

THESE

Présentée par

Alexandre Souto MARTINEZ

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE

L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER – GRENOBLE I

(arrêtés Ministériels du 05 Juillet 1984 et du 30 Mars 1992)

Spécialité: Physique

**STATISTIQUE DE POLARISATION
ET EFFET FARADAY EN
DIFFUSION MULTIPLE DE LA
LUMIERE**

Date de Soutenance : 1^{er} Juin 1993

Composition du Jury : **G. MARET** (Président)
M. FINK
J.M. LUCK
R. MAYNARD
T.M. NEIUWENHUIZEN
P.E. WOLF (Invité)

Thèse préparée au sein du:

*Laboratoire d'Expérimentation Numérique (U.J.F.) et
Centre de Recherche sur les Très Basses Températures (C.N.R.S.)*

1. The first part of the document is a list of the names of the members of the committee who have been appointed to the various sub-committees. The names are listed in alphabetical order of the last name.

A la mémoire des mes arrière-grands-parents
En particulier à Jerônimo Borghesan

REMERCIEMENTS

Je voudrais exprimer ma gratitude à Sylvio Goulart Rosa Jr. qui m'a beaucoup encouragé à venir à Grenoble.

Je remercie l'organisation brésilienne CAPES qui, à travers la bourse d'étude, m'a permis de réaliser ce travail.

Je tiens à remercier Jacques Flouquet pour m'avoir accepté au Centre de Recherche sur les Très Basses Températures, et Pierre Monceau qui dirige ce laboratoire actuellement, pour son appui.

Je remercie Jean Marc Luc et Theo Neiuwenhuizen d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail et Mathias Fink et Pierre-Etienne Wolf d'avoir accepté de participer au jury.

Georg Maret m'a fait beaucoup d'honneur en acceptant de présider le jury. Je profite de cette occasion pour lui exprimer ma gratitude pour les discussions et son constant intérêt tout le long de ce travail. Danke Georg !!!

J'exprime toute ma reconnaissance, gratitude et amitié à Roger Maynard, qui a dirigé ce travail avec beaucoup d'enthousiasme, détermination et compétence dans une atmosphère vachement sympa. Valeu Roger !!!

Je remercie également Dominique Bicout, Frank Erbacher, Anne Heiderich et Ralf Lenke pour être en phase lors des discussions sur diffusion, polarisation et effet Faraday. Ça roule !!!

Françoise Berthoud, Olivier Buisson, Alexis Dauchy et Michel Dupont ont enlevé des bogues de la thèse et m'ont aidé lors de sa mise en forme. Un grand MERCI.

Je voudrais témoigner ma reconnaissance à Eric Akkermans avec qui j'ai travaillé lors de mon arrivée.

Flavio Aristone, Michelle Peretto et Paulo Seleguin m'ont beaucoup aidé avec l'informatique et m'ont beaucoup encouragé. Merci gente !!!

Je voudrais aussi remercier les gens de la Maison des Magistères et du BT pour leur sympathie.

Un muito obrigado à Solange et Valmor Masteralo, à Silvia et Valmir Chitta, à Arlene et Gilberto Bernasconi, à Eleusa et Jean Paul Legeri, à Florence et Henri Rodenas, à João Carlos Martinez, à Gonzalo Glez, à Alex Lacerda et à Sonia Kandel pour leur amitié, leur accueil, leur aide et leur appui.

Finalement, dankeschön, grazie, muchas gracias, thanks a lot, merci beaucoup et valeu pessoal à tous ceux qui ont fait les "tous les jours" plus agréables ou qui m'ont souhaité bon courage.

TABLE DES MATIERES

RESUME	1
ABSTRACT	2
INTRODUCTION	3
CHAPITRE I	
STATISTIQUE DE LA POLARISATION	13
A. Diffusion de Mie, Intensités de Stokes et Représentation de Poincaré	14
B. Diffusion Multiple de Mie et Relations de Symétrie.....	21
Séquences Inverses.....	25
C. Distribution des Etats de Polarisation.....	27
D. Simulation de Monte Carlo	32
1. Modélisation.....	32
2. Simulation Numérique.....	32
3. Algorithme	34
4. Curiosités	36
5. Améliorations.....	36
E. Conclusion.....	36
F. Références	38
Polarizing Behavior of the Two-Dimensional Multiple Scattering of Light	39

