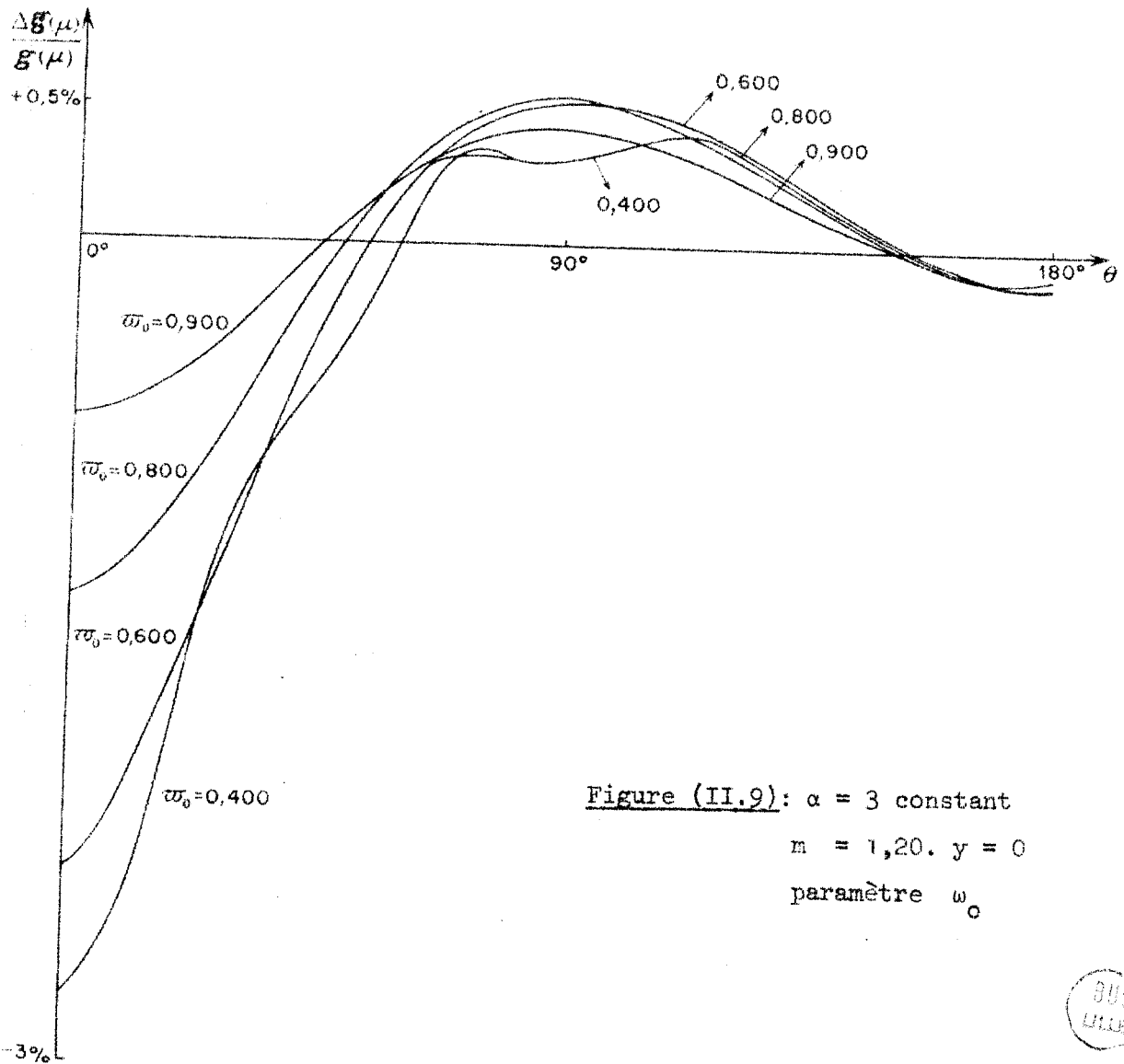


Figure (II.9): $\alpha = 3$ constant
 $m = 1,20. y = 0$
 paramètre ω_0



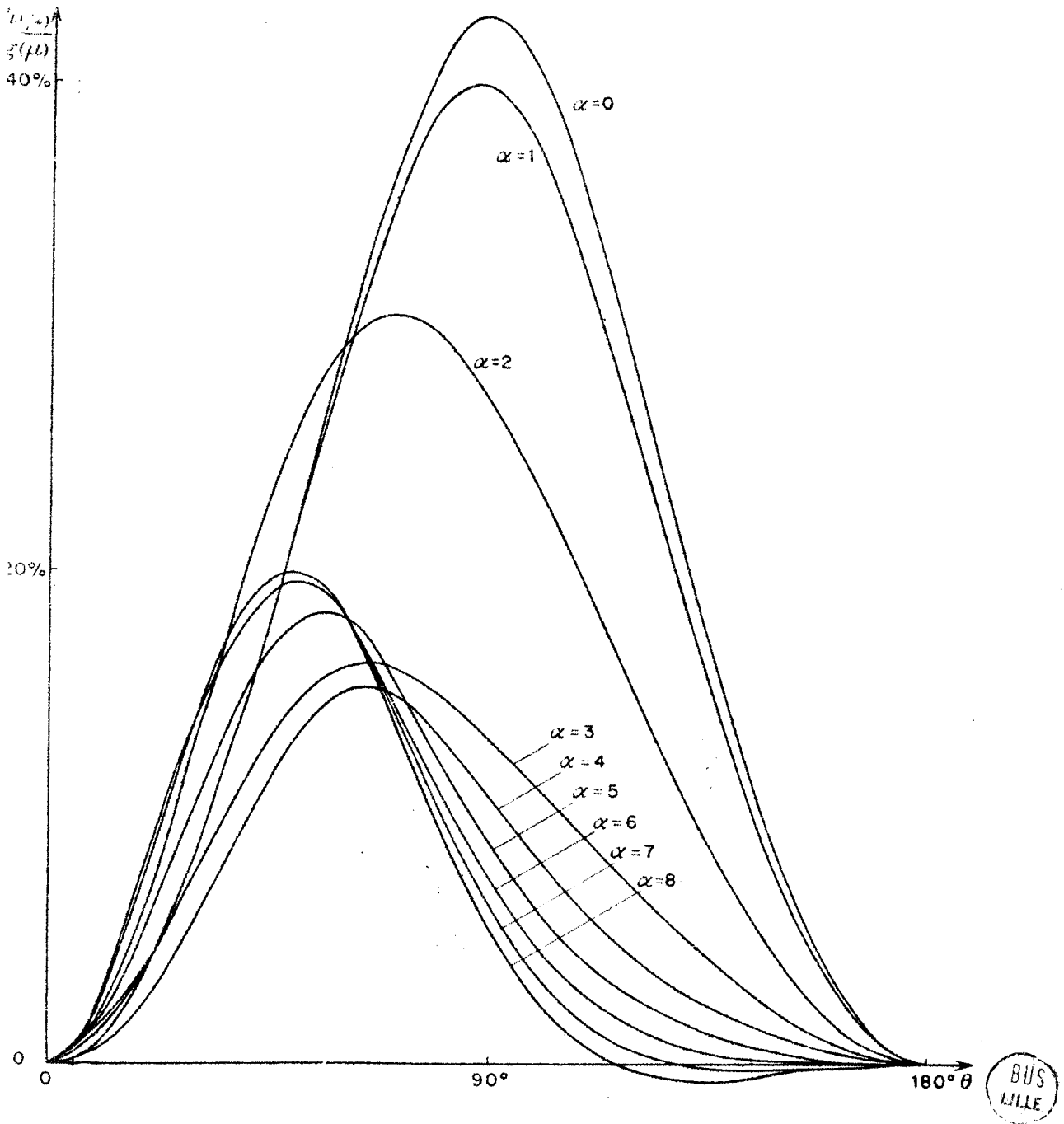


Figure (II.10): Taux de polarisation

$\omega_0 = 0,750$ constant

α paramètre; $m = 1,20$. $\gamma = 0$.



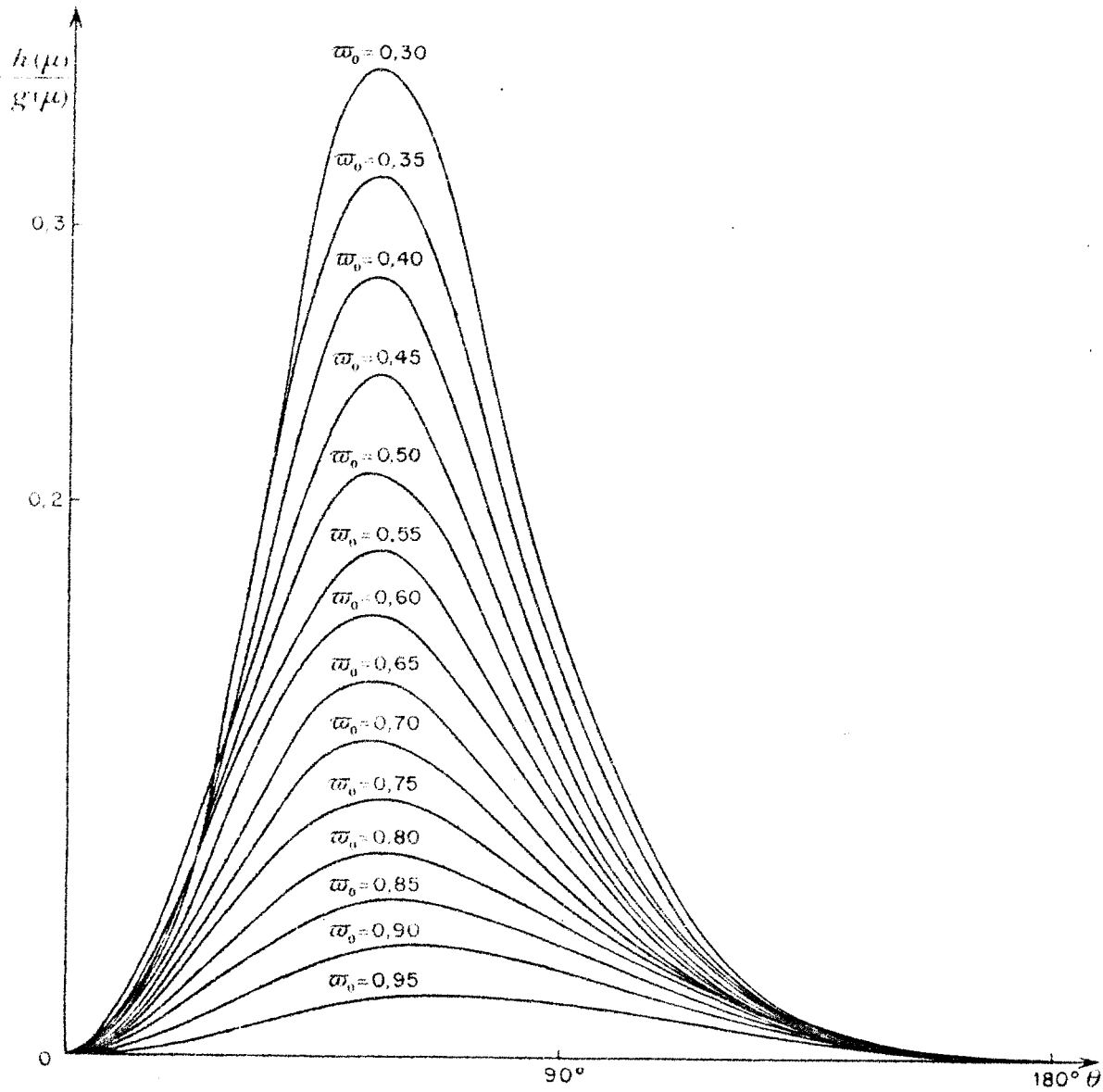


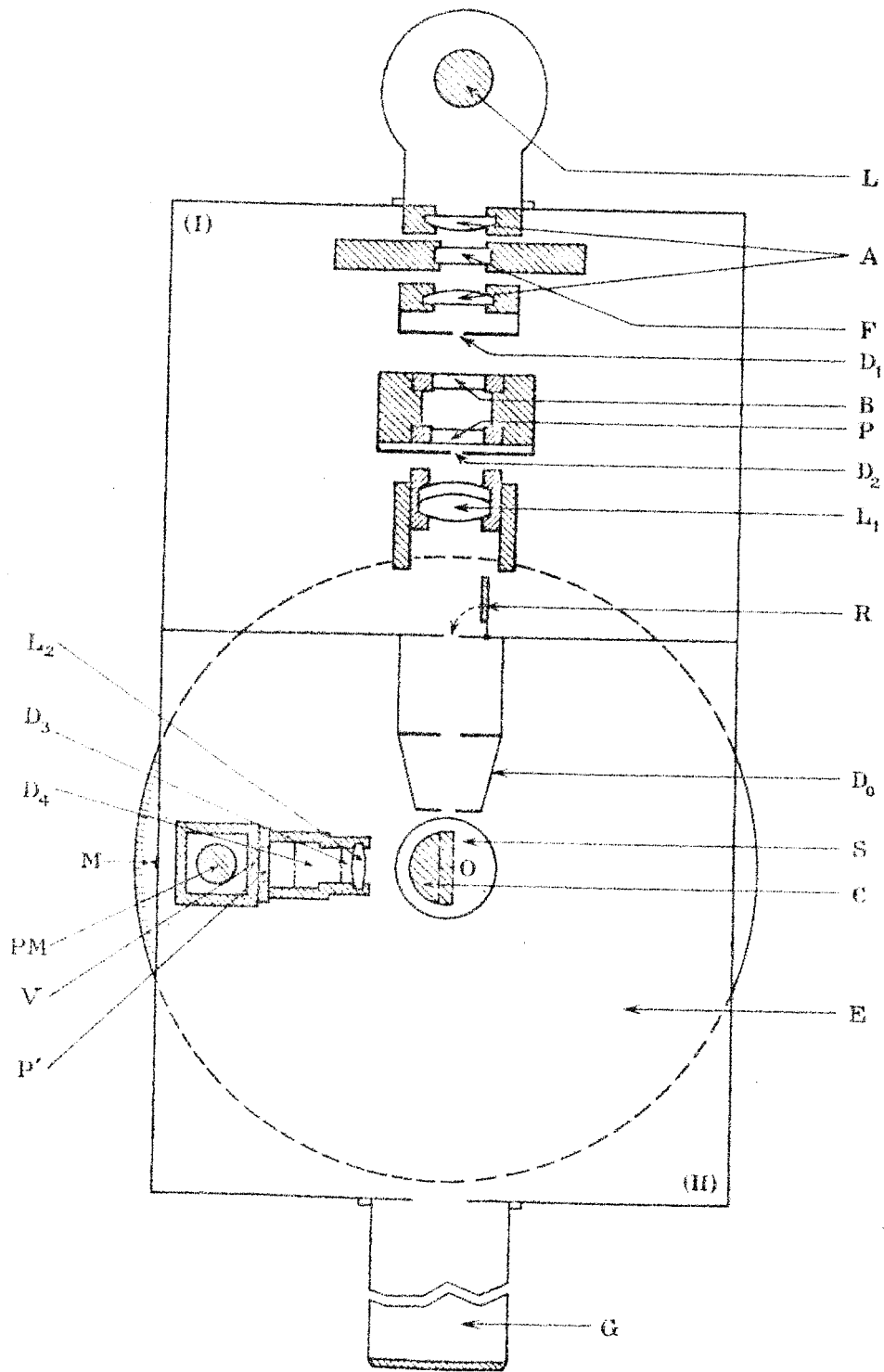
Figure (II.11): Taux de polarisation

$\alpha = 3$ constant; $m = 1,20$. $y = 0$

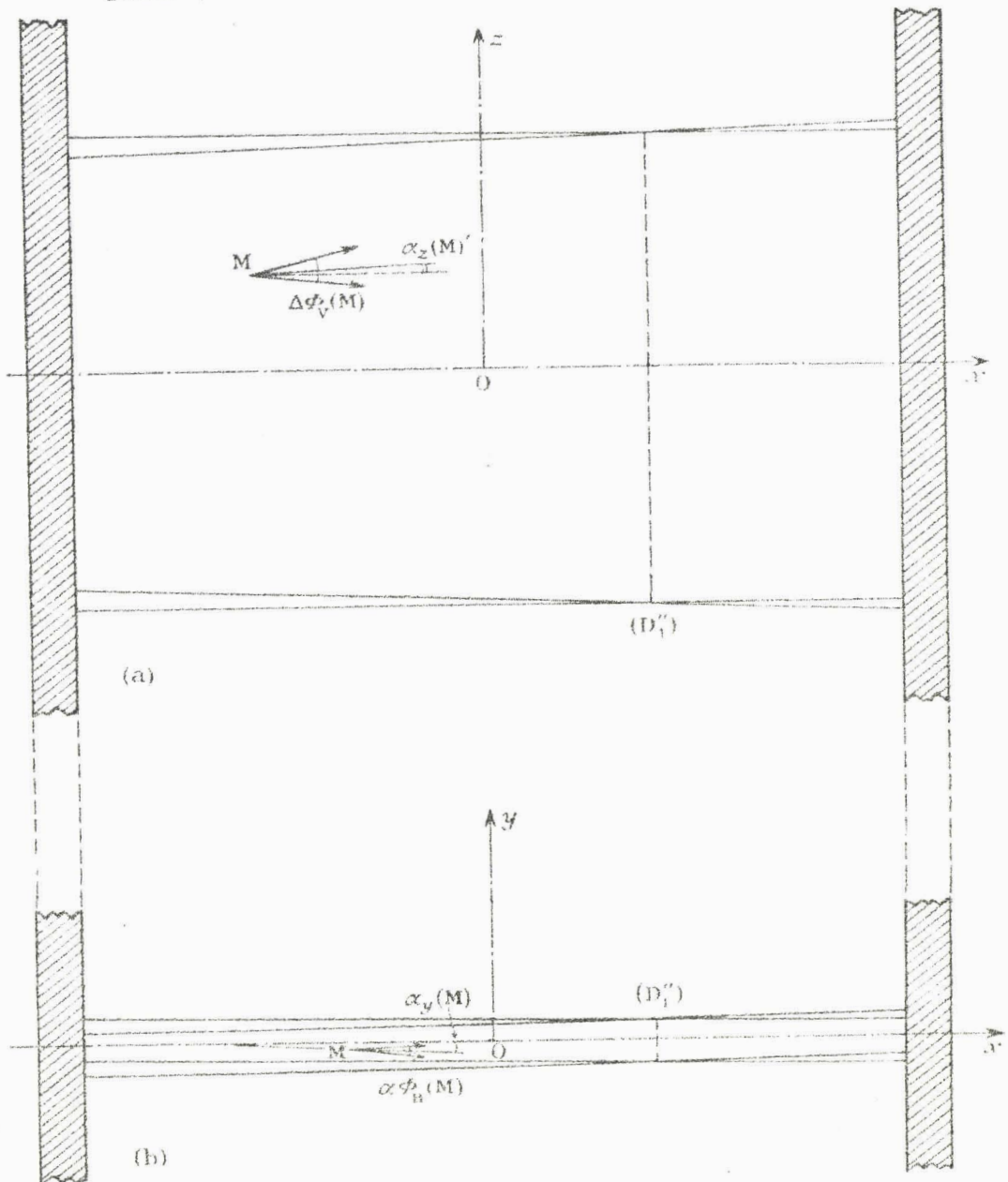
ω_0 paramètre



Figure (III.1)



Échelle 4/1



BUS
LILLE

Figure (III.3):
Champ incident

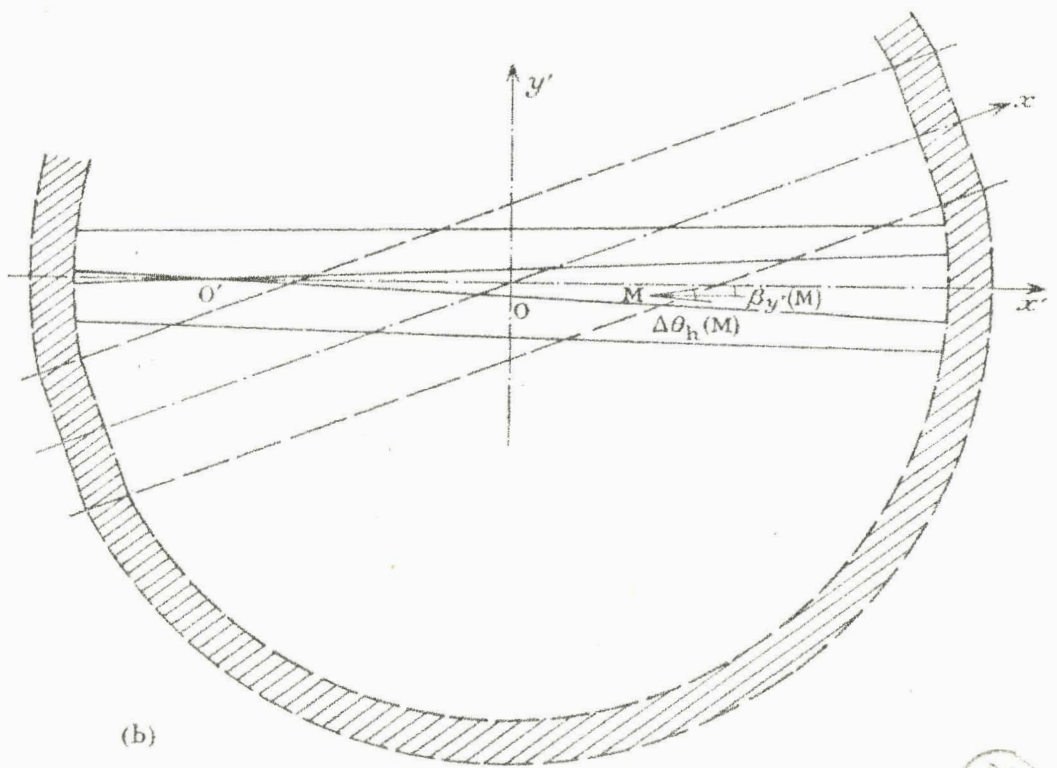
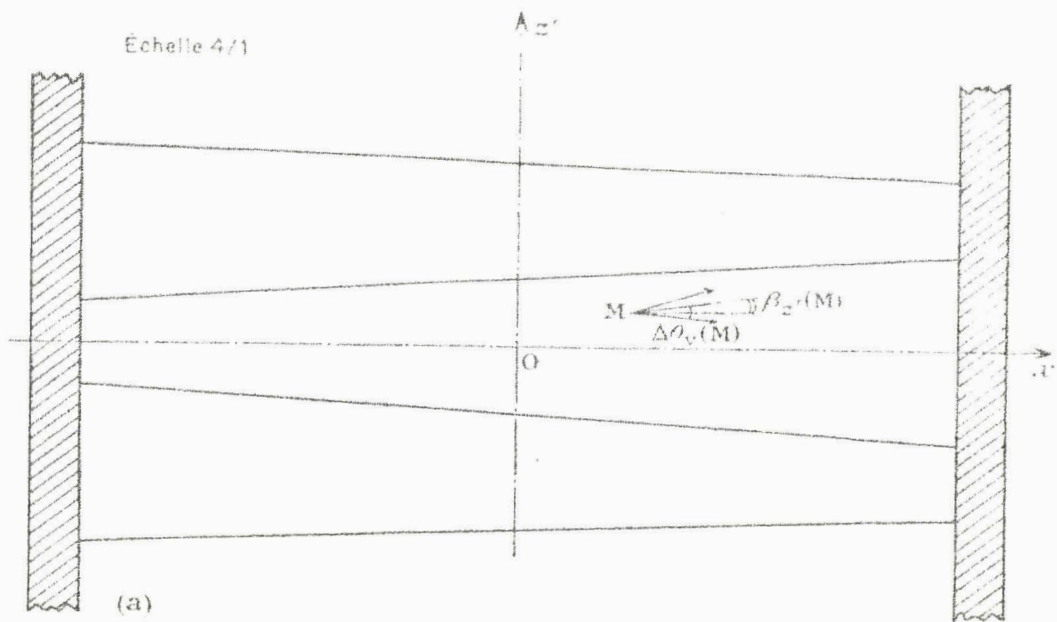


Figure (III.4)
 Champ Diffusé



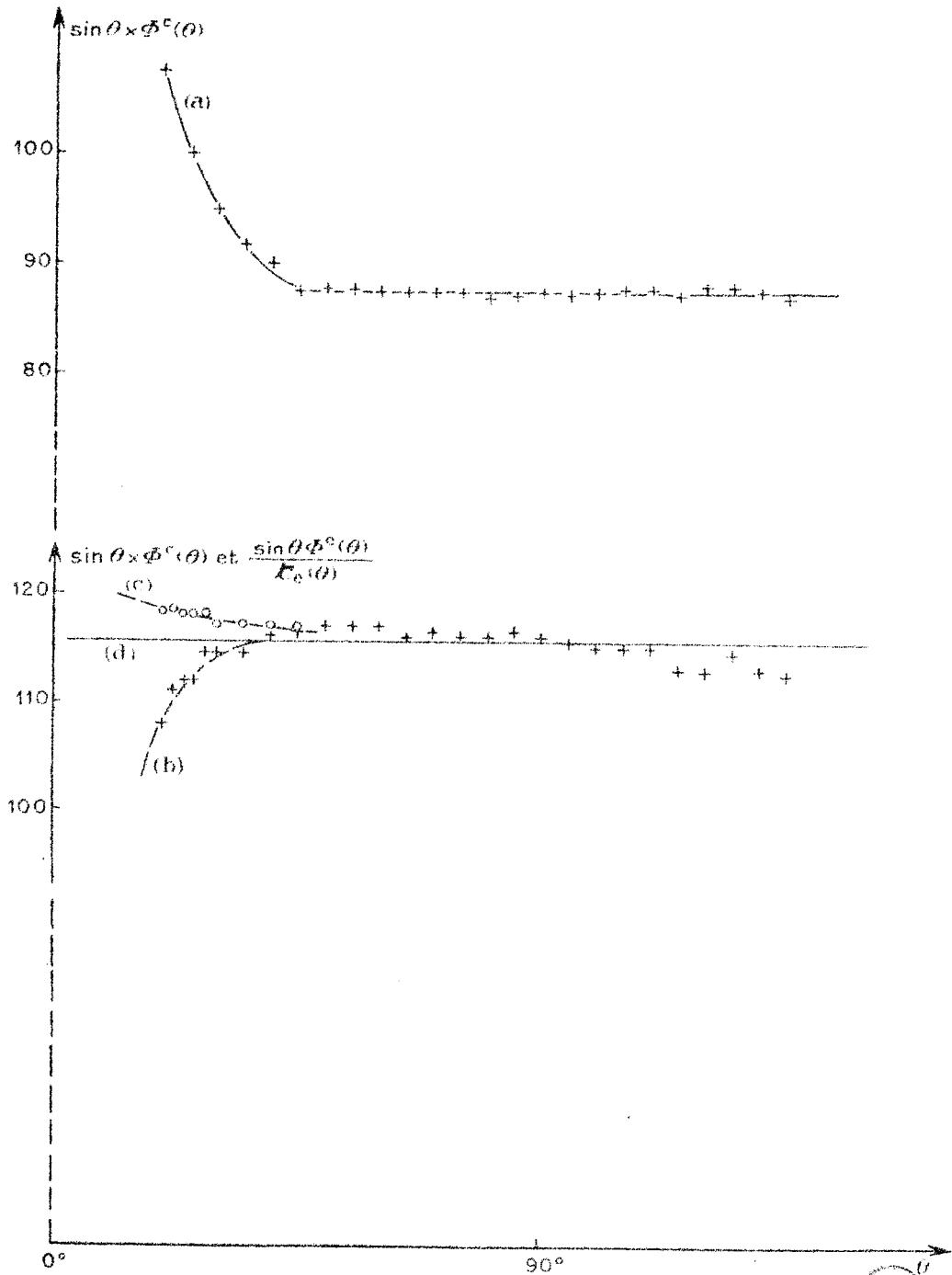
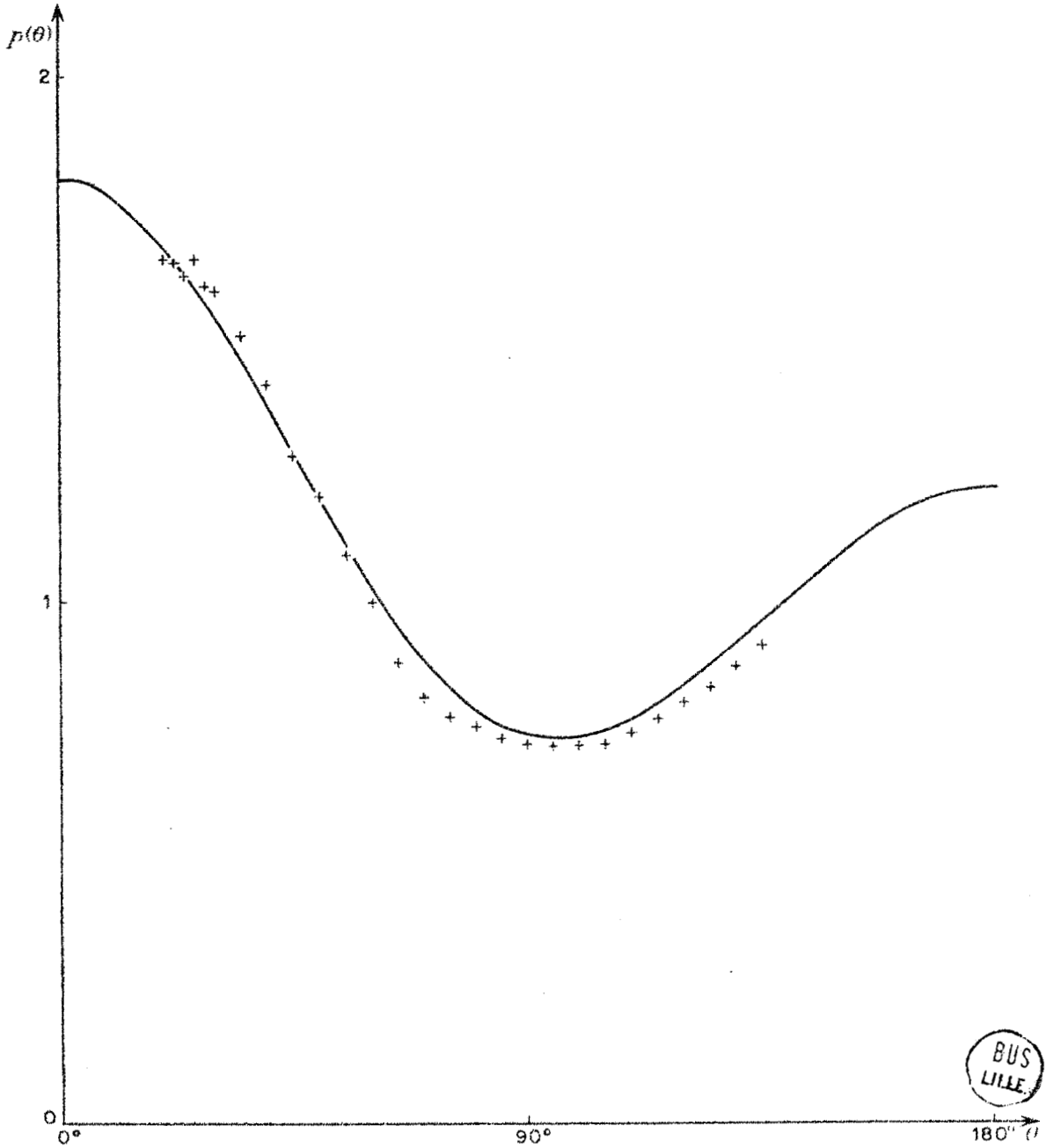


Figure (III.10): (a): sans filtre

(b): lumière diffuse éliminée

(c): correction par $t_1(\theta)$ théorique





BUS
LILLE

Figure (III.11): particules D.C.C.; $\alpha = 0.675$. latex
 courbe théorique et points expérimentaux

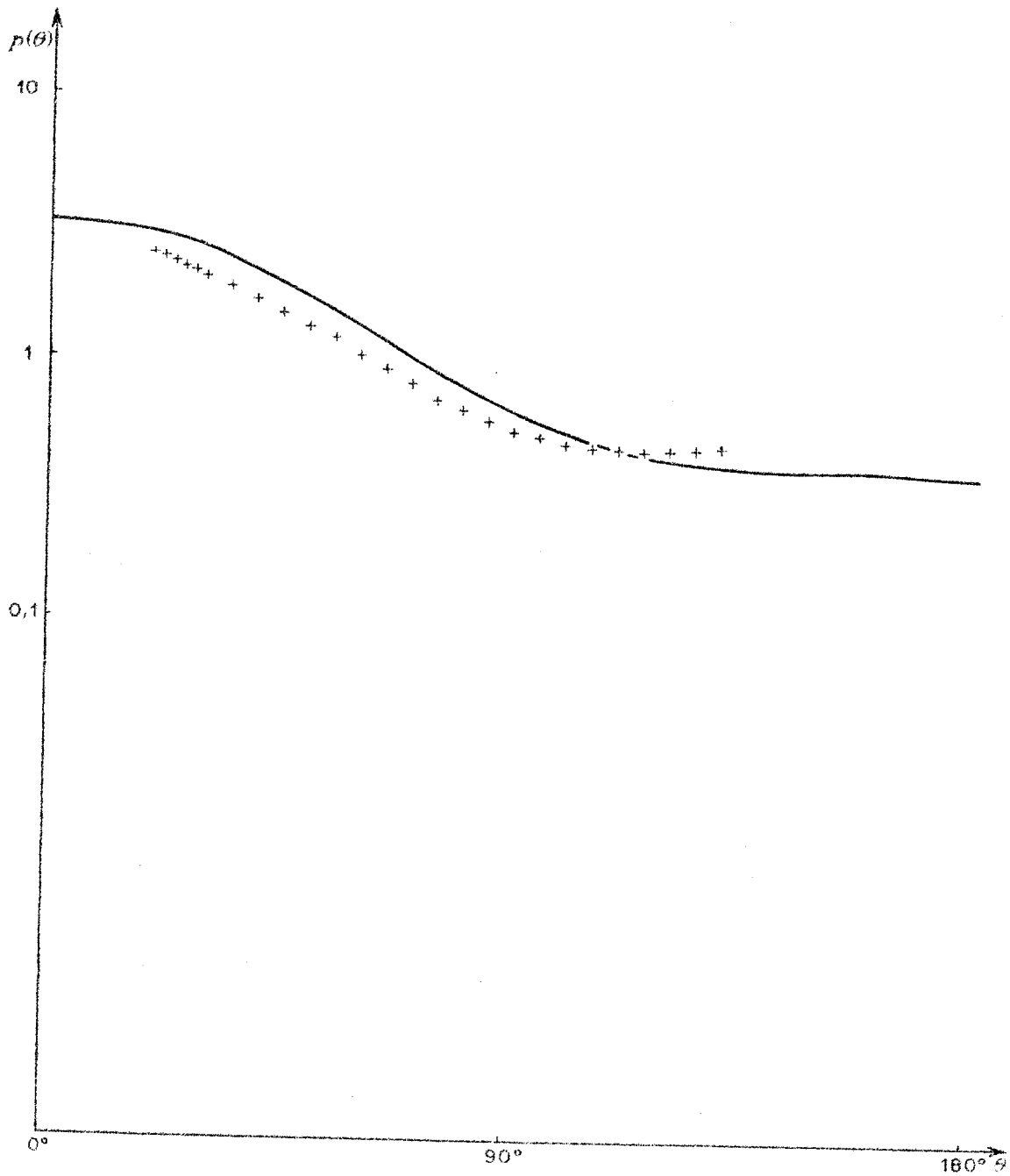


Figure (III.12) $\alpha = 1,45$. latex
 courbe théorique et points expérimentaux



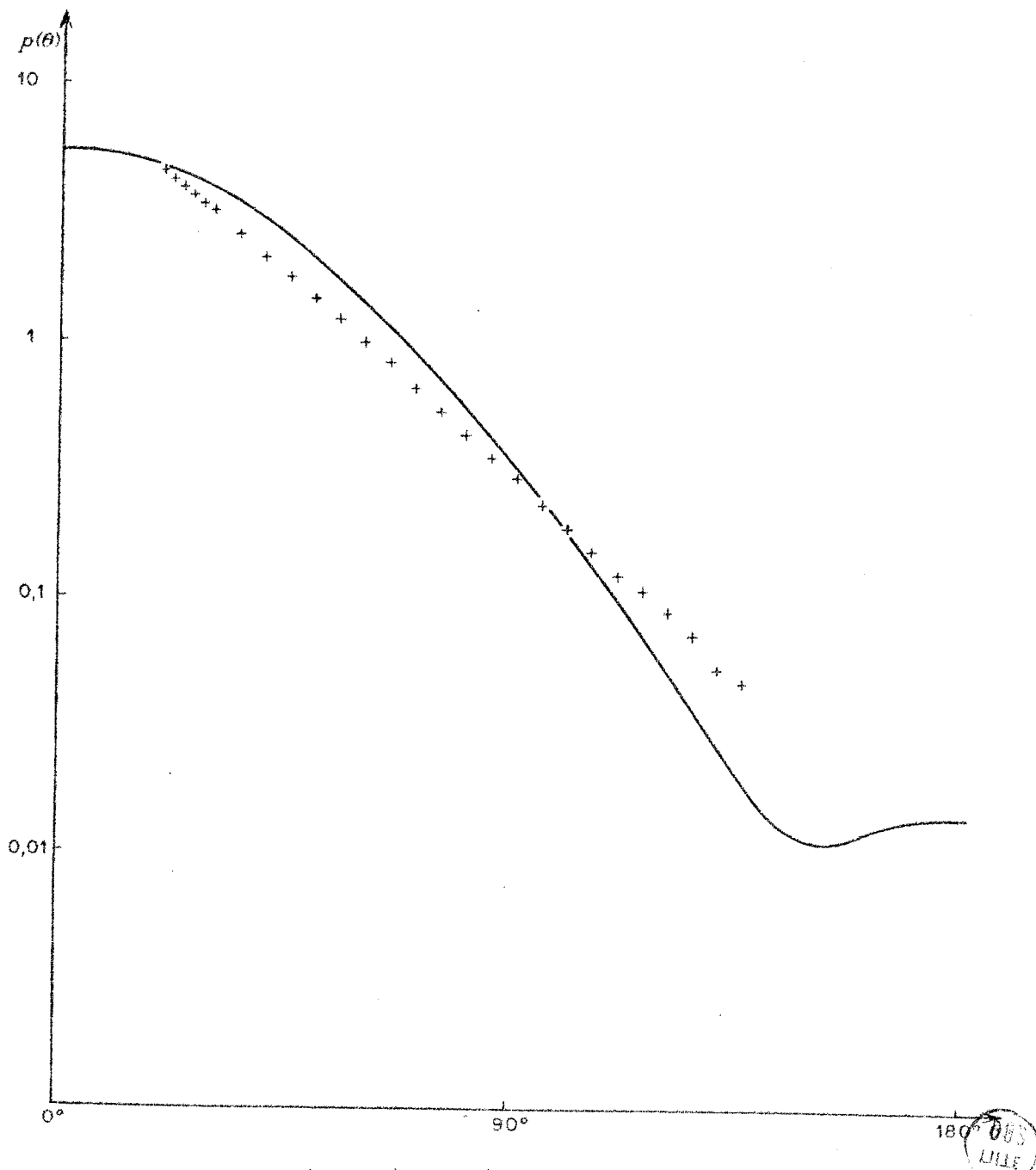


Figure (III.13): $\alpha = 2,025$. latex
 courbe théorique et points expérimentaux