CHAPITRE II

STATISTIQUE DES SEQUENCES DE DIFFUSION 49

A. Théorie de Transport (Equation de Boltzmann).....	49
1. Equation de Boltzmann à Une Dimension.	53
2. Approximation de Diffusion.....	55
B. Marche Aléatoire	56
1. Premier Moment.....	56
a. Longueur de persistance.....	57
b. Libre parcours moyen de transport.....	58
2. Deuxième Moment	58
3. Densité de Particules	59
a. Rayon de giration.....	59
b. Transport	59
C. Comparaison entre la Théorie de Transport et la Marche Aléatoire.....	60
Approximation de "Champ Moyen"	61
D. Statistique des Séquences de Diffusion dans une Tranche	63
1. Réflexion.....	65
2. Transmission	66
3. Coefficients de transmission et réflexion	67
E. Conclusion.....	68
F. Références	69

CHAPITRE III

POLARIZATION STATISTICS IN MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT: A MONTE CARLO APPROACH 71

A. Introduction.....	72
B. Single Mie Scattering, Stokes Intensities and Poincaré Representation.....	74
C. Multiple Mie Scattering.....	76
D. Monte Carlo Simulation.....	81
E. Polarization Memory: Results and Discussion.....	82
1. Transmission.....	82
2. Reflection.....	85
3. Poincaré Sphere.....	86
F. Conclusion.....	88

CHAPITRE IV

FARADAY EFFECT IN THE MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT: A MONTE CARLO SIMULATION 91

FARADAY EFFECT AND MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT..... 97

Introduction.....	98
I. General Results on the Faraday Effect in Multiple Scattering.....	100
1. Single Scattering.....	102
2. Multiple Scattering.....	104
3. Enhancement Factor.....	107
4. The Invariance of the Opposite Helicity Channel.....	108

5. Rotatory Power	110
6. Intensity Correlation Function	111
II. One Dimensional Anisotropic Multiple Mie Scattering	112
III. Three-Dimensional Rayleigh Multiple Scattering	114
1. The Simple Stochastic Model	114
a. Transmission	114
b. Reflection	115
2. Rayleigh Scatterers	116
a. Stokes intensities and polarization degree	117
b. Destruction of the backscattering enhancement	121
c. Correlation function	124
IV. Monte Carlo Simulation	127
1. Algorithm	127
2. Results	128
a. Reflection	128
b. Transmission	130
V. Discussion and Conclusion	132

CONCLUSION	143
-------------------------	------------

RESUME

Le problème de la propagation des ondes en milieu aléatoire est posé par de nombreuses expériences telles que la diffusion de la lumière par des milieux turbides, des ondes sonores dans les substances hétérogènes, etc. L'analyse traditionnelle suppose que les ondes sont des champs scalaires et que les diffuseurs sont ponctuels.

A la différence de la plupart des théories antérieures, nous avons voulu étudier des situations plus réalistes. La nature vectorielle du champ électromagnétique et l'anisotropie de diffusion sont explicitement prises en compte. Pour réaliser cet objectif, nous avons écrit et mis au point un code de simulation numérique utilisant la méthode de Monte Carlo. Les séquences de diffusion sont engendrées à partir de la loi de phase de Mie.

Nous nous sommes intéressés tout d'abord aux mécanismes de dépolarisation de la lumière en régime de diffusion multiple. Des lois de distribution des états de polarisation ont été établies analytiquement en fonction du degré de polarisation. Ce paramètre dépend de l'anisotropie de la diffusion. Pour les régimes de diffusion de Rayleigh (ponctuelle) et de Mie, nous avons obtenu des variations différentes des degrés de polarisation pour la lumière incidente polarisée linéairement et circulairement. Dans le cas de Mie, ces résultats ne peuvent être obtenus que grâce à la simulation de Monte Carlo.

Une discussion approfondie de la pertinence des différentes approches du problème de la diffusion multiple - équation de diffusion, équation de Boltzmann, marche au hasard et méthode de Monte Carlo - est développée. Nous avons trouvé que l'approche de Boltzmann peut être comprise comme une approximation de champ moyen du problème de la marche au hasard. En fait, la constante de diffusion obtenue pour la marche aléatoire est plus petite que celle obtenue par l'approximation de diffusion.