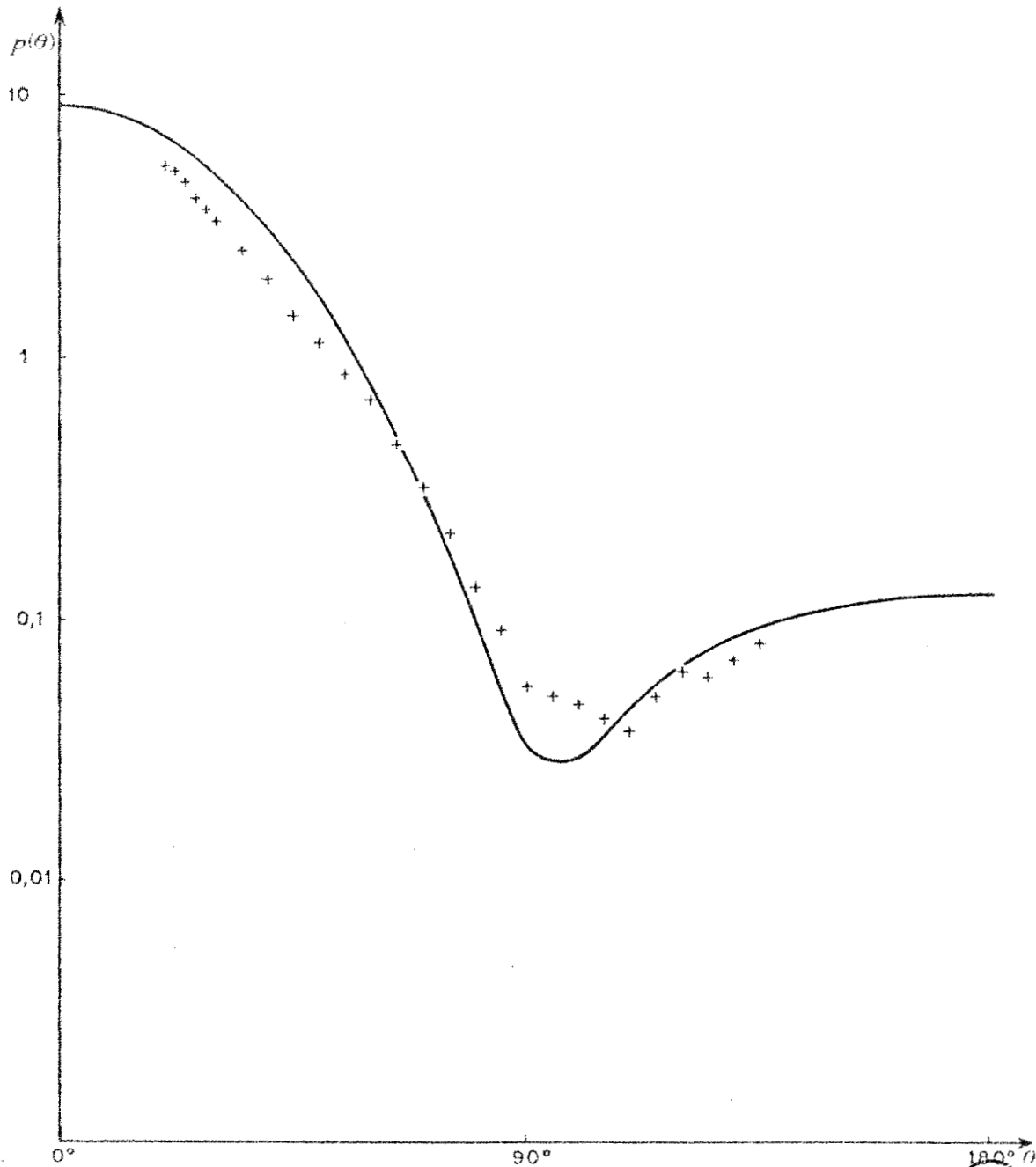


Figure (III.14): $\alpha = 2,8$. latex
 courbe théorique et points expérimentaux



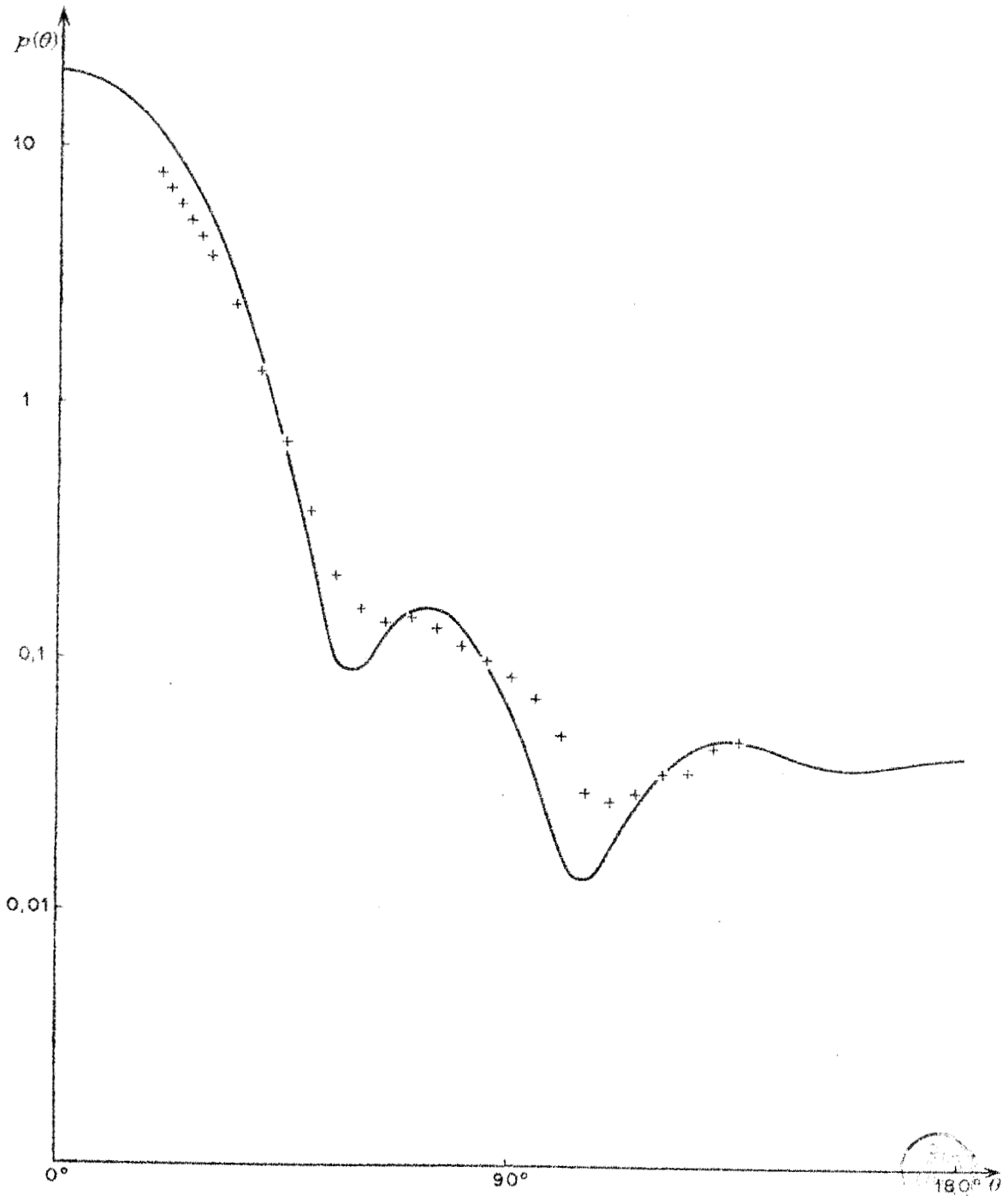


Figure (III.15): $\alpha = 4,2$. latex
 courbe théorique et points expérimentaux

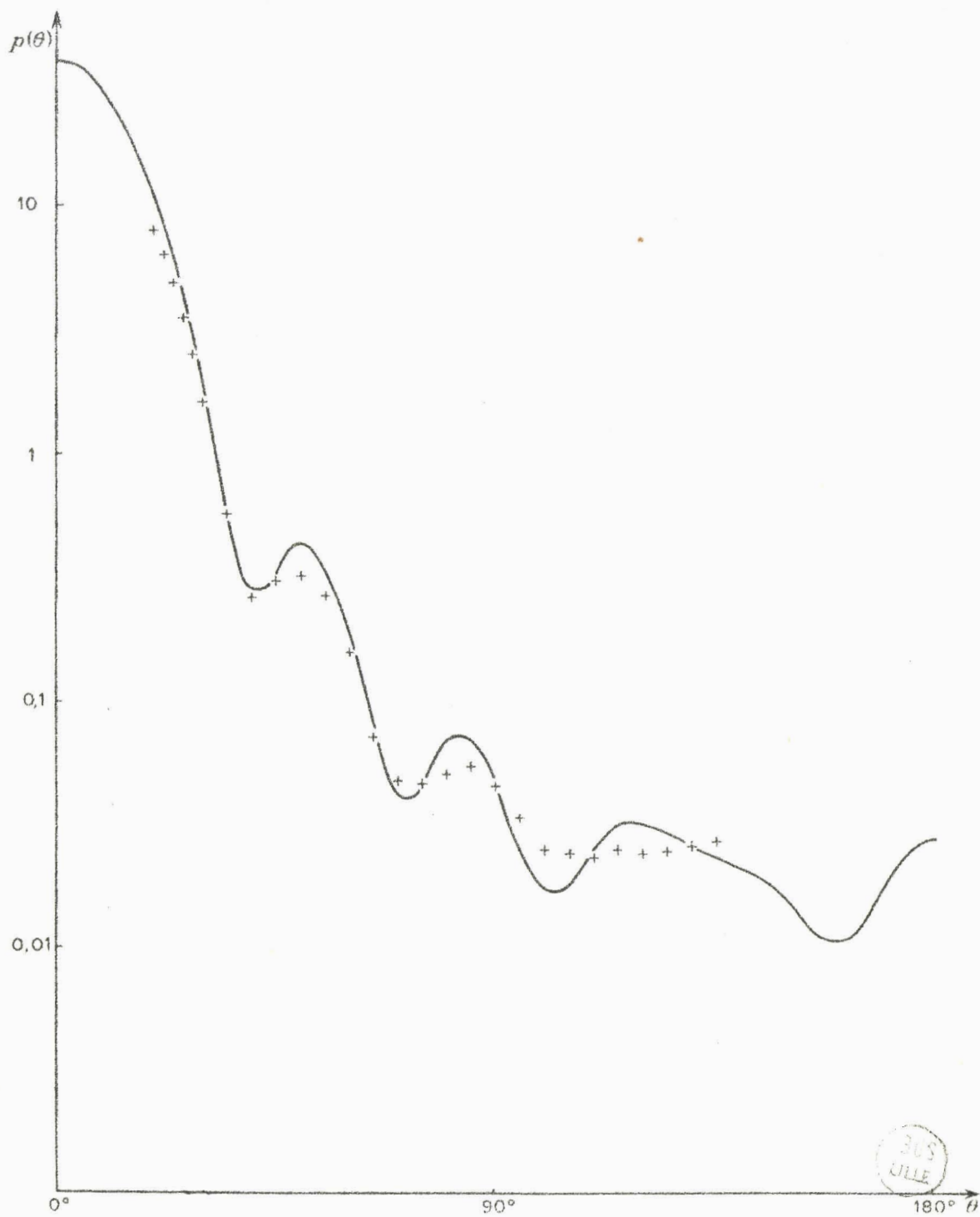


Figure (III.16): $\alpha = 6,1$. latex
 courbe théorique et points expérimentaux

305
 JULLE

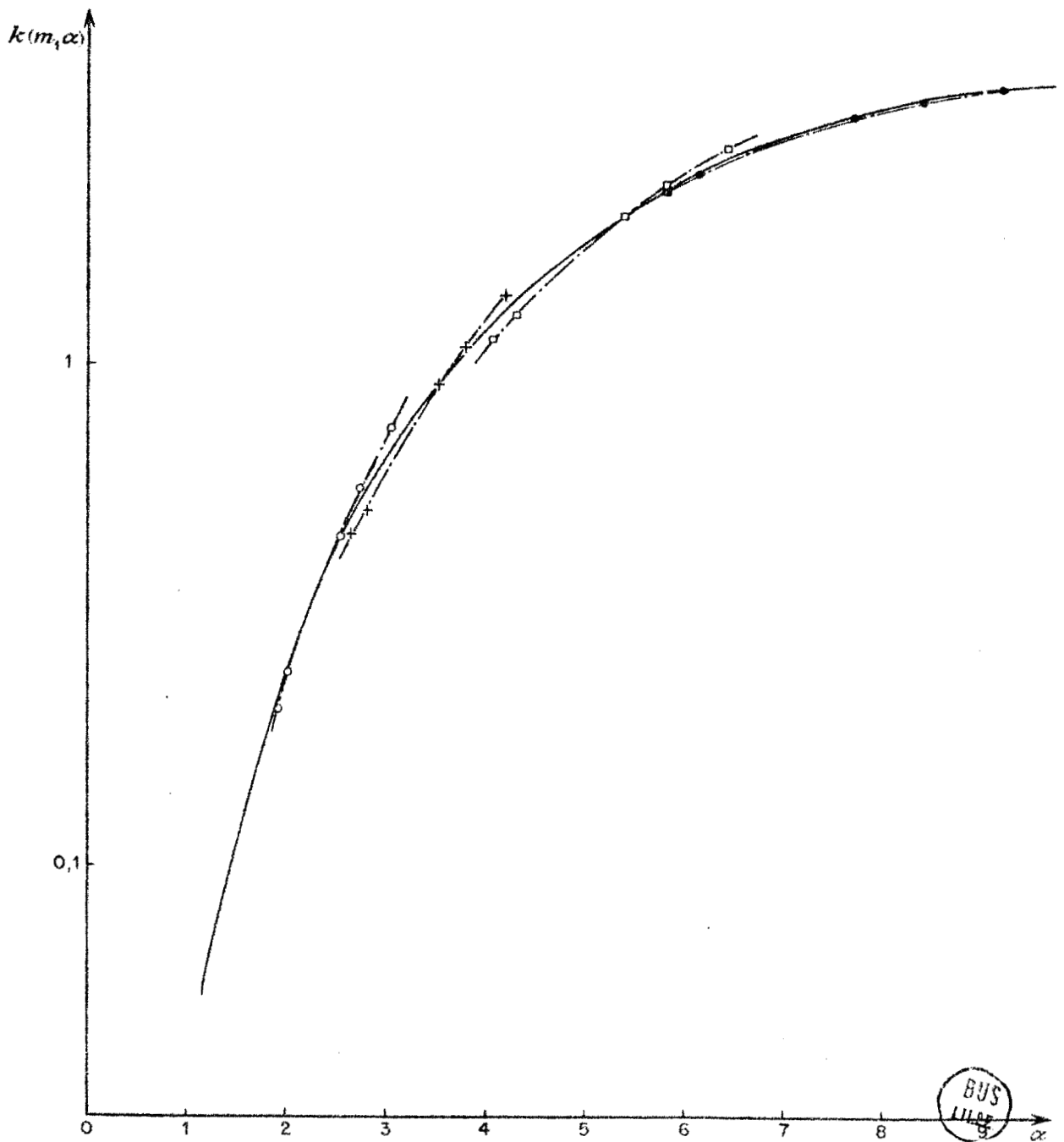


Figure (III.17):

courbe continue: section efficace de diffusion théorique
pour l'indice réel $m = 1,20$.

trouçons de courbes: résultats expérimentaux pour les latex.



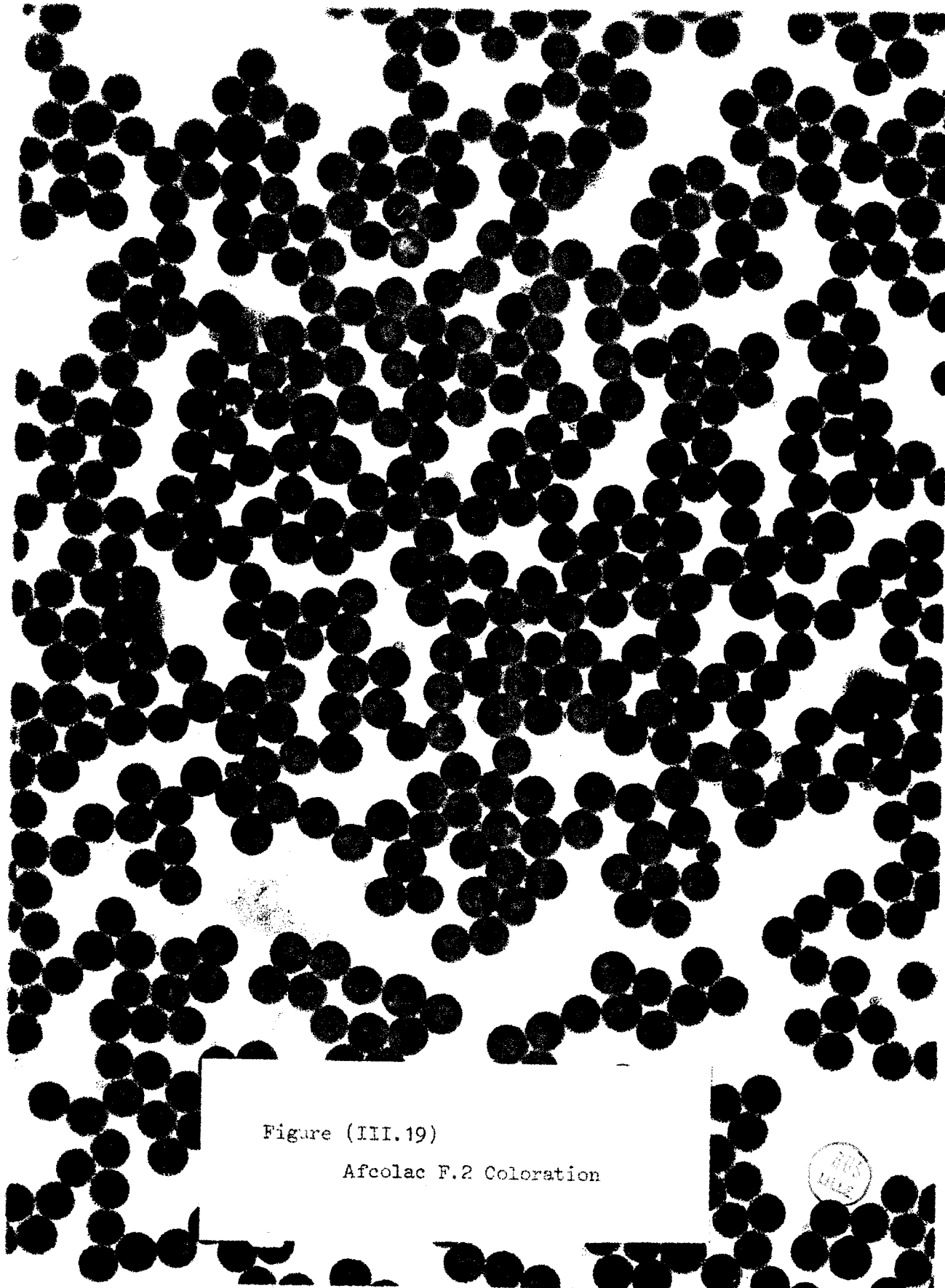


Figure (III.19)

Afcolac F.2 Coloration



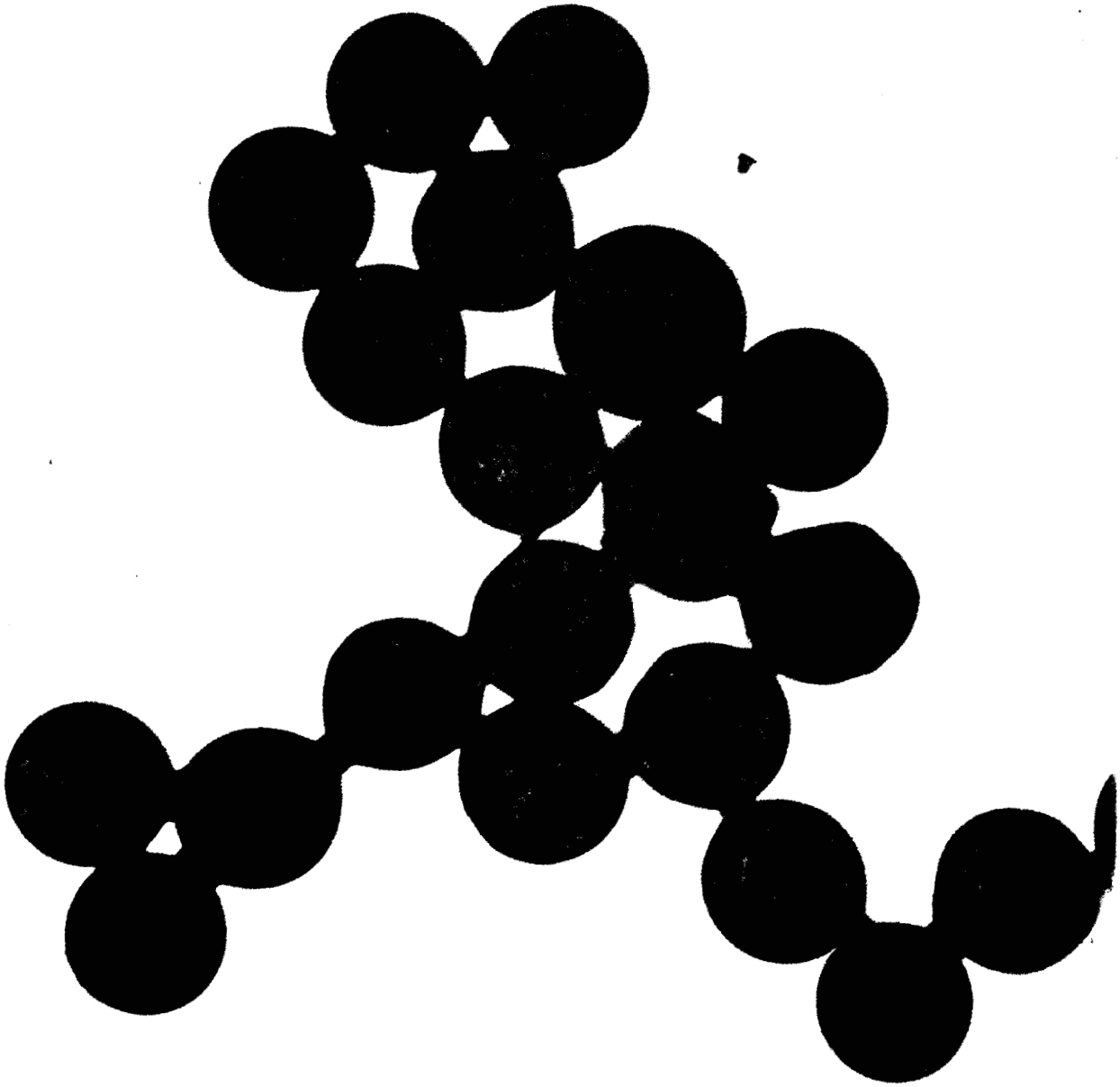


Figure (III.18)

Latex LS.063.A. Coloration



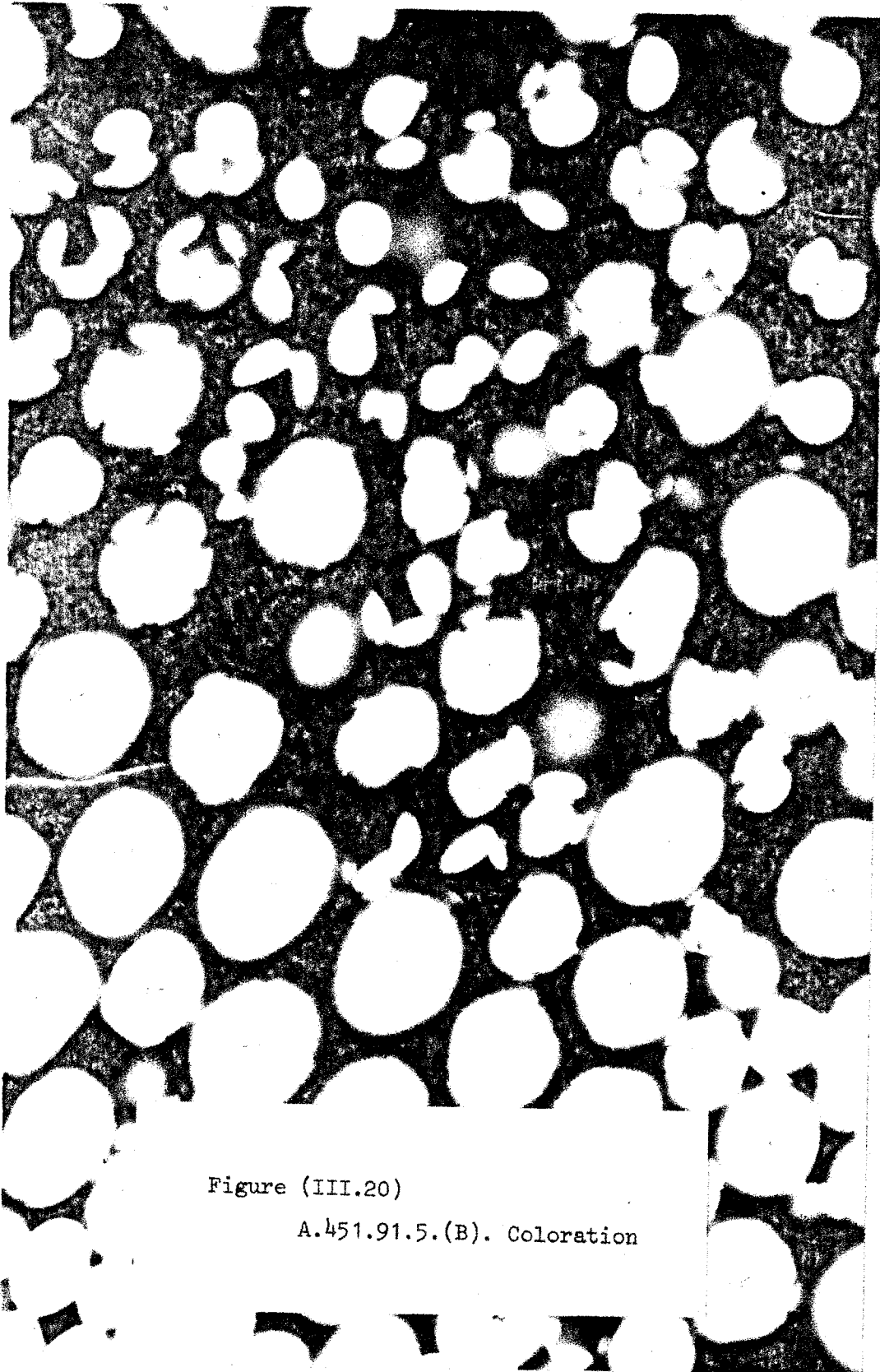


Figure (III.20)

A.451.91.5.(B). Coloration





Figure (III.21)

A.23. Coloration



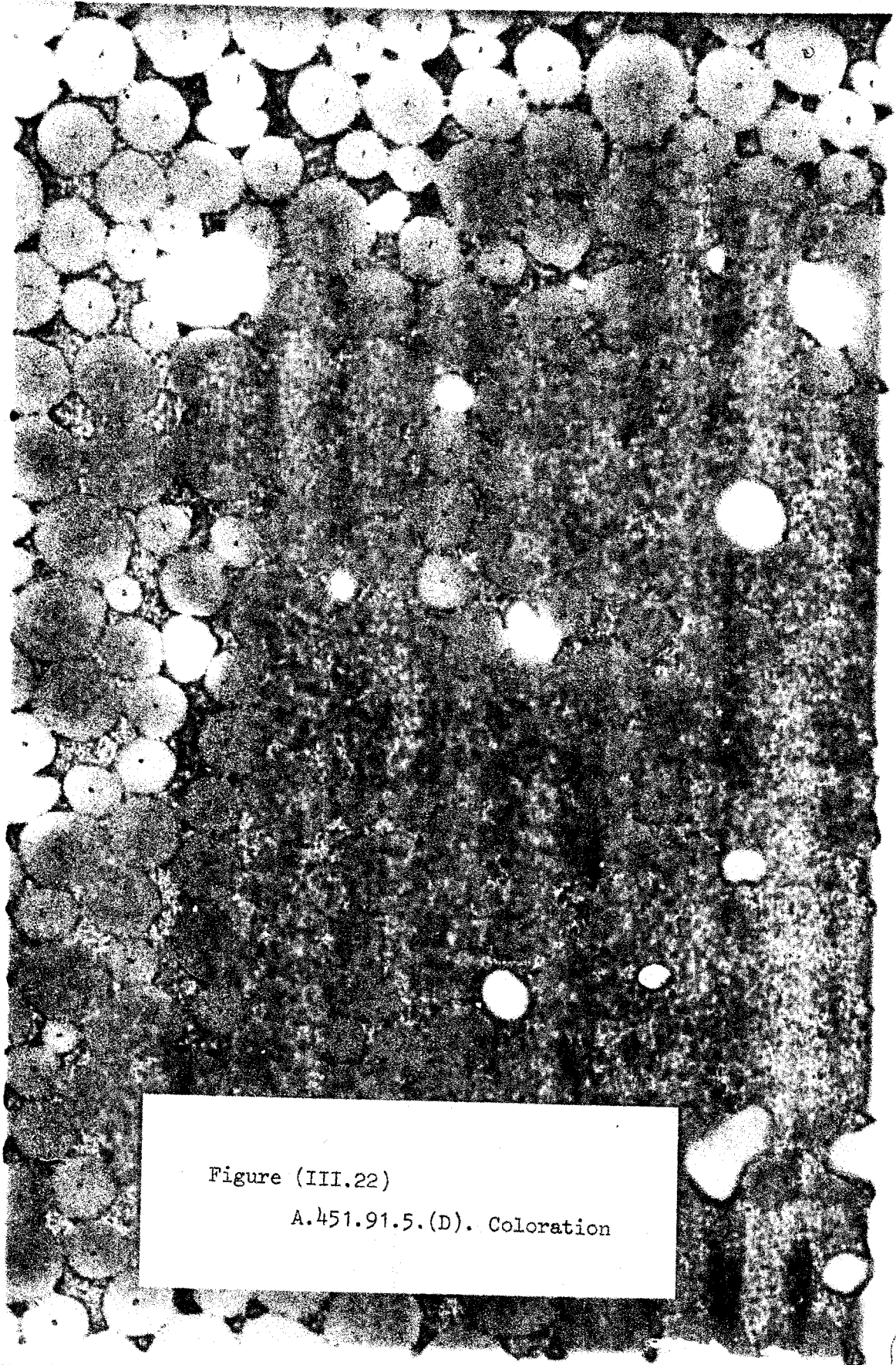


Figure (III.22)

A.451.91.5.(D). Coloration

BUS
LILLE

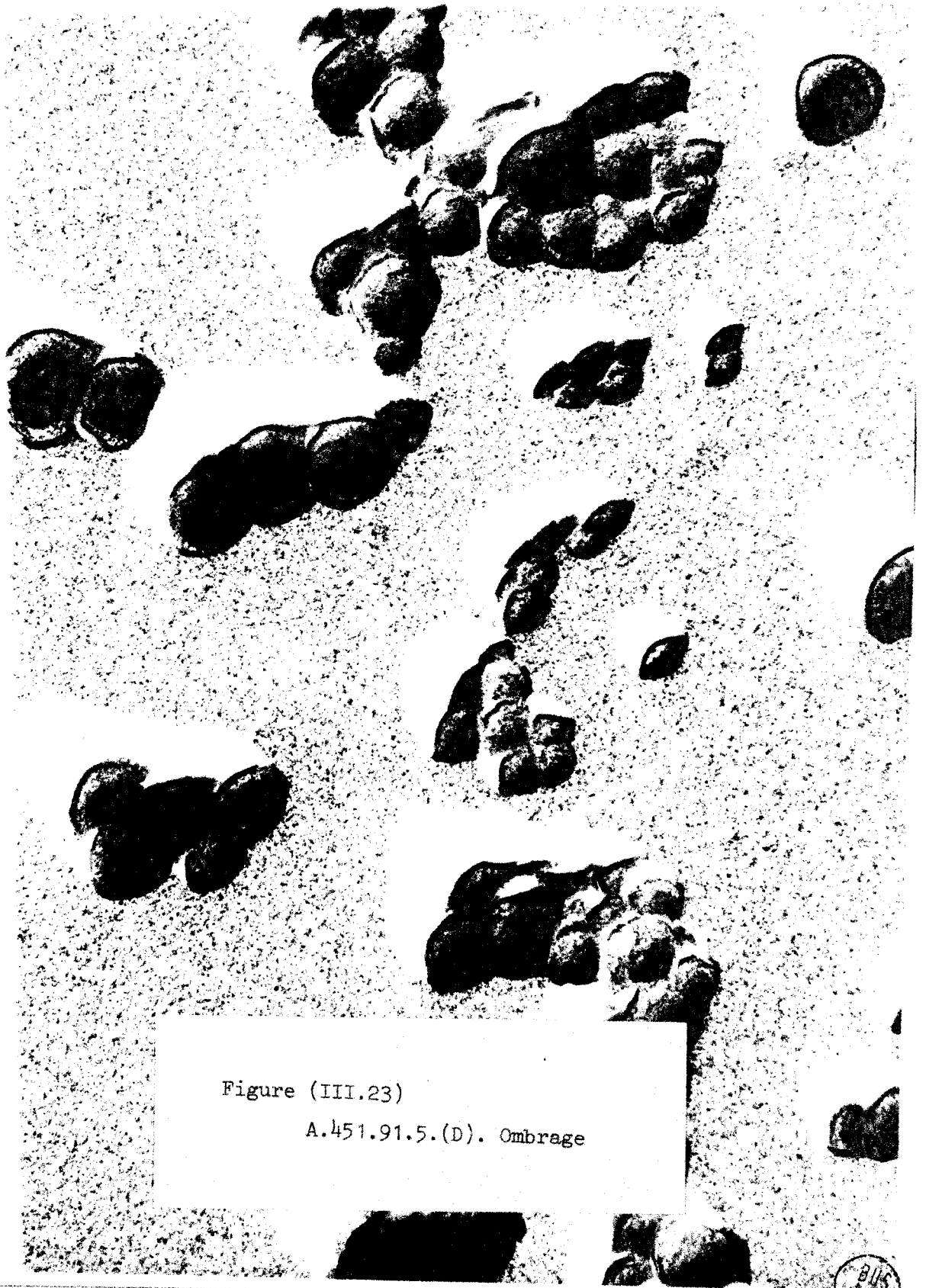


Figure (III.23)

A.451.91.5.(D). Ombrage



$N(\tau)$

75

50

25

0

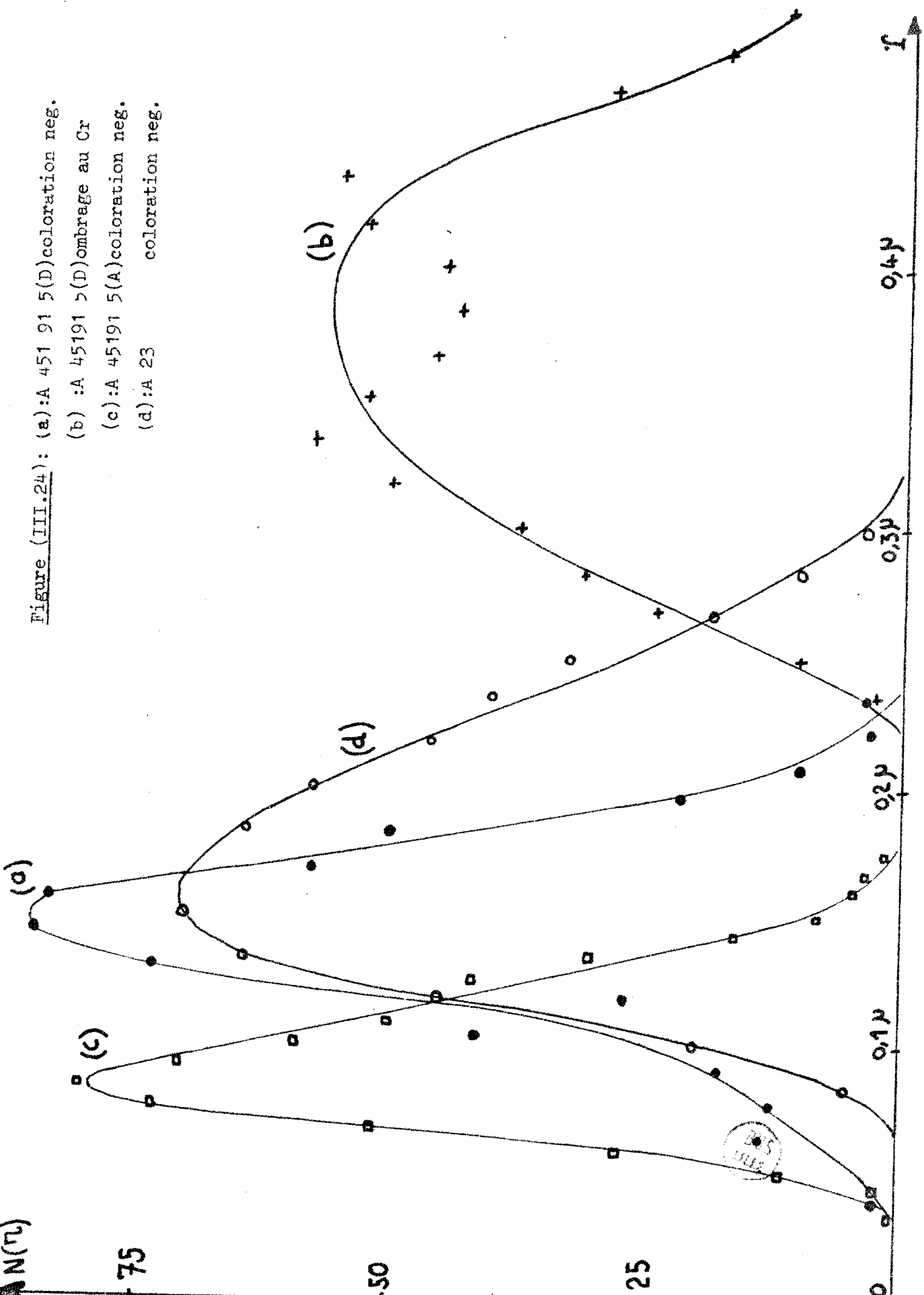


Figure (III.24): (a):A 451 91 5(D)coloration neg.
(b) :A 45191 5(D)ombrage au Cr
(c):A 45191 5(A)coloration neg.
(d):A 23 coloration neg.

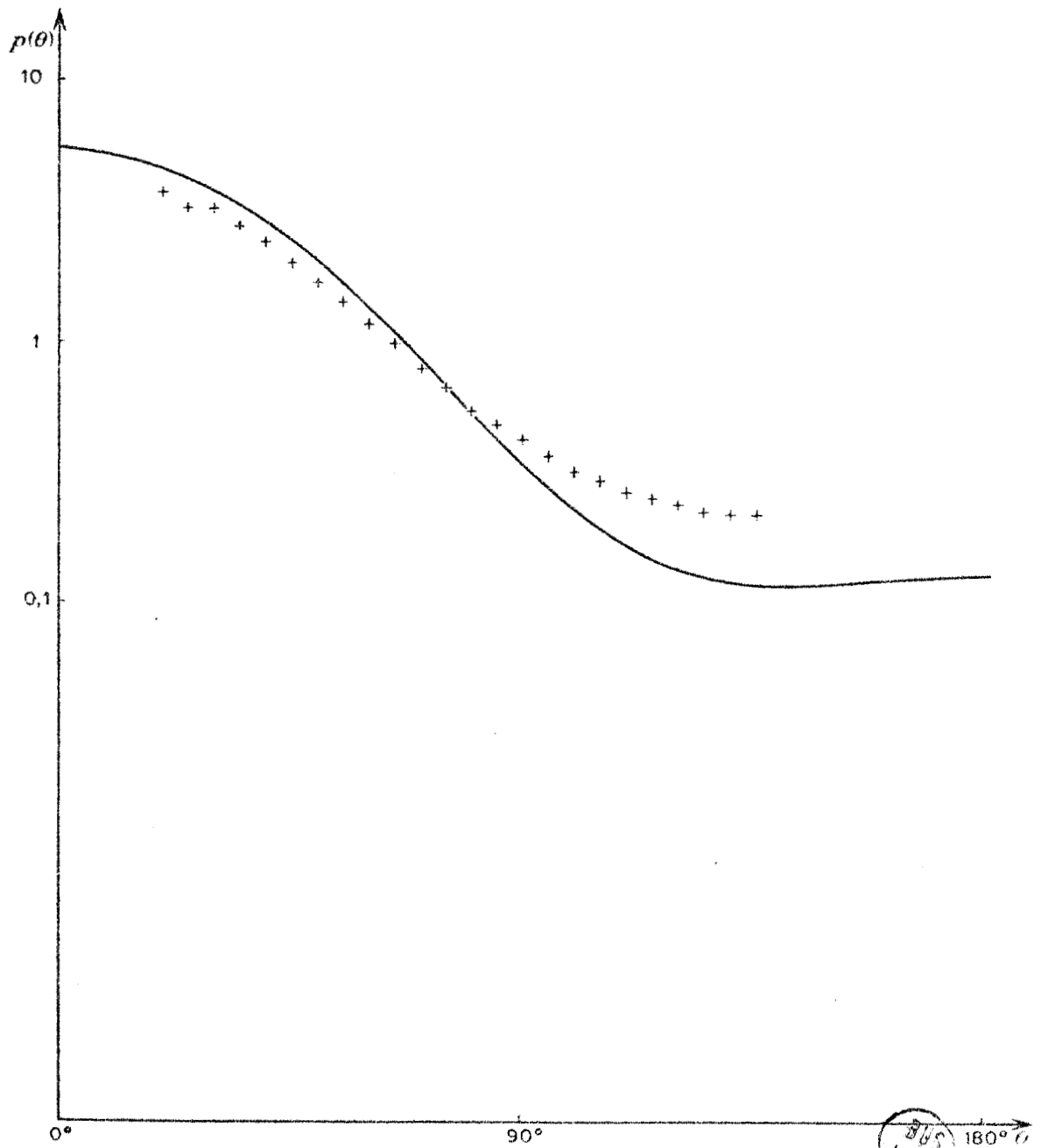
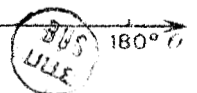


Figure (III.25)

Afcolac A 451 91 5 (B). Courbe théorique
par col. neg. ; et points expérimentaux.



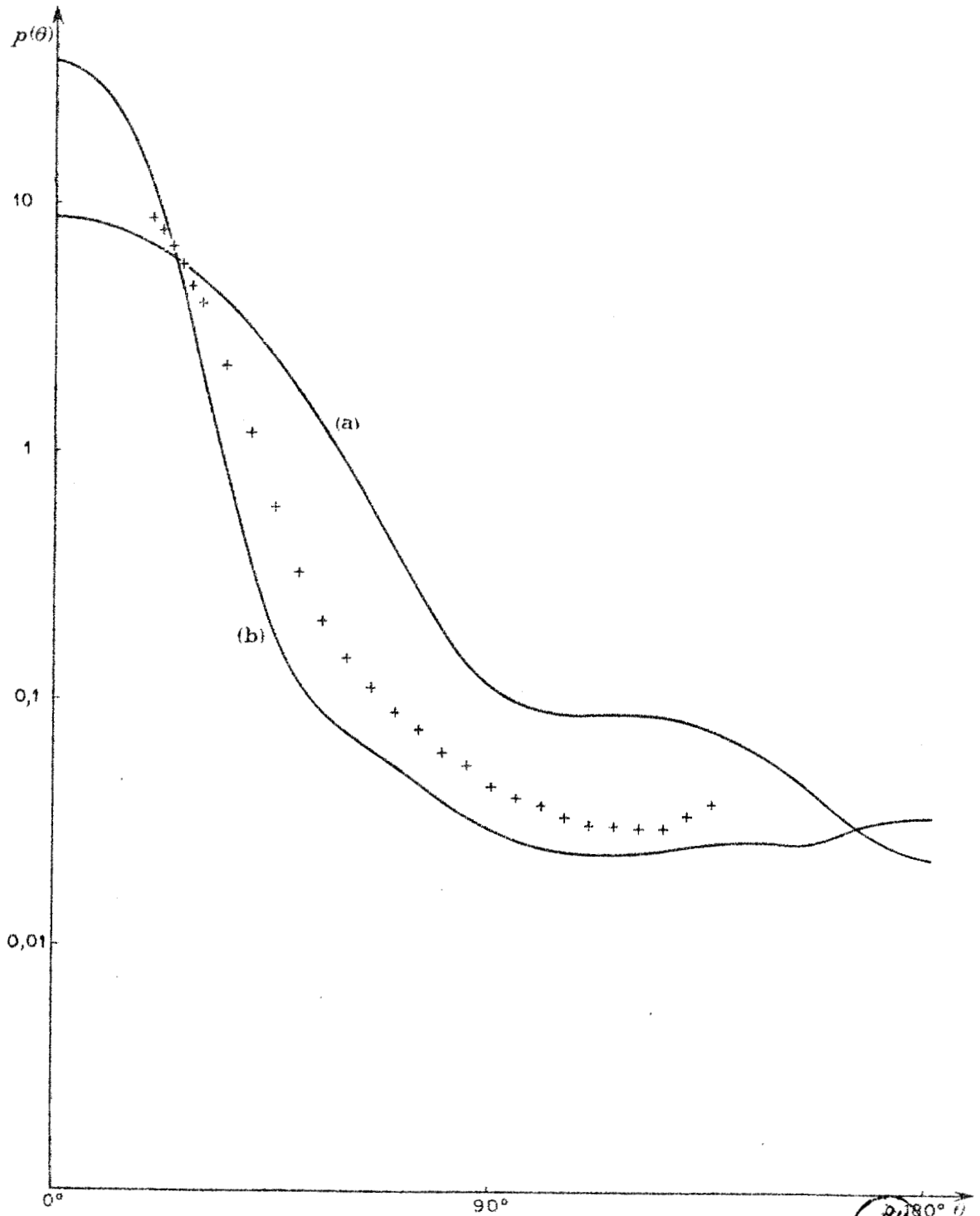


Figure (III.26)

Arcolac A 451 91 5 (D). Courbes théoriques:
 (a): par col. neg.; (b): par ombrage au Cr;
 et points expérimentaux.