Le gros succès de la diffusion multiple a été l'observation de la localisation faible de la lumière à travers le cône de rétrodiffusion. Les interférences de phase qui donnent lieu au cône peuvent être contrôlées par l'application d'un champ magnétique. Ce champ fait tourner les états de polarisation entre deux collisions successives dans un matériau optiquement magnéto-actif. C'est l'effet Faraday qui brise la symétrie par renversement du temps et qui peut atténuer le cône de rétrodiffusion. Nous étudions analytiquement et numériquement cet effet en diffusion multiple.

La prise en compte de la nature vectorielle des ondes lumineuses en diffusion multiple conduit à définir de nouvelles longueurs caractéristiques qui enrichissent le concept de libre parcours moyen de transport introduit dans le contexte de la diffusion multiple scalaire.

Mots clés: Diffusion Multiple de la Lumière, Polarisation de la Lumière, Anisotropie de Diffusion, Diffusion de Mie, Simulation de Monte Carlo, Effet Faraday, Equation de Boltzmann, Marche Aléatoire, Localisation.

ABSTRACT

Wave propagation in random media is a problem which arises in many experiments such as the diffusion of light by a turbid medium, propagation of sound waves in heterogeneous substances, etc. The traditional analysis assumes scalar fields and point-like scatterers.

Contrary to most of the preceding theories, we want to study more realistic situations. The vectorial nature of the electric field as well as the scattering anisotropy are taken into account explicitly. To achieve this objectif, we have written and implemented a numerical simulation code using the Monte Carlo algorithm. The scattering sequences are generated using the Mie phase function.

We have been interested in the depolarization mechanisms in the multiple scattering regime. The distributions of the polarization states have been obtained analytically as a function of the polarization degree. This parameter depends on scattering anisotropy. For the Rayleigh (point-like) and Mie scattering regime, we have found different behaviors of the polarization degree as a function of the incident light polarization (linear and circular). For the Mie regime, these results can only be obtained by the Monte Carlo simulation.

A thorough discussion about the pertinence of the different approaches to the multiple scattering problem - diffusion equation, Boltzmann equation, random walk and Monte Carlo method - is developed. We have found that the Boltzmann approach can be understood as an approximation of the random walk problem. In fact, the diffusion constant obtained by the random walk problem is smaller than the one obtained by the diffusion approximation.

The great success of the multiple scattering theory has been the observation of the weak localization of light through the enhanced backscattering cone. The phase interference which gives rise to the backscattering cone can be controlled by application of a magnetic field. This field makes the polarization states to rotate between two successive scatterings in an optically magneto-active medium. This is the Faraday effect which breaks the time reversal symmetry of the reverse sequence and may attenuate the backscattering cone. We have studied this effect analytically and numerically in the multiple scattering regime.

In the multiple scattering, the consideration of the vectorial nature of light leads to the definition of new characteristic lengths enriching the concept of transport mean free path introduced in the context of scalar multiple scattering.

Key Words: Multiple Scattering of Light, Light Polarization, Anisotropic Scattering, Mie Scattering, Monte Carlo Simulation, Faraday Effect, Boltzmann Equation, Random Walk, Localization.

INTRODUCTION

Le problème de la diffusion de la lumière se pose dès que nous observons le ciel: Lors d'une pluie, s'il y a du soleil, il peut y avoir un arc en ciel. La première théorie pour expliquer les couleurs de celui-ci a été développée par Descartes (1637), qui utilise la diffusion simple et l'optique géométrique.¹ Les travaux sur l'arc en ciel ont progressé jusqu'à la théorie, beaucoup plus complète, de Nussenzveig² en 1977. Par contre, la couleur bleue du ciel et celles jaune, orange et rouge d'un coucher de soleil ne peuvent être expliquées que par l'optique ondulatoire, en utilisant le rayonnement dipolaire: c'est la théorie de la diffusion de Rayleigh.³ Mais dans le ciel il y a aussi des nuages et l'étude de la propagation de la lumière à travers ceux-ci remonte au début du siècle grâce aux travaux de Schuster et Schwarzschild.⁴

La théorie du transfert radiatif, développée par S. Chandrasekhar,⁵ a fait considérablement progresser notre compréhension de la propagation de la lumière dans les milieux désordonnés, les nuages par exemple. Cette théorie s'appuie sur l'adaptation de l'équation de Boltzmann au problème du transport de l'énergie lumineuse. Une analogie très étroite peut être faite avec le problème de diffusion du gaz de Lorentz.⁶ Cette approche traditionnelle est encore largement utilisée dans les travaux de caractérisation des nuages⁷ ou dans les études sur les nuages de poussière interstellaires.⁸ En général, l'approche analytique ne permet pas de résoudre ces équations. Elles sont traitées numériquement.