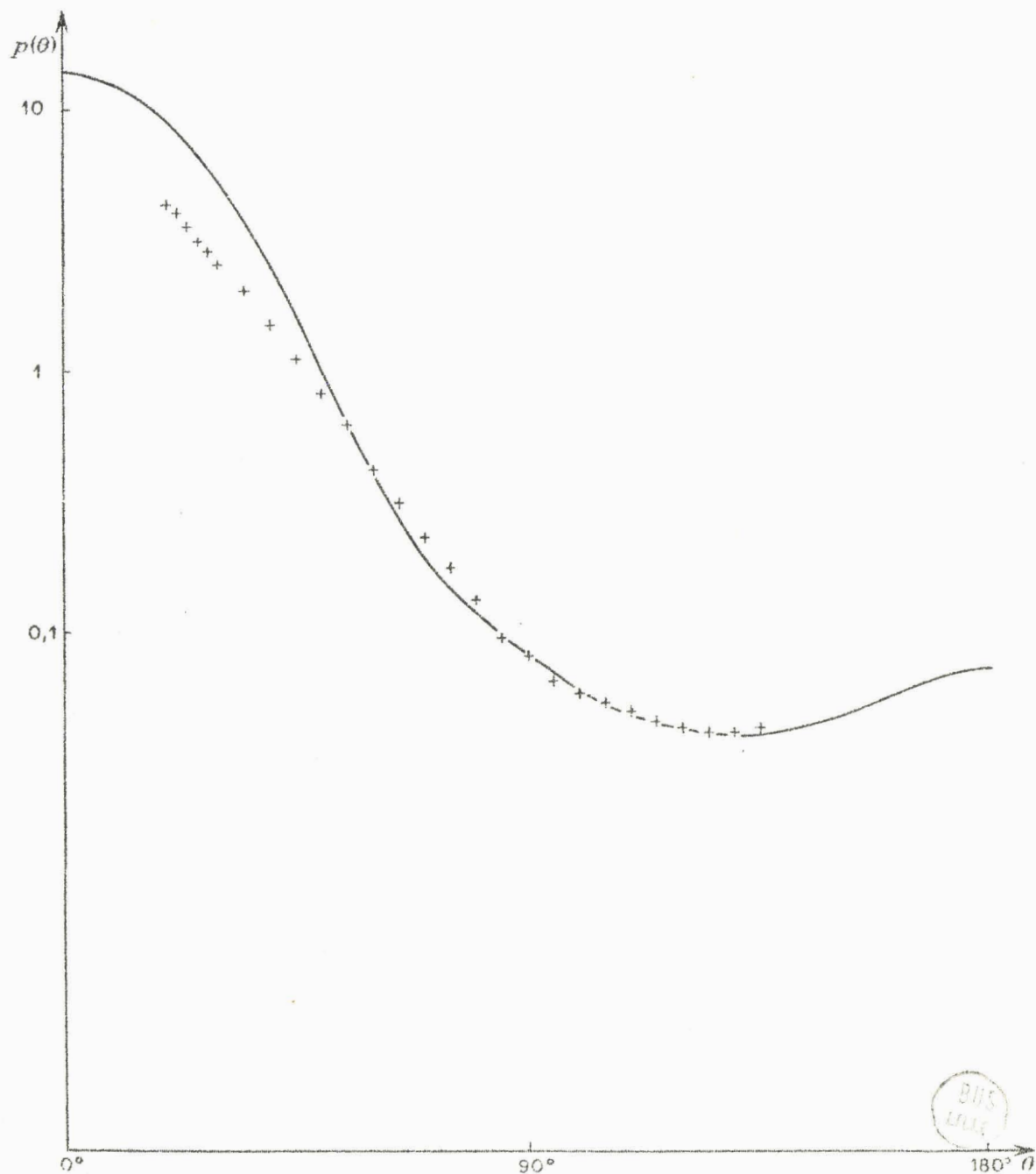


Figure (III.27)
 Arcolac A 451 91 5 (E). Courbe Théorique par ombrage
 et points expérimentaux

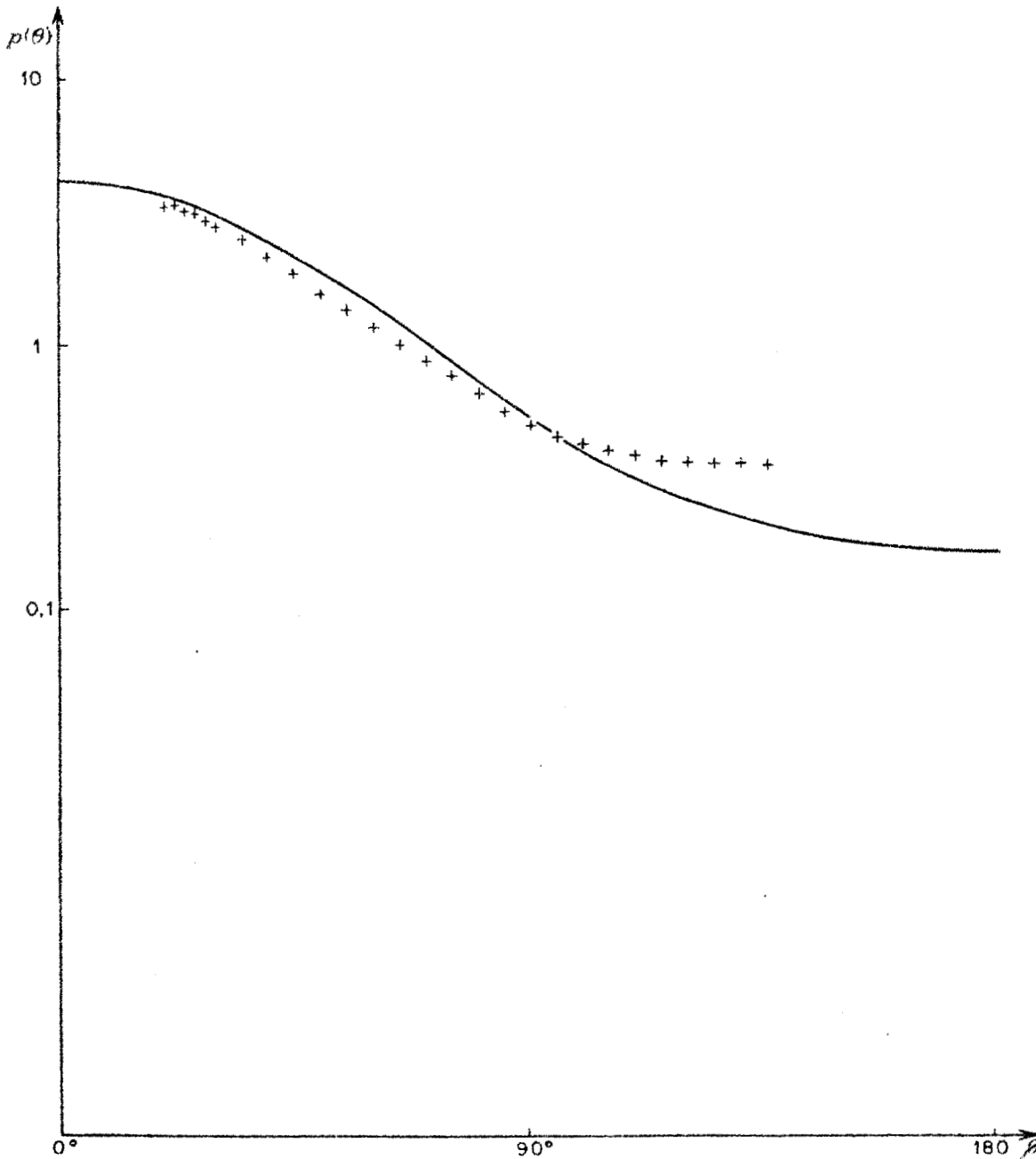
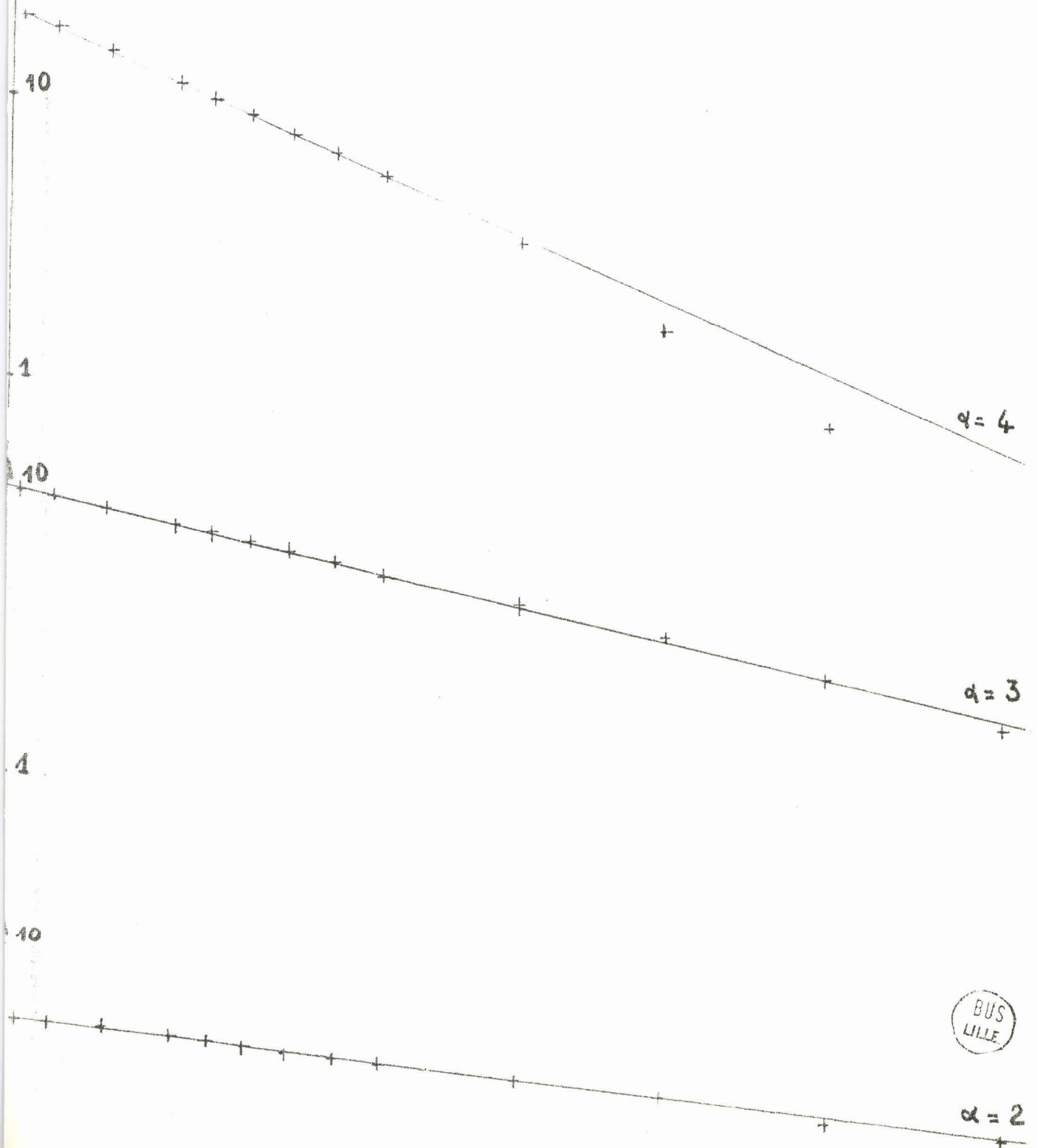


Figure (III.28)
 Afcolac F.2. Courbe Théorique par col. neg.
 et points expérimentaux.



$\log p(\theta)$

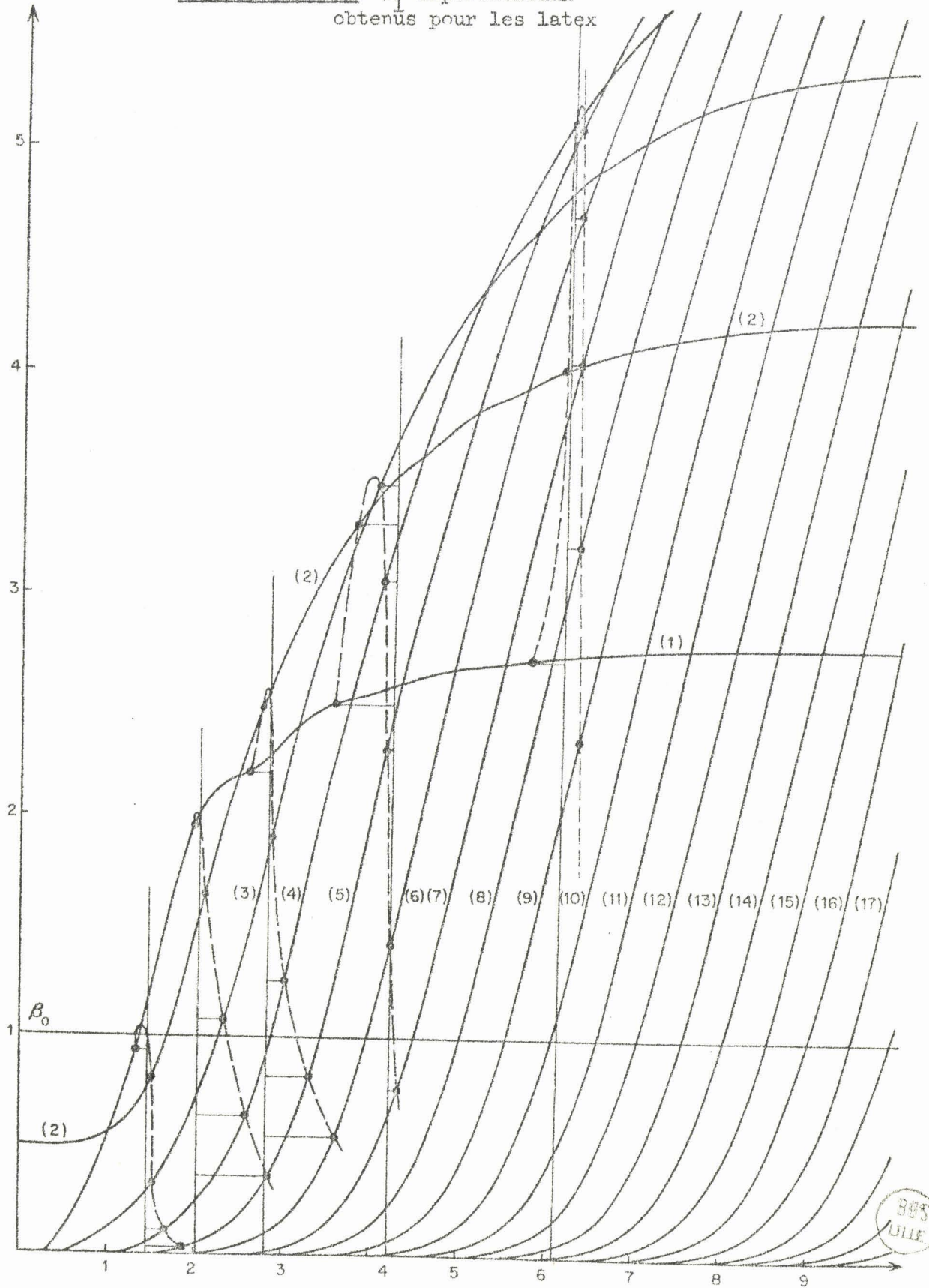
Figure (III.29)



BUS
LILLE

$\alpha = 2$

Figure (III.30): $\bar{\beta}_1$ expérimentaux
 obtenus pour les latex



BUS
LILLE

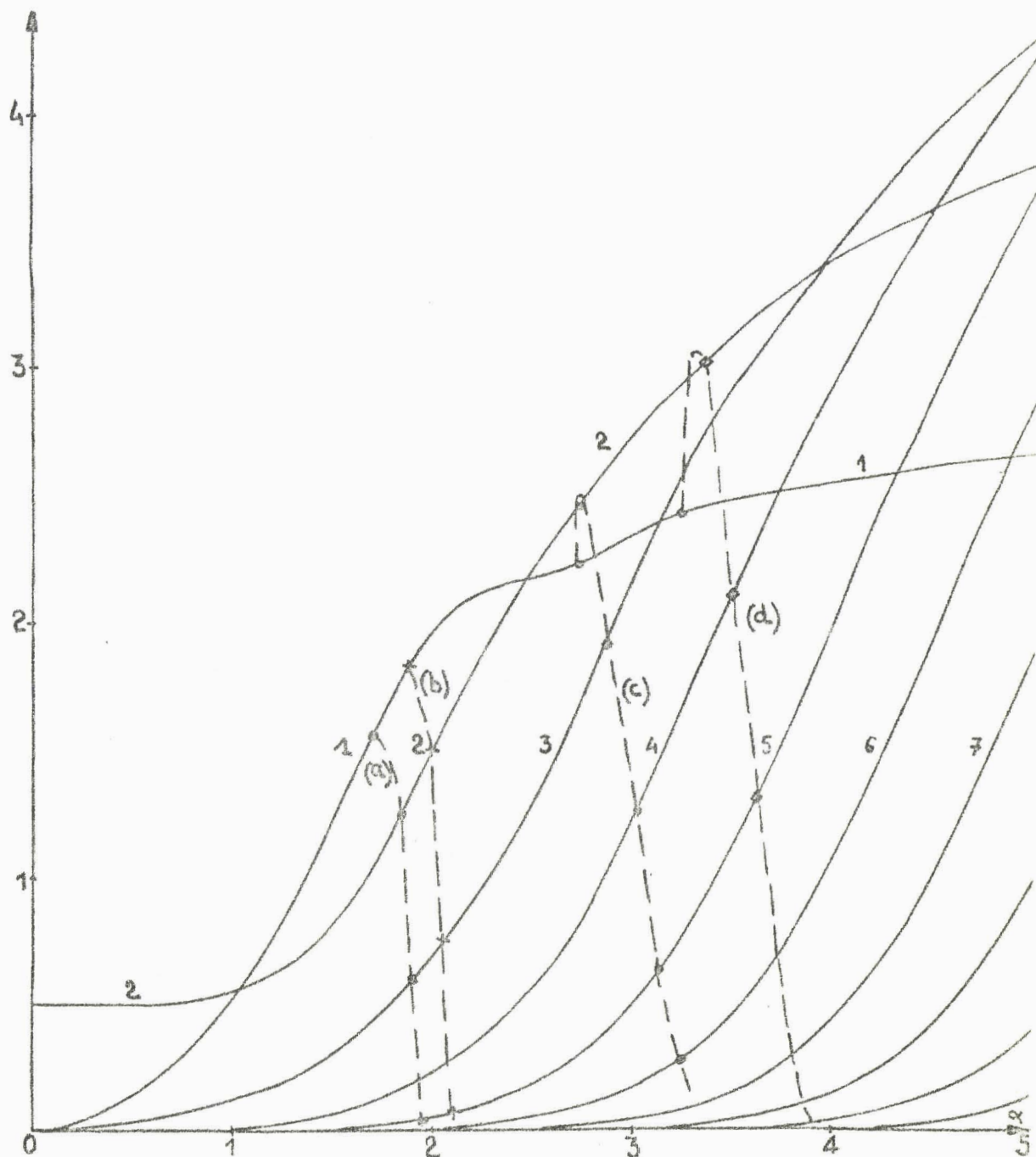


Figure (III.31):

Afcolac A 451 91 5 (A): courbe (b): β_1 th. col. neg;
 courbe (a): β_1 exp.

Afcolac A 451 91 5 (E): courbe (d): β_1 th. ombrage; (c) β_1 exp.



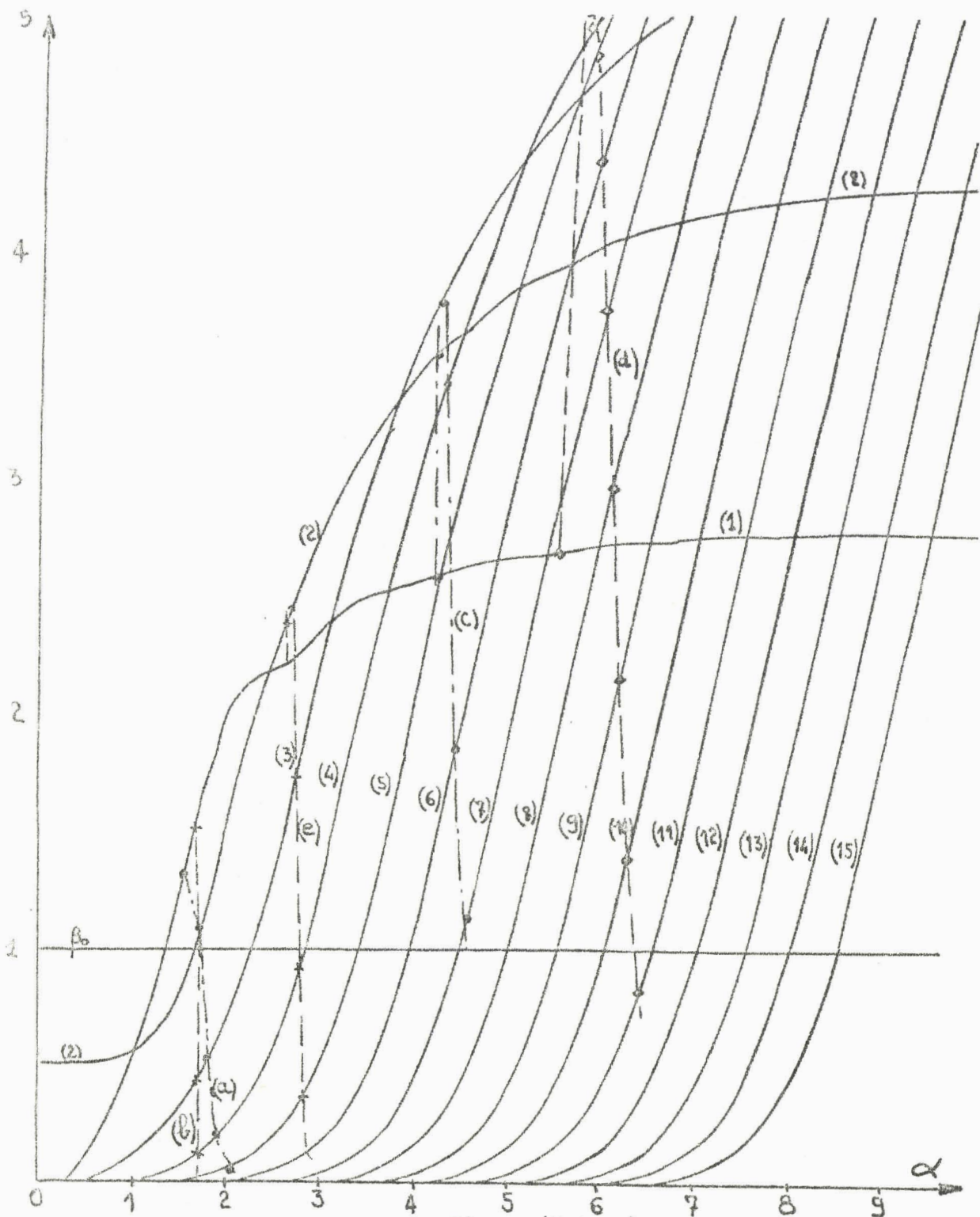
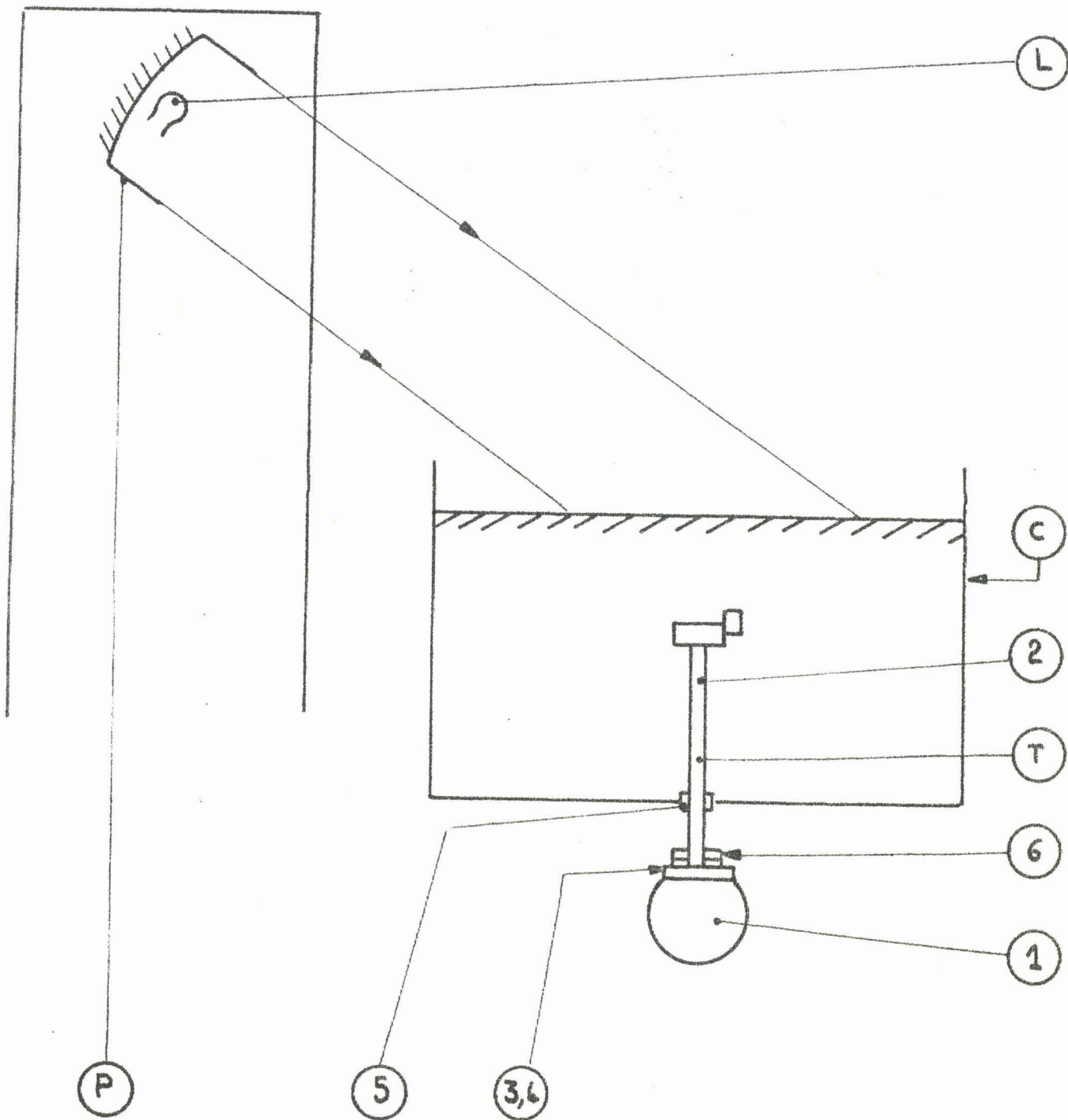


Figure (III.32):

Afcolac F.2.: courbe (b): β_1 th. col. neg.; courbe (a): $\bar{\beta}_1$ exp.

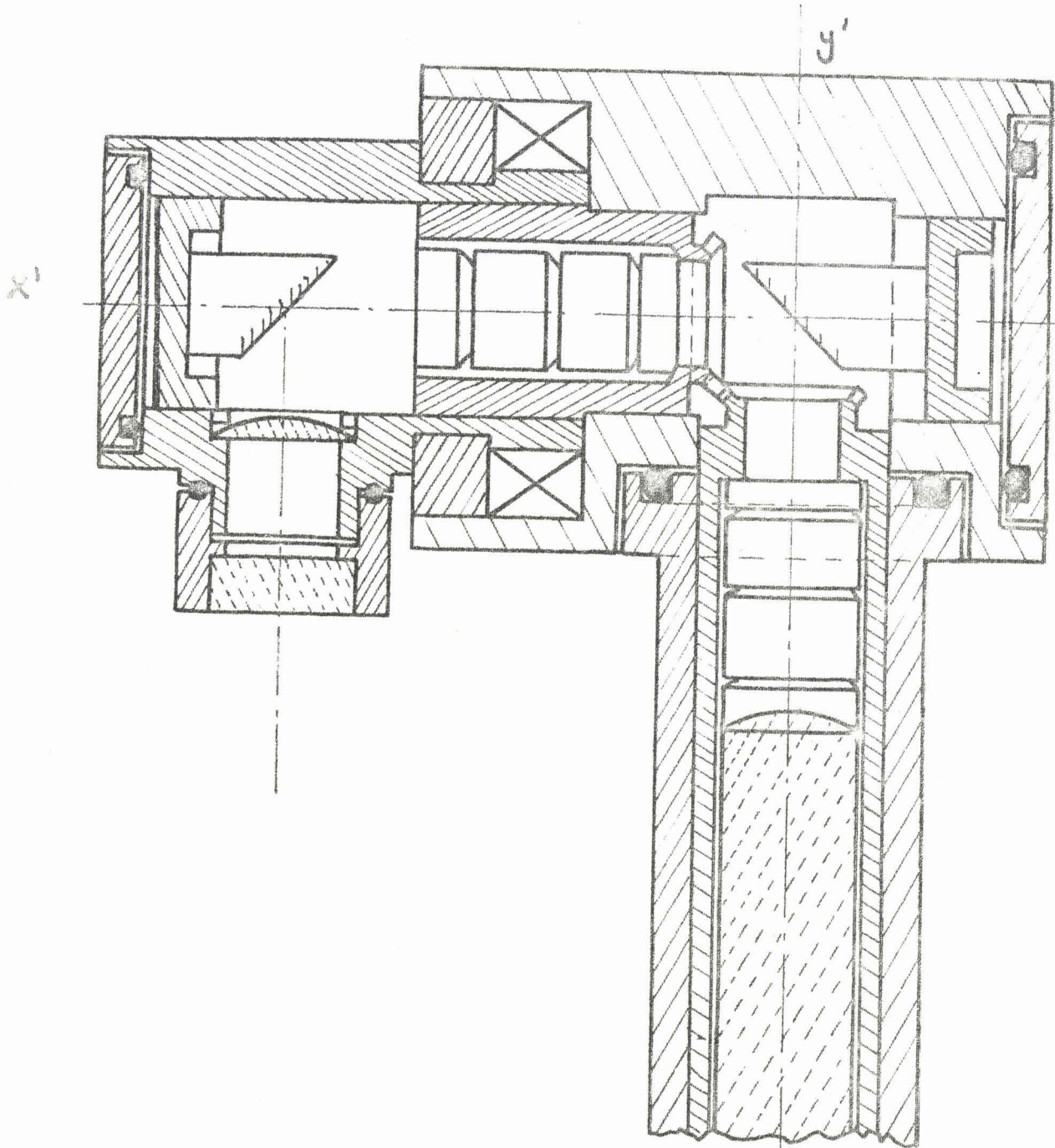
Arcolac A 451 91 5 (D): courbe (e): β_1 th. col. neg.; (d): β_1 th. ombrage





BUS
LILLE

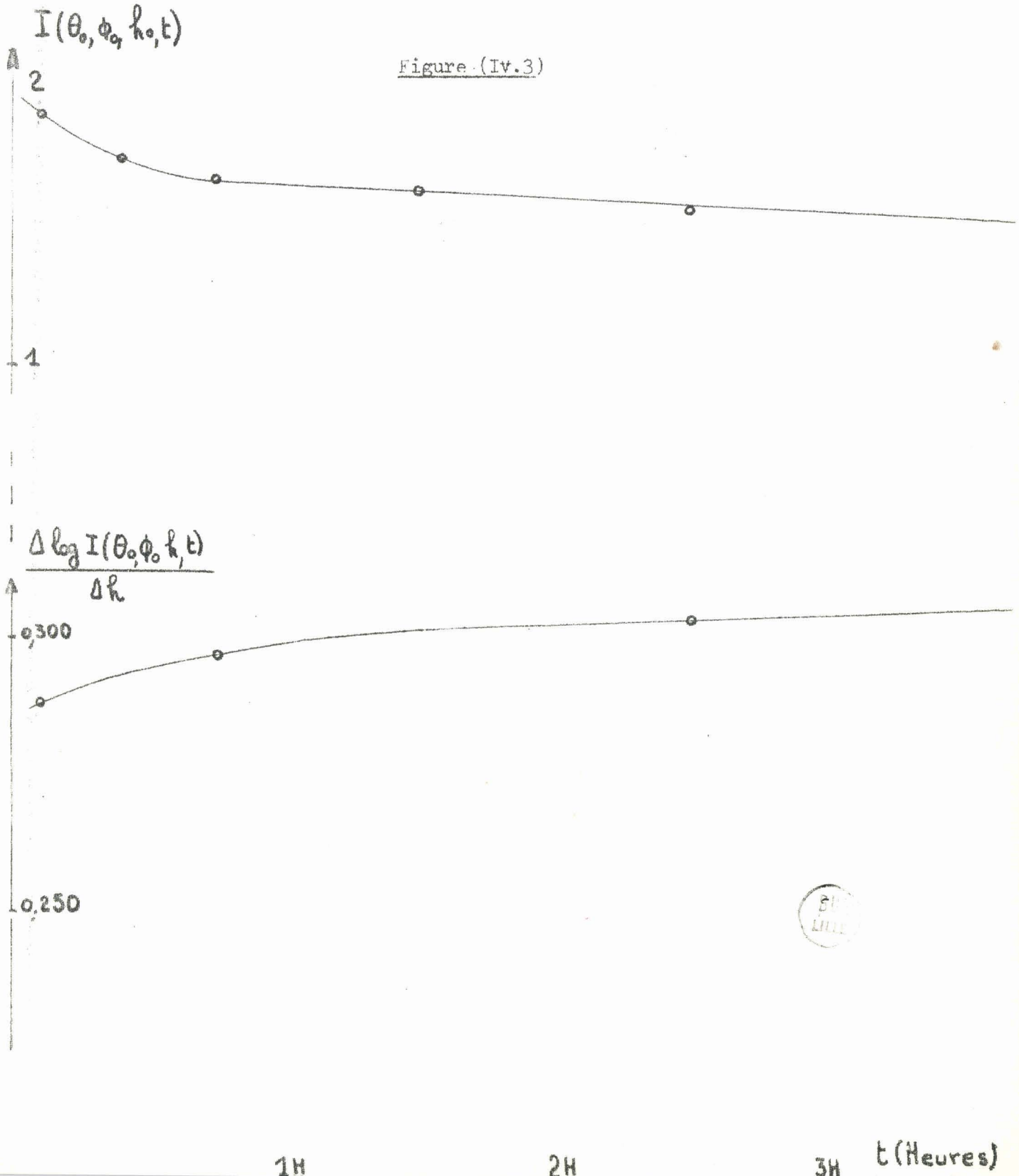
Figure (IV.1)



BUS
LILLE

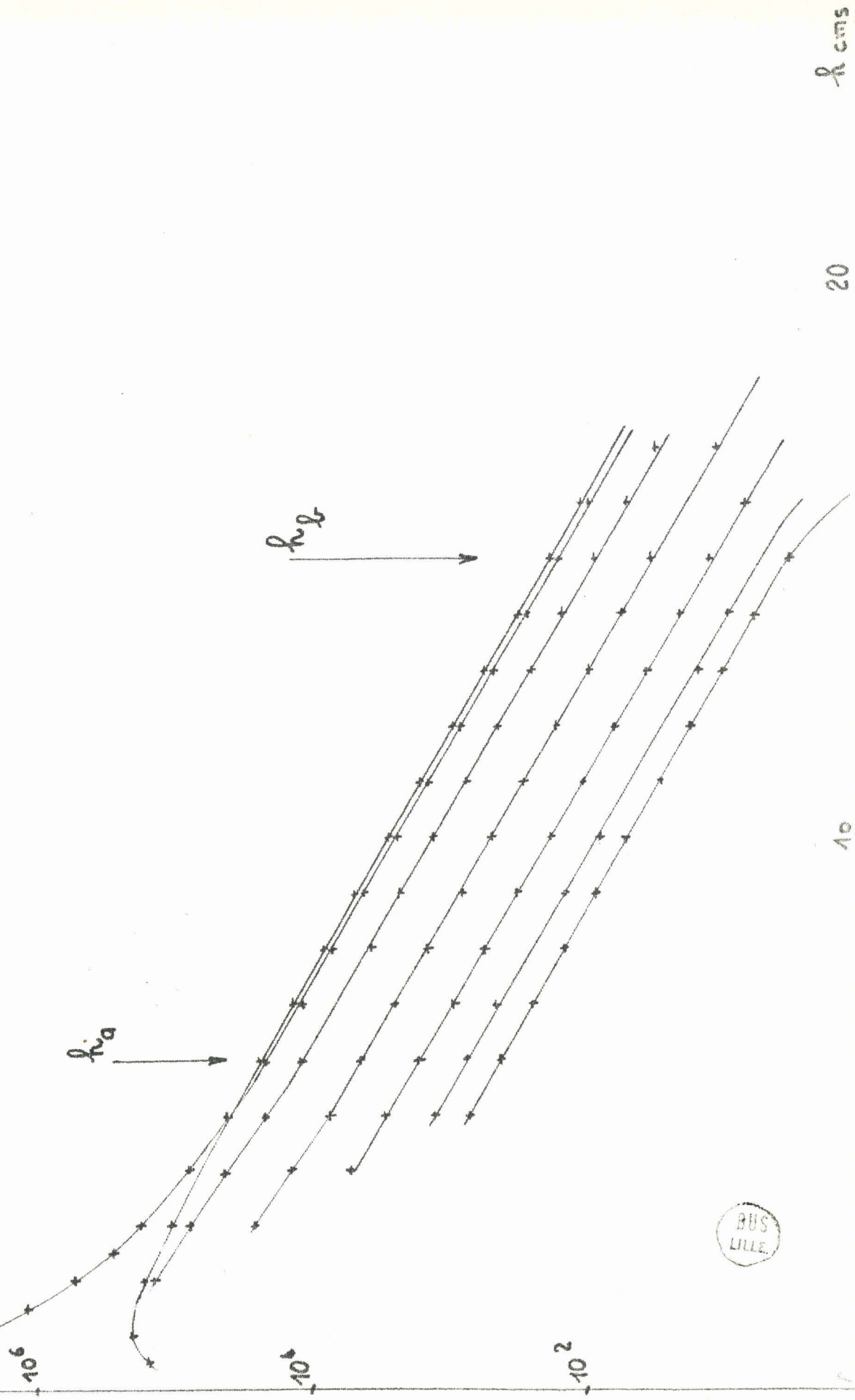
Figure (IV.2)

Figure (IV.3)



$\Delta \log I(\theta, R)$

Figure (IV.4)



R cms

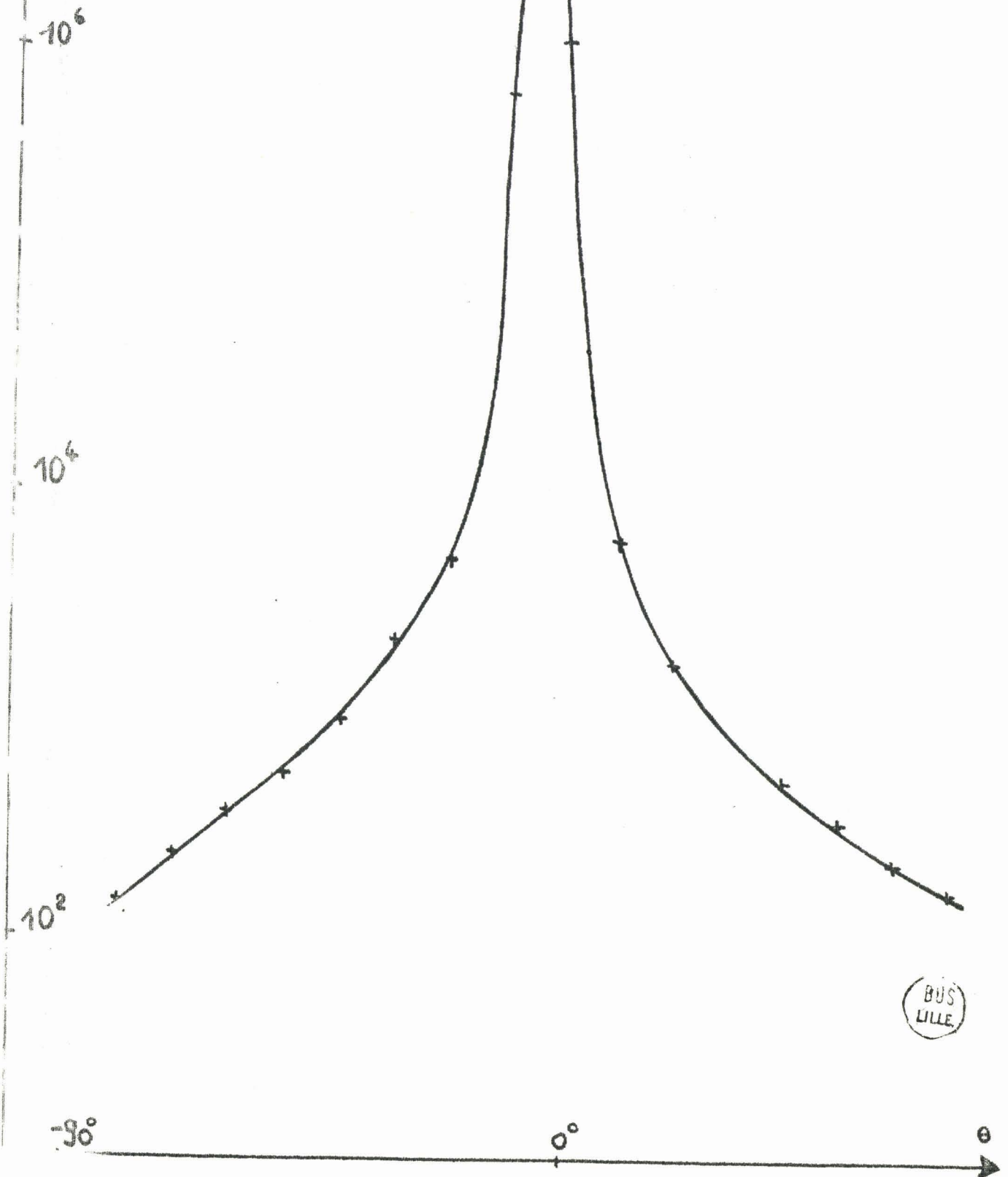
20

10

BUS
LILLE

$\log I_0(\theta)$

Figure (IV.6)