Une nouvelle et très puissante approche du problème de la diffusion multiple des ondes dans les milieux désordonnés a été développée pour les électrons dans les métaux, ou dans les semi-conducteurs. Dans ces systèmes, le désordre provient des fluctuations du potentiel électrique occasionnées par des défauts structuraux ou des impuretés. Pour les électrons, un problème très ancien, et encore mal compris jusqu'à présent, est la transition métal-isolant à très basse température. Une première solution a été donnée par P.W. Anderson⁹ en 1958. Selon sa théorie, quand le désordre du système devient plus grand qu'une valeur critique, la constante de diffusion des électrons tend vers zéro. Nous remarquons que la cohérence de phase des fonctions d'ondes électroniques n'est pas détruite si les diffusions sont élastiques, comme il a été signalé par Landauer¹⁰ en 1970, qui met en cause la validité de la loi d'Ohm pour l'association en série de barrières quantiques distribuées aléatoirement le long d'une chaîne.

Pour expliquer l'absence de diffusion à très basse température, tous les mécanismes proposés invoquent des interactions anormales: piégeage des électrons par les phonons,¹¹

interactions électron-électron,¹² création d'excitons,¹³ structure de bande anormale,¹⁴ etc. Comme l'a signalé Akkermans,¹⁵ même si ces mécanismes existent, ils ne donnent pas une explication universelle aux anomalies observées expérimentalement. Parmi les nombreuses approches existantes pour traiter des propriétés des conducteurs désordonnés, la théorie de la localisation d'Anderson et les études de Landauer contiennent des idées audacieuses. Elles constituent une nouvelle vision du problème en ce sens qu'elles mettent en lumière la nécessité de traiter ces questions d'un point de vue statistique et non pas en se contentant de valeurs moyennes, qui souvent ne rendent pas bien compte du phénomène.

En 1976, la théorie d'échelle de la "bande des quatre"¹⁶ constitue une étape importante dans la compréhension du problème de la localisation des électrons. Dans cette théorie, il devient clair que la transition d'Anderson est une transition de phase du deuxième ordre occasionnée par l'interférence quantique des ondes électroniques, qui réduit la constante de diffusion jusqu'au moment où elle s'annule quand le critère de Ioffe-Regel¹⁷ est satisfait, c'est-à-dire, $kl \approx 1$, où k est le vecteur d'onde et l est le libre parcours moyen élastique. Cette interférence entre les ondes existe même dans la région de faible désordre ($kl \gg 1$). Dans cette région, la réduction de la constante de diffusion est appelée localisation faible. Les effets de la localisation faible pour les électrons ont été analysés par Altshuler, Aronov et Spivak,¹⁸ qui proposent de mesurer la magnétorésistance (l'effet Bohm-Aharonov) dans des anneaux désordonnés. Ceci a été mesuré expérimentalement par Sharvin et Sharvin.¹⁹

Pour les électrons, il est très difficile d'étudier ce problème d'un point de vue expérimental et d'un point de vue théorique. Les expériences requièrent des échantillons d'une grandeur de l'ordre de $1 \mu\text{m}$ (systèmes mésoscopiques) et des températures de l'ordre du mK pour inhiber la création de phonons (collisions inélastiques). La difficulté au niveau théorique est de tenir compte du désordre et de l'interaction électron-électron (qui a un rôle important à très basse température). Si l'interaction électron-électron est ignorée, une démonstration rigoureuse de l'équation de Boltzmann (théorie de transport) peut être donnée. Luttinger²⁰ a montré qu'en utilisant les propagateurs de Green, l'équation de Dyson et finalement l'équation de Bethe-Salpeter, nous retrouvons l'équation de Boltzmann au premier ordre d'approximation (approximation d'échelle: "ladder").

En 1984, S. John²¹ puis P.W. Anderson²² ont signalé que la transition vers les états localisés est d'une validité générale et applicable à toutes les ondes. En particulier, la lumière et les ondes acoustiques se propagent dans un milieu désordonné d'une façon similaire à celle des ondes électroniques. Le phénomène de la localisation n'est pas restreint aux particules quantiques (qui obéissent à l'équation de Schrödinger) mais il peut être appliqué aux ondes classiques comme les ondes électromagnétiques qui obéissent aux équations de Maxwell. Pour la lumière, le désordre provient des fluctuations de la constante diélectrique, qui jouent sensiblement le même rôle que les fluctuations d'un potentiel électrique pour les électrons.