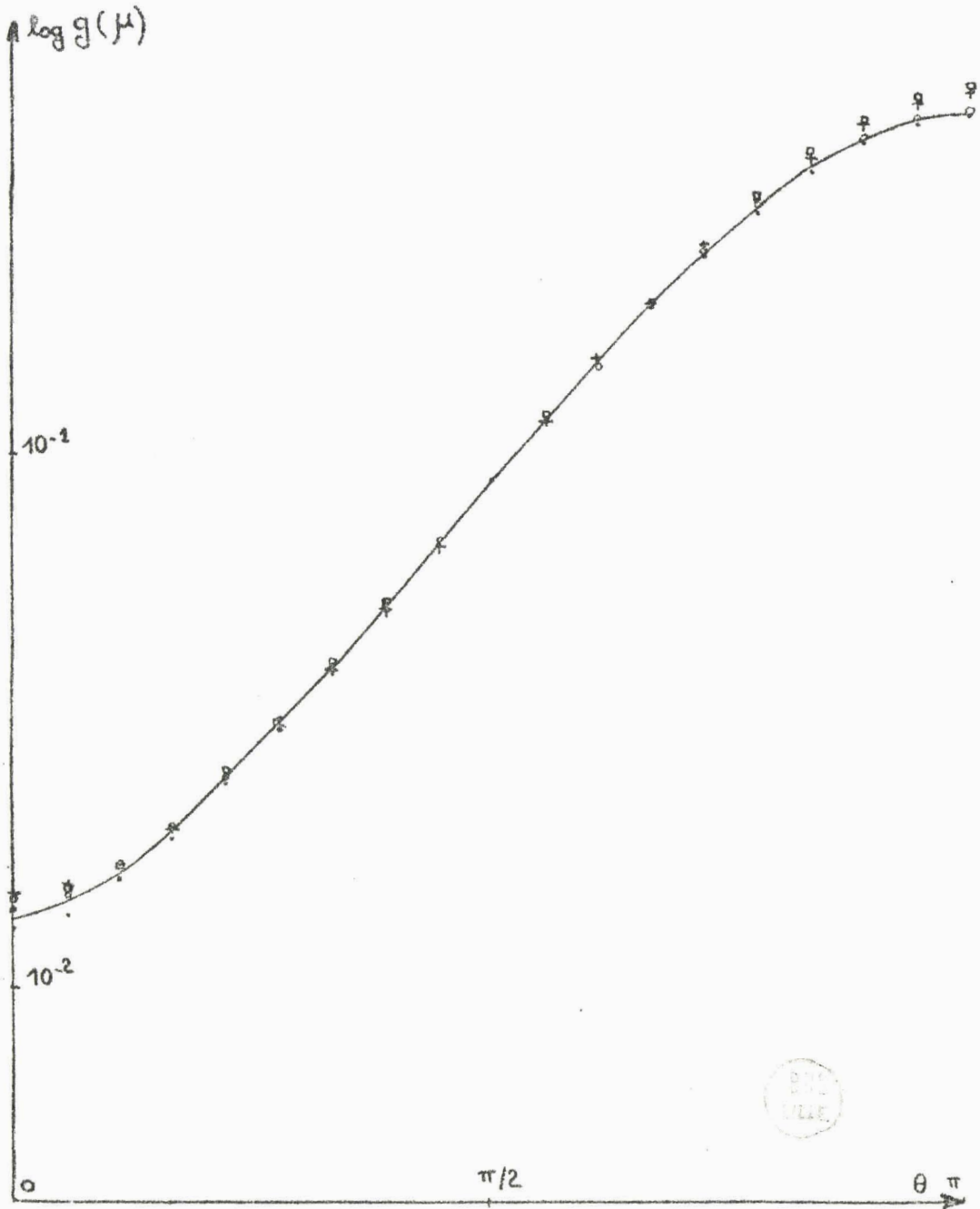
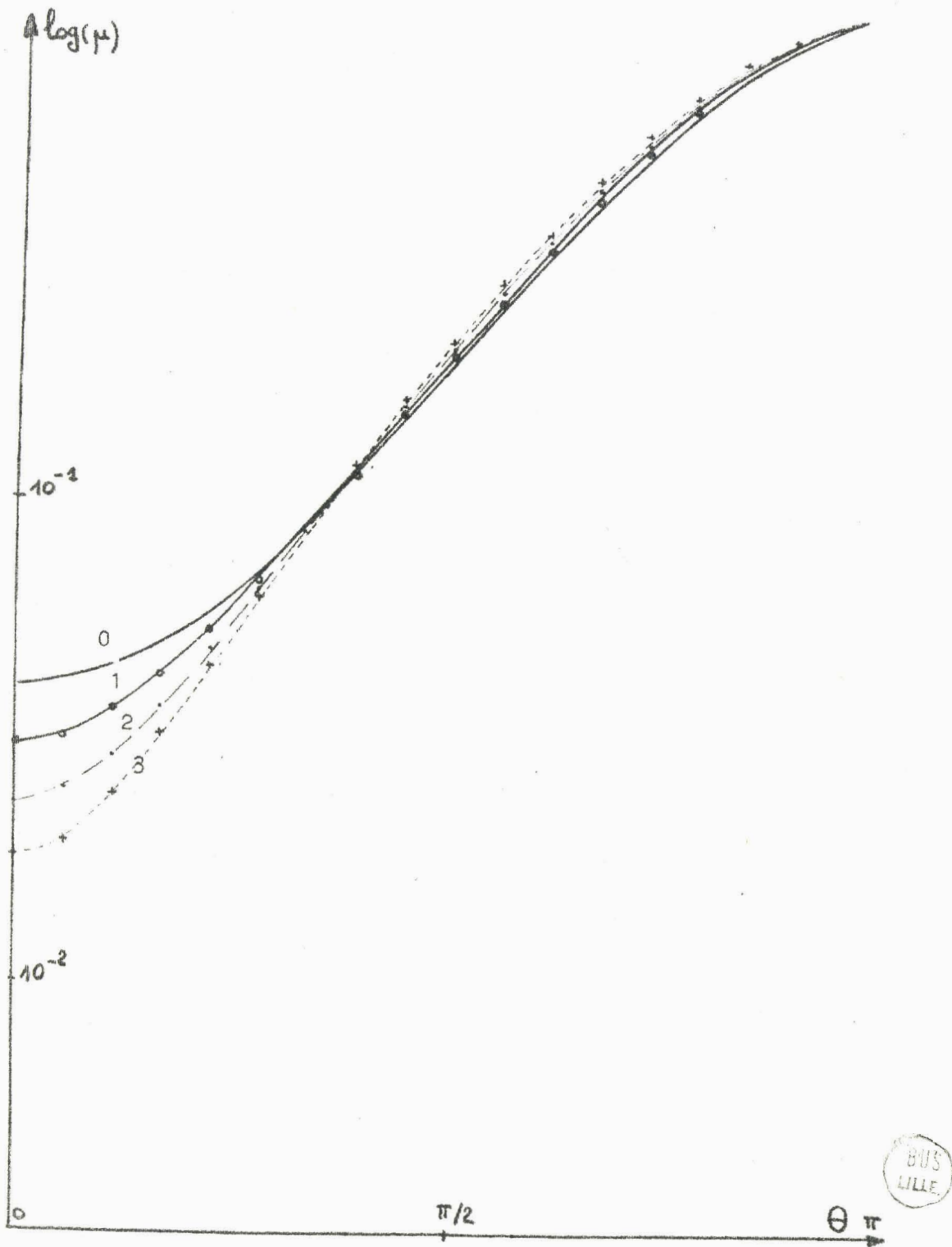
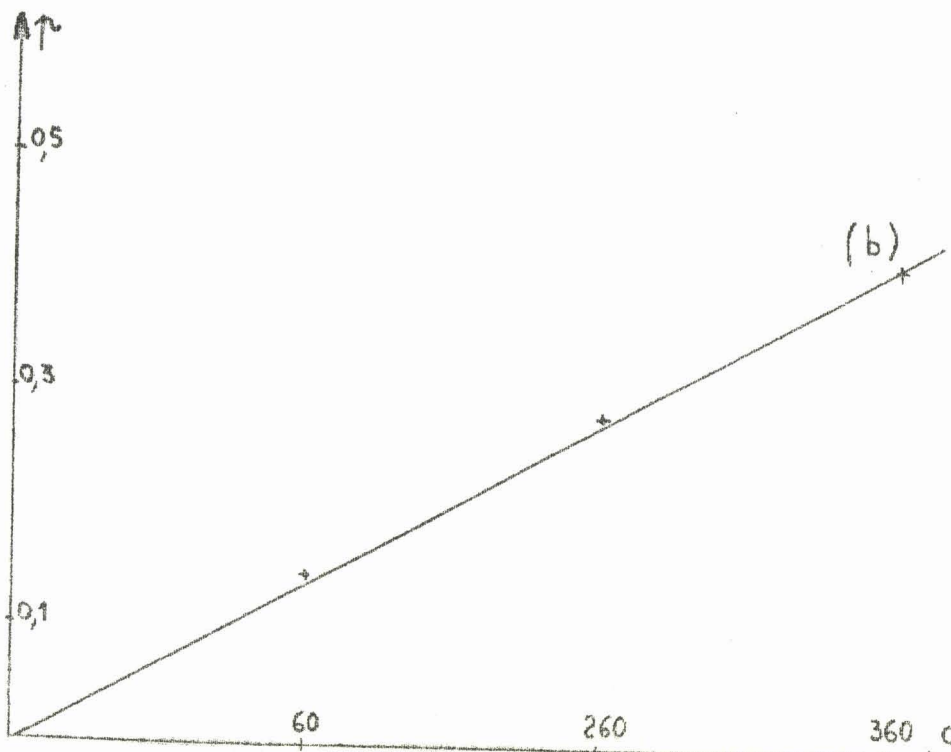
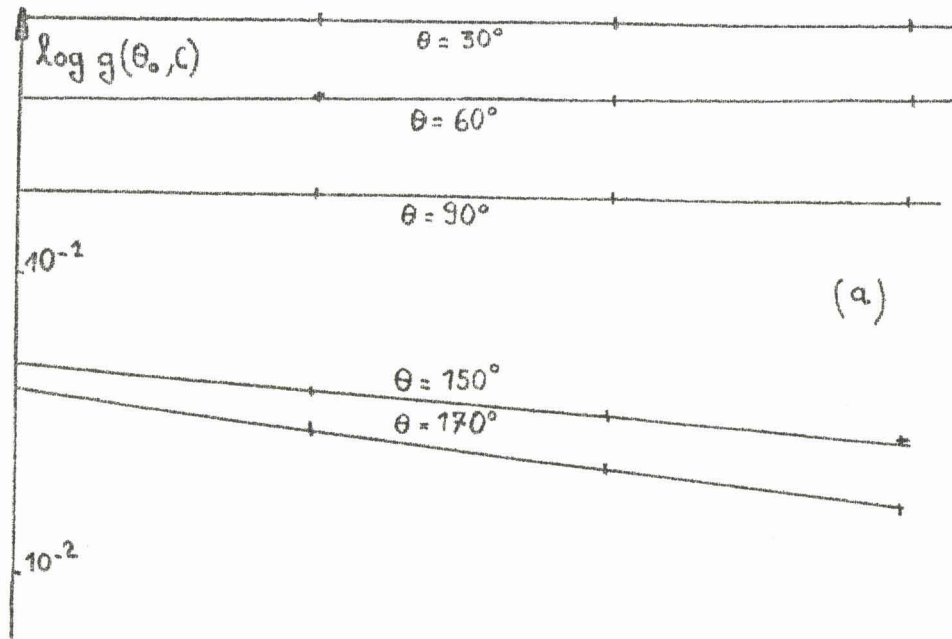


Figure (IV.7)



BUS
LILLE

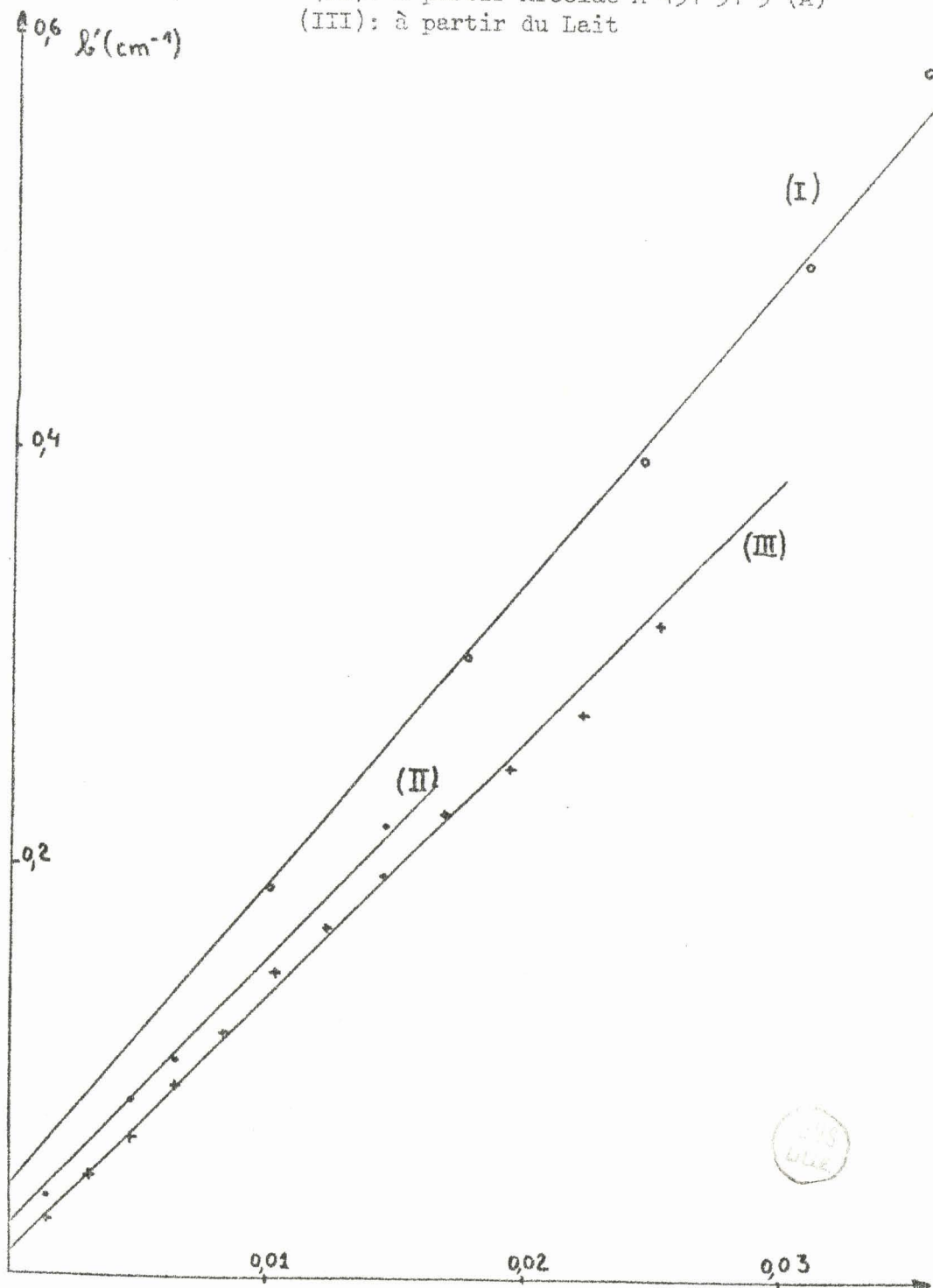
Figure (IV.9)
 $g(\mu)$ experimental pour concentrations 1,2,3C
 courbe 0: $g(\mu)$ extrapolé.



BUS
LILLE

Figure (IV.12)

- (I): à partir Afcolac A 451 91 5 (D)
- (II): à partir Afcolac A 451 91 5 (A)
- (III): à partir du Lait