On s'attend alors à observer les deux types de solutions des équations de Maxwell, les solutions étendues (oscillatoires) et les solutions localisées (exponentielles).

Pour étudier la propagation des ondes dans les milieux désordonnés, la lumière présente des avantages par rapport aux électrons. Au niveau expérimental, les expériences ne requièrent pas de très basses températures (elles peuvent être faites à la température ambiante), les échantillons peuvent être de l'ordre du *mm*. Ainsi les mesures de rétrodiffusion peuvent être faites avec une très bonne précision. Par rapport à l'absorption, un phonon absorbe l'électron puis le réinjecte dans le système avec une phase aléatoire. Pour la lumière, une fois le photon absorbé, il n'est pas réinjecté à nouveau dans le système, ceci a été souligné par Kogan et Kaveh.²³ Un point très important est qu'il n'y a pas d'interaction entre les photons, en principe, ce qui nous permet d'étudier le problème de la localisation des ondes d'une façon "propre". De plus, il est réaliste de considérer des systèmes uni-, bi- ou tridimensionnels optiquement. Le revers de la médaille est que le champ électromagnétique est un champ vectoriel, nous devons alors considérer les états de polarisation. Les diffuseurs peuvent être beaucoup plus grands que la longueur d'onde, ce qui donne des diffusions très anisotropes.

La propagation de la lumière dans les milieux désordonnés est aussi un problème de physique appliquée soit pour caractériser les matériaux: par exemple, la caractérisation de nuages par les mesures de LIDAR (radar pour la lumière), soit pour le développement d'une technologie: la photonique, dont le but est de trouver des matériaux qui soient pour l'optique l'équivalent des semi-conducteurs pour l'électronique; c'est-à-dire, de pouvoir construire des dispositifs pour les photons analogues aux dispositifs électroniques.^{24,25} D'un point de vue plus fondamental, il est intéressant de signaler que la localisation (forte) de la lumière n'a pas encore été observée; ni expérimentalement, ni numériquement à trois dimensions: elle représente ainsi un défi aux physiciens.

L'interférence des ondes classiques a apporté quelques surprises au milieu des années quatre-vingts. Akkermans, Wolf et Maynard²⁶⁻²⁷ ont montré théoriquement que l'intensité réfléchie par un milieu désordonné est supérieure à celle prédite dans le cadre de la théorie de transfert radiatif. Pour une incidence quelconque, l'intensité réfléchie en rétrodiffusion est en effet deux fois plus grande et elle décroît quand l'angle de détection augmente. Ce cône de rétrodiffusion a ses origines dans les diagrammes croisés de l'équation de Bethe-Salpeter. Cette augmentation de l'intensité a été observée pour la lumière par deux groupes indépendants: van Albada et Lagendijk²⁸ et Wolf et Maret,²⁹ précédés par Kuga et Ishimaru.³⁰

Un traitement formel de la diffusion multiple demande l'utilisation de l'équation de Bethe-Salpeter. Pour retrouver cette équation quelques simplifications sont nécessaires.²⁰ La

corrélation spatiale des diffuseurs doit être négligée. Entre deux collisions successives, nous devons considérer l'onde comme une onde plane. Derrière ces approximations il y a le fait que le désordre est faible. La distance moyenne entre les diffuseurs est beaucoup plus grande que la longueur d'onde $k l \gg l$. Il est aussi très courant de considérer l'équation de Bethe-Salpeter avec une approximation des ondes scalaires, ce qui n'est pas justifié pour la lumière (même dans un régime très diffusif, une mémoire de la polarisation est observée). La dernière approximation très souvent utilisée est l'isotropie de diffusion.