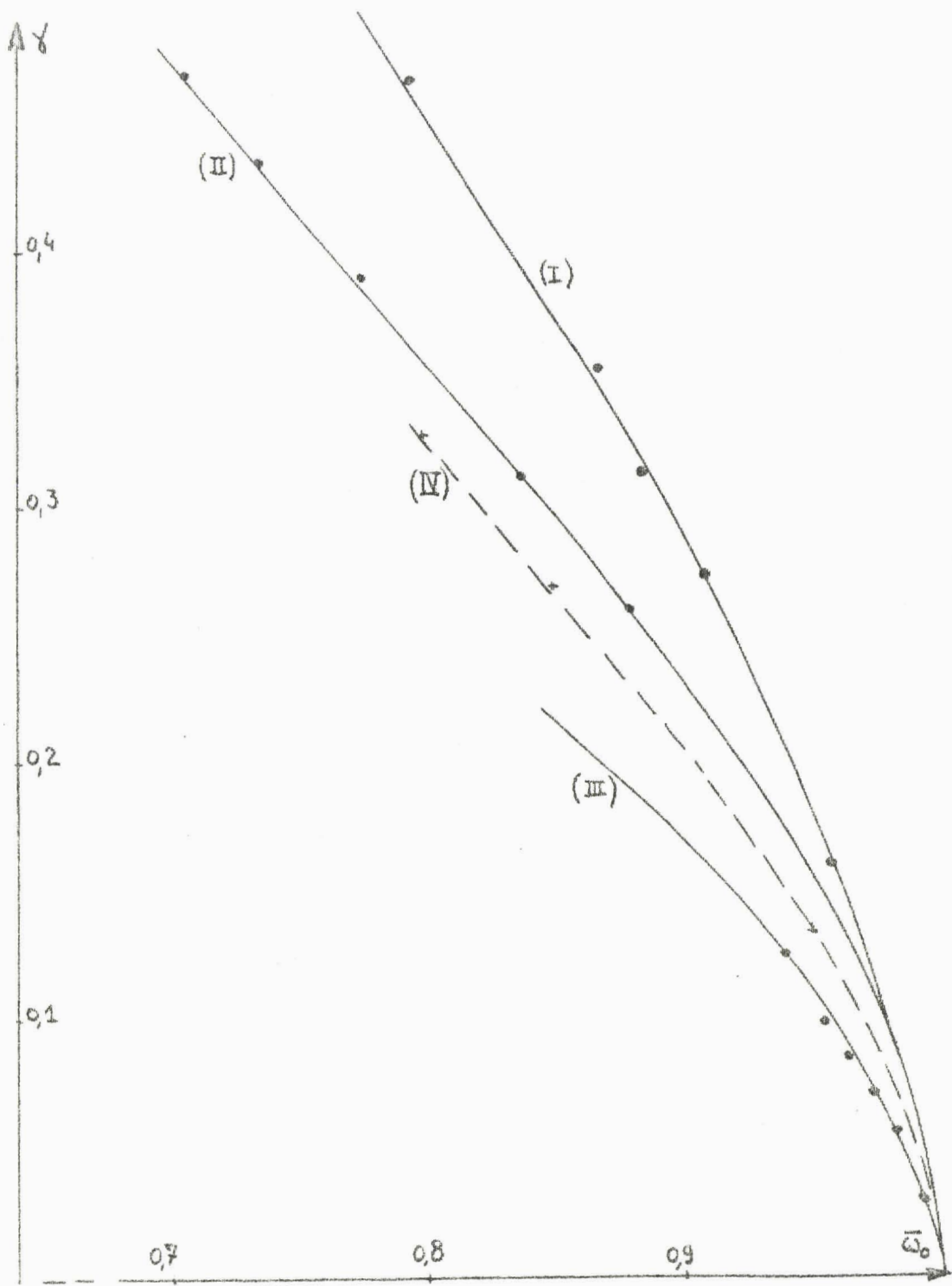
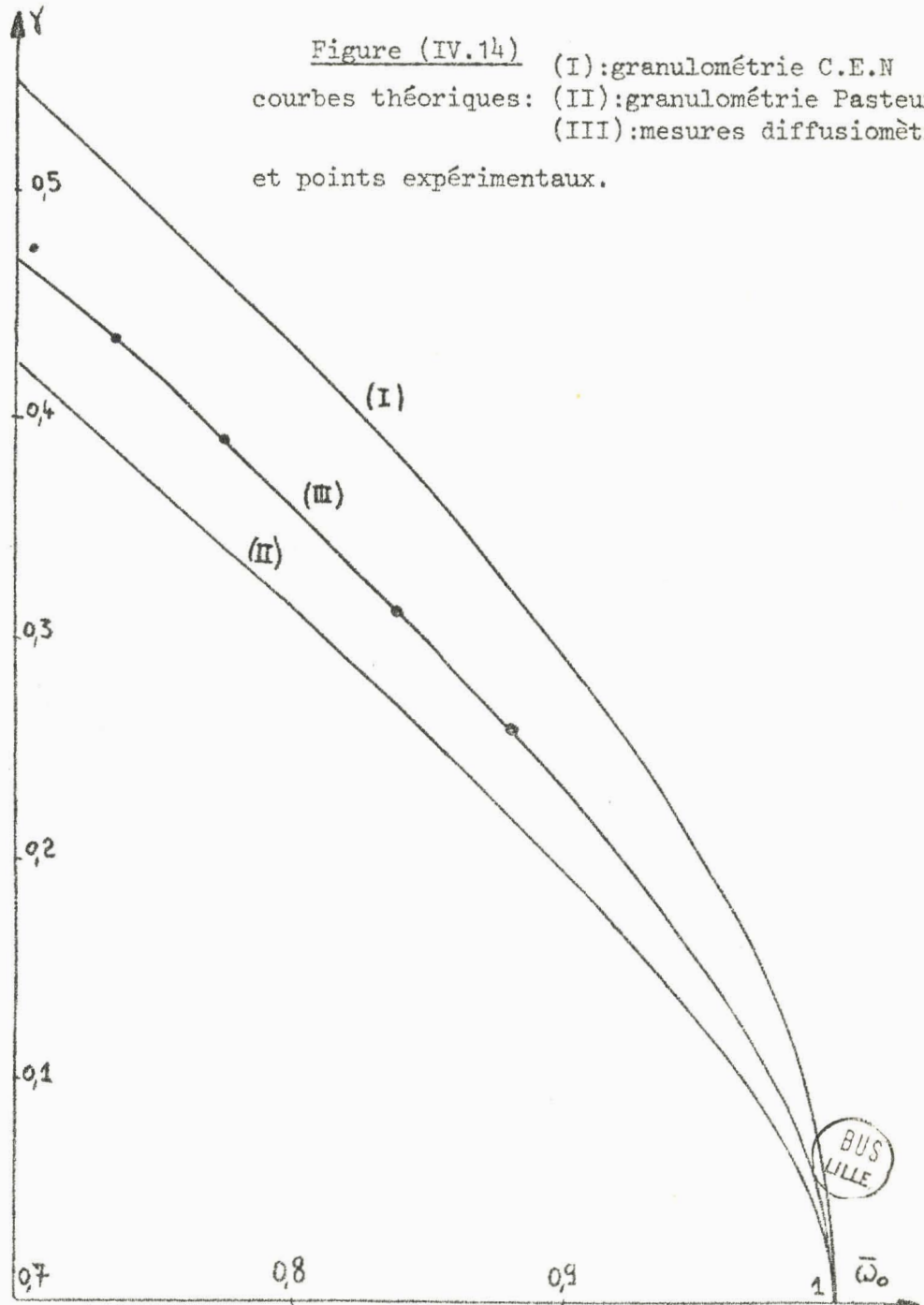


Figure (IV.13):

Afcolac A 451 91 5 (A): courbe théorique (I) et points exp.
 Afcolac A 451 91 5 (D): courbe théorique (II) et points exp.
 Afcolac A 451 01 7 : courbe th. (IV); points exp. (III).

Figure (IV.14) (I):granulométrie C.E.N
 courbes théoriques: (II):granulométrie Pasteur
 (III):mesures diffusiomètre
 et points expérimentaux.



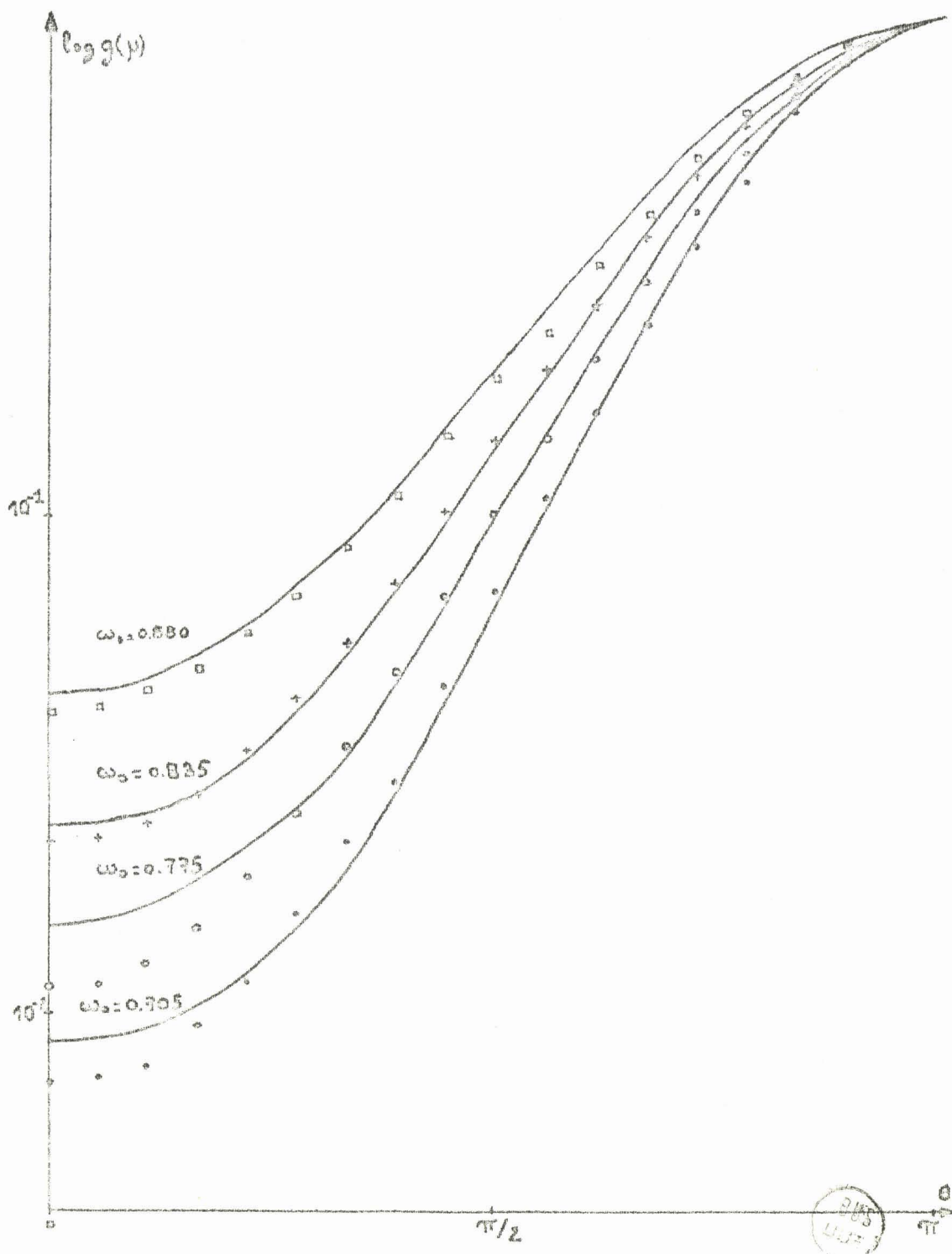


Figure (IV.15)

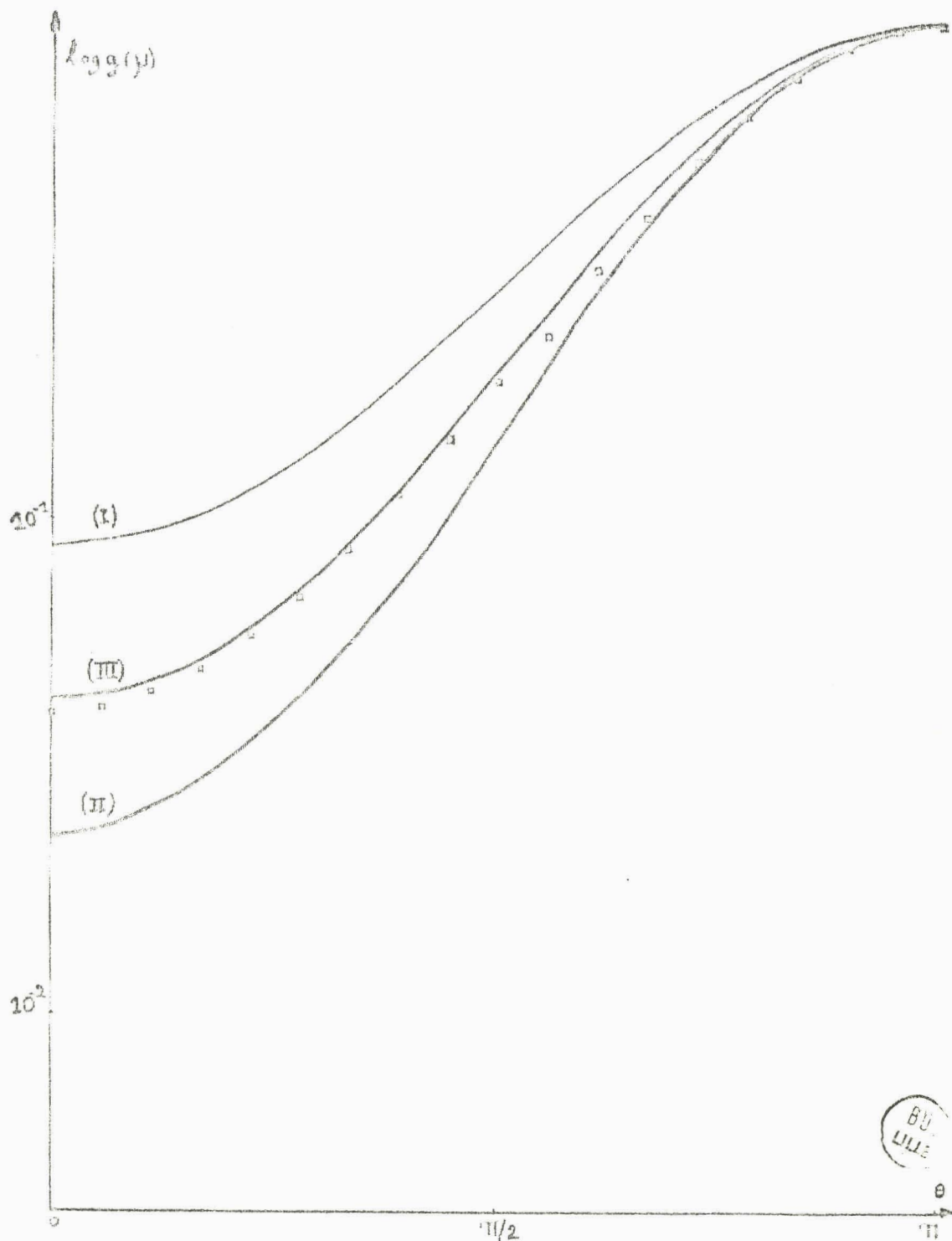


Figure (IV.16)

- (I): à partir granulométrie C.E.N.
- (II): à partir granulométrie Pasteur
- (III): à partir mesures diffusiomètre

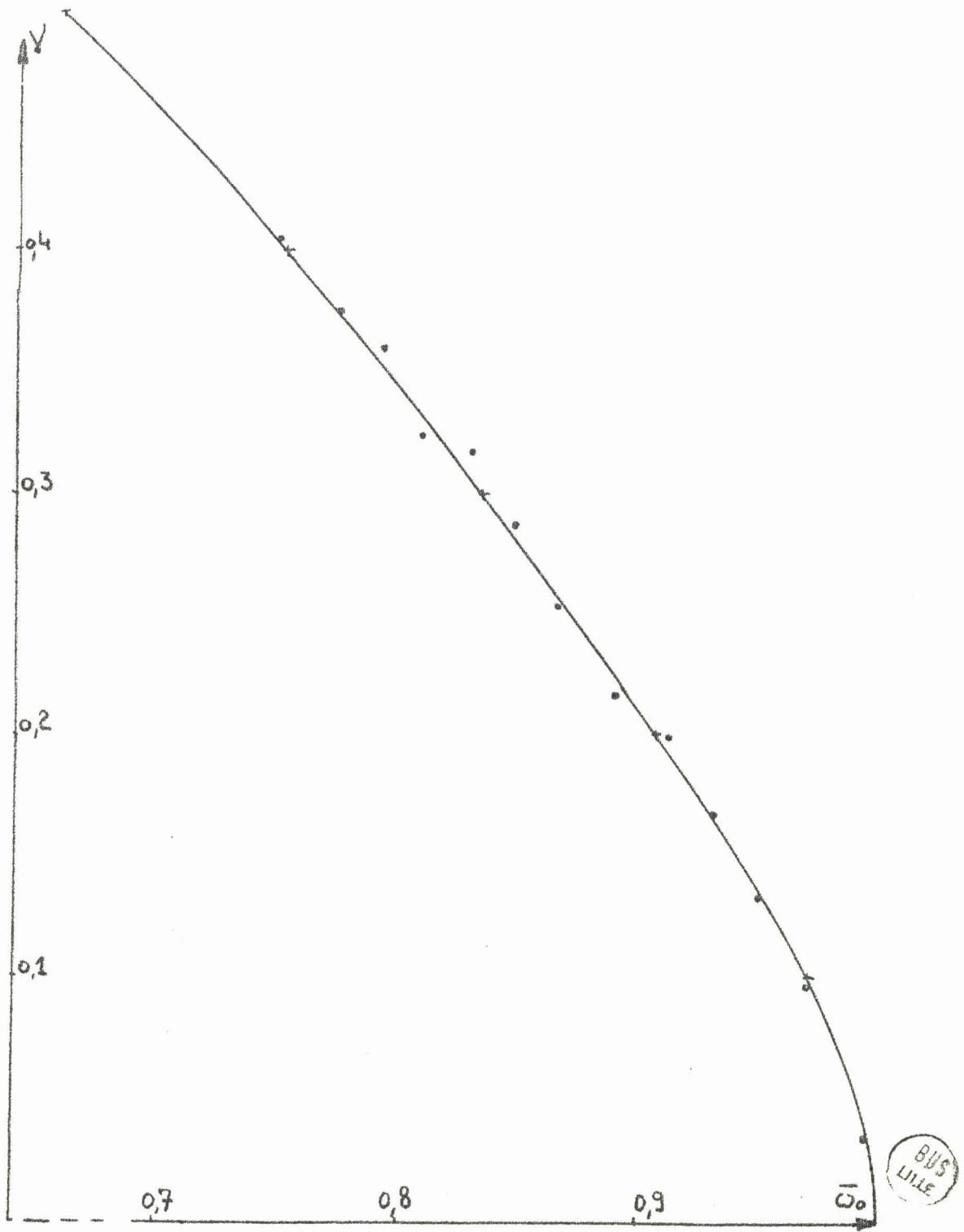


Figure (IV.17)

Bibliographie

- [1] V.A.Timofeeva, Dokl. Akad. Nauk SSSR, 113(1957) 556-559; Izv. Akad. Nauk SSSR, ser. Geofiz., (1957) 265-272.
G.V.Rosenberg, Opt. i Spekt., 5.(1958) 440-449.
- [2] S.Isacchi & J.Lenoble, Rev. Opt., 38.(1959) 217-237.
- [3] S.Chandrasekhar, Radiative Transfer, Clarendon Press, Oxford.(1950)
- [4] Davison, Neutron Transport Theory, Clarendon Press, Oxford.(1958)
- [5] I.Kuščer & M.Ribaric, Optica Acta, 6.(1959) 42-51.
- [6] J.Lenoble, C. R. Acad. Sci., 252.(1951) 3562
- [7] V.A.Ambartsumyan, Theoretical Astrophysics, Pergamon Press, London.(1958)
- [8] I.W.Busbridge, The Mathematics of Radiative Transfer, Cambridge University Press. (1960)
- [9] R.E.Bellman & R.E.Kalaba, Invariant Imbedding and Radiative Transfer in Slabs of Finite Thickness, American Elsevier Publishing Company, New York. (1963)
- [10] R.W.Preisendorfer, A Proof of the Asymptotic Radiance Hypothesis, Bureau of Ships, Contract NObS-72092, Index Number NS 714-100.(1958)
- [11] G.Mie, Ann. der Phys., 25.(1908). 377.
- [12] C.M.Chu & S.W.Churchill, J. opt. Soc. Amer., 45. (1955) 958; ibid., 47. (1957). 81.
- [13] J.C.Guillemot, Thèse, Fac. Sciences Lille, (1966).
- [14] G.G.Stokes, Trans. Camb. Philos. Soc., 9. (1852). 399.
- [15] I.M.Gel'fand & Z.Y.Sapiro, Amer. math. Soc. Tranlations, 2. (1956). 207.
- [16] M.Herman, C. R. Acad. Sci., 260. (1955). 468.
- [17] H.C.Van de Hulst, Light Scattering by Small Particles, Chapman & Hall, London. (1957).
- [18] R.Penndorf, Tables of Mie Scattering Functions for Spherical Particles, Geophysical Research Paper, No. 45. Cambridge Air Force Research Center.
W.J.Pangonis, W.Heller & A.W.Jacobson, Tables of Light Scattering Functions for Spherical Particles, Wayne University Press, Detroit.

- [19] Z.Sekera University of California at Los Angeles, Scientific Report No 5. Contract No AF 19.(122). 239.
- [20] A.N.Lowen, Tables of Scattering Functions for Spherical Particles, Natl. Bur. Standards (U.S), Appl. Math. Series 4. (1959). Washington.
- [21] L.E.Ashley & C.M.Cobb, J. Opt. Soc. Amer., 48. (1958). 261.
- [22] H.C.Van de Hulst & W.M.Irvine, Memoires Soc. R. Sc. Liège, 7. (1963).78.
- [23] R.W.Preisendorfer, Radiative Transfer On Discrete Spaces, Pergamon Press. (1955).
- [24] M.Herman & J.Lenoble, Rev. Opt., 43. (1964). 555.
- [25] G.Madeleine & C.Morel, Service Technique D'Etudes de Protection.(1965) Communication privée.
- [26] M.Benarie, Rev. Opt., 45. (1966). 55.
- [27] G.Dezelic & J.P.Kratochvil, J. Phys. Chem., 66. (1962). 1377.
- [28] J.P.Kratochvil, Analytical Chemistry, 36. (1964). 458.
- [29] J.B.Bateman, E.J.Weneck & D.C.Eshler, J. Colloid. Sci., 14. (1959). 308.
- [30] D.H.Woodward, Appl. Optics, 2. (1963). 1205.
- [31] G.Dezelic & J.P.Kratochvil, J. Colloid. Sci., 16. (1961). 561.
- [32] R.M.Tabibian & W.Heller, J. Colloid. Sci., 13. (1958).6.
- [33] M.Kerker, J. Polymer. Sci., 28. (1958). 429.
- [34] G.C.Sherman, F.S.Harris & F.L.Morse, Appl. Opt., 7. (1968).421.
- [35] F.T.Gucker & J.J.Egan, J. Colloid. Sci., 16. (1961). 68.
- [36] J.R.Hodkinson, PH. D. Thesis, University of London, London. (1962).
- [37] F.S.Harris, Particles Characteristics from Light Scattering Measurements International Association of Meteorology and Atmosphere Physics. (1957).
- [38] J.P.Kratochvil & C.Smart, J. Colloid. Sci., 20. (1965). 875.
- [39] A.Ivanoff & D.Bauer, C. R. Acad. Sci., 260. (1965). 631-634.
- [40] R.A.Fiscer, Statistical Methods for Research Workers, Oliver & Boyd London.
- [41] W.Heller & T.L.Pugh, J. Colloid. Sci., 12. (1957). 294.
- [42] F.S.Harris, G.C.Sherman & F.L.Morse, IEEE Transactions on Antennas and Propagation, Vol 15, Nbr 1,(1967).141.

- [43] I.M.Levin & A.P.Ivanov , Bull. (Izv.) Acad. Sci. USSR, Atmospheric and Oceanic Physics. (1964). 920-923.
- [44] V.A.Timofeeva, Dokl. Akad. Nauk USSR, 113. (1957). 556.
- [45] P.J.Wyatt, Phys. Rev., 127. (1962). 1837.
- [46] J.Marengo, Thèse, Faculté des Sciences de Lille.(1968).
- [47] C.Devaux, Thèse. En préparation.
-



SECONDE THESE

PROPOSITIONS DONNEES PAR LA FACULTE

Vent solaire. Interaction avec la
magnétosphère terrestre.