L'anisotropie de diffusion peut être traitée suivant les arguments astucieux de Maret et Wolf.³⁵ Ils proposent de regarder la diffusion multiple de la lumière comme étant une marche au hasard dans un ensemble où le nombre de collisions est fixée. Une grandeur est donc calculée dans cet ensemble. Le lien avec l'expérience est fait à travers la convolution de cette grandeur avec la densité de probabilité d'avoir n collisions dans une tranche d'épaisseur L . Pour la diffusion isotrope, ces distributions sont bien connues. Si la diffusion est anisotrope, les auteurs affirment que le problème doit être renormalisé à l'échelle du libre parcours moyen de transport: à cette échelle, la diffusion d'un photon redevient isotrope. Ce nouveau regard sur la diffusion multiple de la lumière est proche de celui de la physique des polymères. L'idée est alors de considérer les chemins de diffusion multiple comme étant des polymères (aspect scalaire du problème), puis de propager soit les champs électriques soit les intensités sur ces polymères. Il est intéressant de faire cette analogie car la physique des polymères, dont l'origine remonte aux travaux de Flory,³⁶ a eu un gros développement ces dernières années.

Au niveau fondamental, la non-observation de la localisation forte de la lumière stimule une analyse plus approfondie du problème de la diffusion multiple. Une analyse approfondie signifie: soit "jouer" avec les paramètres et prédire le système où cette transition peut être observée, soit expliquer la raison pour laquelle cette transition ne peut pas avoir lieu pour la lumière. Si la localisation forte de la lumière *peut* être observée un jour, il est d'un très grand intérêt technologique de pouvoir la contrôler, voire même de la détruire. Le rôle destructeur des interférences de phase de la lumière est joué par le champ magnétique, qui, via l'effet Faraday, fait tourner les états de polarisation. Ce nouveau processus a été suggéré par Golubentsev³⁷ en 1984, puis étudié théoriquement dans le cadre de la localisation faible et pour les diffuseurs ponctuels, par MacKintosh et John³⁸ en 1988. Le résultat de ces études montre qu'en réflexion, le cône de rétrodiffusion peut être détruit. L'observation expérimentale de cet effet est récente: elle est due à Erbacher, Lenke et Maret³⁹⁻⁴⁰ en 1992.

Il faut souligner que les théories des effets de la diffusion multiple utilisent largement l'approximation des ondes scalaires et des diffuseurs ponctuels. De plus, les résultats sont obtenus dans un régime très diffusif: notre connaissance sur les effets de bord, ou sur le régime intermédiaire (entre la diffusion simple et le régime diffusif) est très limitée.

Néanmoins, des effets importants sont associés soit aux effets de frontières, comme le rôle polariseur d'un milieu désordonné à deux dimensions, soit au régime intermédiaire, comme par exemple les ailes du cône de rétrodiffusion.

Dans ce travail, nous allons considérer la propagation de la lumière dans les milieux désordonnés dans le cadre de la localisation faible. Notre objectif est d'étudier des systèmes réalistes. Nous irons au delà de l'approximation d'onde scalaire en prenant en compte l'aspect vectoriel du champ électromagnétique. Nous dépasserons l'approximation de diffuseurs ponctuels (diffusion isotrope) pour considérer les gros diffuseurs (par rapport à la longueur d'onde) qui introduisent l'anisotropie de diffusion. L'abandon de ces deux approximations nous rapproche de la réalité expérimentale, car, à quelques exceptions près, les expériences sont réalisées avec de gros diffuseurs et avec de la lumière polarisée. Le caractère vectoriel du champ électromagnétique et l'anisotropie de diffusion révèlent des effets importants qui sont associés aux chemins de diffusion courts (régime intermédiaire). Comme nous allons le montrer, la considération d'un régime purement diffusif pour la réflexion ne tient pas compte des effets importants qui sont observés expérimentalement, comme par exemple la mémoire de la polarisation. En réflexion, nous devons toujours considérer la contribution des chemins courts. Nous étudierons aussi les systèmes de dimensionnalité réduite à un et deux.

La difficulté inhérente au problème (l'anisotropie, par exemple) rend une étude purement analytique non faisable. Nous avons ainsi développé le code d'une simulation numérique de Monte Carlo. Nous considérons deux plans parallèles séparés par une distance L . Dans cette tranche, des sphères de rayon a sont distribuées aléatoirement. L'incidence de la lumière et sa détection sont perpendiculaires à ces plans, soit en transmission, soit en réflexion. Les longueurs qui caractérisent ce système sont: la longueur d'onde λ , le rayon de la sphère a , l'épaisseur de la tranche L , le libre parcours moyen du photon l , qui est lié à la densité des diffuseurs ainsi que le libre parcours moyen de transport l^* qui tient compte de l'anisotropie.

La présentation est divisée en quatre chapitres.

Dans le premier chapitre nous présenterons les concepts de base de la diffusion multiple de la lumière où nous considérons à la fois l'anisotropie de diffusion et l'aspect vectoriel du champ électromagnétique à travers les diffusions de Mie. Ce chapitre est divisé en cinq parties. Dans la première partie, nous considérons la diffusion d'une onde électromagnétique plane polarisée par une seule sphère de rayon fini (diffusion de Mie). Les paramètres de Stokes et la représentation de Poincaré y seront introduits. Dans la deuxième partie, nous allons considérer la diffusion multiple de la lumière dans un milieu désordonné à travers des séquences de diffusion. La matrice de Mueller est introduite et nous faisons un bref rappel des simplifications qui sont obtenues en considérant les symétries du problème.

La matrice de cohérence et le degré de polarisation y seront présentés. A la fin de cette partie, nous considérons les séquences de diffusion inverses qui donnent lieu à la localisation faible de la lumière (cône de rétrodiffusion). Nous présentons le théorème de la séquence inverse qui est valable pour les diffusions de Mie, ce théorème nous permet d'obtenir les champs (par conséquent, les intensités) de la séquence inverse à partir de la séquence directe. Dans la troisième partie nous présentons une méthode pour obtenir les distributions de probabilité pour les intensités de Stokes et par conséquent, la distribution de polarisation pour une polarisation incidente quelconque. Cette méthode généralise celle employée par Cohen, Eliyahu, Freund et Kaveh,⁴¹ qui ont traité le problème pour une polarisation incidente rectiligne. Nous montrons que ces distributions sont paramétrées par l'intensité totale moyenne, par le degré de polarisation et par l'état de polarisation incident. La conséquence de cette dernière paramétrisation est que le mécanisme de dépolariation pour différents états de polarisation (incidents) peut être très différent. Nous montrons que la représentation de Poincaré donne une image géométrique du processus de dépolariation par le milieu désordonné. Dans la quatrième partie, nous considérons l'aspect numérique de la diffusion de Mie et nous présentons le code d'une simulation de Monte Carlo que nous avons développé. Ces quatre parties constituent une version détaillée et actualisée de l'article de la référence 42. Finalement, la dernière partie constitue un "pre-print" que nous avons mis en annexe à ce chapitre. Dans cet article, nous appliquons la méthode développée au problème de la diffusion multiple de la lumière polarisée à deux dimensions. Cette situation a été considérée expérimentalement par Freund³ et peut être traitée analytiquement. L'approche que nous proposons est cohérente et plus rigoureuse que l'approche phénoménologique présentée par Freund.

Le but du deuxième chapitre est de justifier le traitement des séquences de diffusion à partir de l'approche de la marche au hasard qui se prête bien à une simulation numérique de type Monte Carlo. Nous comparons aussi cette approche avec celle de l'équation de Boltzmann. La statistique de ces séquences est alors étudiée dans une tranche. Dans la première section, nous obtenons l'équation de transfert radiatif (équation de Boltzmann pour la lumière) qui présente une analogie très étroite avec le problème du gaz de Lorentz. En suite nous considérons deux situations: le modèle à une dimension et l'approximation de diffusion. Dans la deuxième partie, nous considérons le problème de la marche au hasard qui a été bien étudié dans le contexte des polymères. Dans la troisième partie, nous comparons l'approche, plus traditionnelle, de l'équation de Boltzmann et celle, plus nouvelle, de la marche au hasard. Nous montrons alors que l'approche de Boltzmann peut être considérée comme étant une approximation du type "champ moyen" au problème de la marche au hasard. Enfin, dans la dernière partie, nous étudions les séquences de diffusion dans une tranche qui contient des inhomogénéités.

Dans le troisième chapitre nous présentons une étude numérique des mécanismes de dépolarisation de la lumière quand elle traverse une tranche. La transmission et la réflexion de la lumière après la diffusion multiple par des grandes sphères dans une tranche est simulée par notre programme de Monte Carlo. Nous trouvons qu'en transmission, le taux de dépolarisation décroît exponentiellement en fonction de l'épaisseur de la tranche. A l'opposé de ce qui est observé pour les diffuseurs ponctuels, la dépolarisation pour une lumière incidente polarisée linéairement est deux fois plus rapide qu'avec une lumière polarisée circulairement. Ce comportement a été observé expérimentalement par Erbacher.⁴⁴ Pour la réflexion, nous trouvons pour les gros diffuseurs un comportement différent de celui observé pour les diffuseurs ponctuels. Pour les gros diffuseurs nous trouvons une mémoire de la polarisation circulaire tandis que pour les diffuseurs ponctuels, c'est la polarisation linéaire qui est partiellement conservée. La mémoire des états de polarisation en réflexion a été observé expérimentalement par MacKintosh *et. al.*⁴⁵ Les mécanismes de dépolarisation peuvent être compris qualitativement en associant les degrés de polarisation du canal linéaire et du canal circulaire respectivement à la "randomisation" de l'orientation du vecteur d'onde et à la "randomisation" de l'hélicité (moment angulaire) de l'onde.⁴⁵ Nous montrons numériquement que le mécanisme de dépolarisation est plus compliqué que cette image qualitative puisque les états de polarisation les plus probables sont elliptiques au lieu d'être linéaires ou circulaires. Nous proposons de décrire ces mécanismes par l'image géométrique fournie par la représentation de Poincaré où les états de polarisation elliptiques sont pris en compte. Etant donné les différentes longueurs caractéristiques de dépolarisation pour les différents états de polarisation incidente, ces études amènent à de nouvelles longueurs caractéristiques associées au moment linéaire (vecteur d'onde) et au moment circulaire (hélicité) d'une onde vectorielle (électromagnétique).

Dans le quatrième chapitre nous considérons la diffusion multiple de la lumière dans un milieu optiquement magnéto-actif. Nous commençons ce chapitre en posant le problème de l'effet Faraday, qui fait tourner les états de polarisation entre deux diffusions successives. Grâce à la simulation de Monte Carlo, nous obtenons la fonction de corrélation des intensités en fonction du champ magnétique en transmission pour une incidence avec lumière polarisée linéairement. Pour une tranche épaisse par rapport au libre parcours moyen de transport (régime de diffusion) nous obtenons une décroissance exponentielle des corrélations observée expérimentalement par Erbacher, Lenke et Maret^{39,40} et qui est justifiée en utilisant un modèle simple scalaire. Pour le régime intermédiaire entre une collision et le régime diffusif, nous obtenons des oscillations de la fonction de corrélation en fonction du champ magnétique. Ce comportement trouve son origine dans la diffusion multiple puisqu'il ne peut pas exister dans un milieu homogène, compte tenu du choix que nous avons fait de la fonction de corrélation. Pour pouvoir comprendre ce résultat numérique, qui n'a pas encore été

observé expérimentalement, nous développons une théorie de l'effet Faraday en diffusion multiple.

La rotation des états de polarisation est par essence liée à la nature vectorielle des ondes électromagnétiques. En réflexion, le déphasage entre champs d'une séquence directe et de sa séquence inverse mérite une étude détaillée puisque l'effet Faraday détruit la cohérence de phase responsable du pic du cône de rétrodiffusion. Ce mécanisme a été proposé par Golubenstein,³⁷ puis étudié plus en détail par MacKintosh et John³⁸ et finalement observé expérimentalement.^{39,40} Ce déphasage a été attribué au fait que l'effet Faraday brise la symétrie du renversement du temps. Nous montrons que l'atténuation du cône de rétrodiffusion provient plus précisément de la rupture de la symétrie de réciprocity de la séquence inverse. Nous présentons comme exemples illustratifs les systèmes à une et deux dimensions. Dans ces systèmes la symétrie par renversement du temps est brisée, mais le pic du cône n'est pas affecté. Cette étude porte sur les champs: elle justifie l'algorithme que nous utilisons dans la simulation de Monte Carlo. Au niveau des intensités, et après avoir effectué la moyenne d'ensemble, nous trouvons que le canal d'hélicité opposée (+ -) n'est pas affecté par le champ magnétique. Ce résultat a été obtenu pour la première fois par MacKintosh et John.³⁸

Après ces considérations générales portant sur la symétrie, nous considérons la diffusion de Mie à une dimension. Ce problème peut être résolu analytiquement sans approximations. Ainsi, pour ce système avec lumière incidente polarisée linéairement, nous trouvons des oscillations de la fonction de corrélation en transmission.

À trois dimensions, nous considérons le cas simple et soluble des diffuseurs ponctuels (diffuseurs de Rayleigh). Les intensités de Stokes sont calculées et nous montrons que le degré de polarisation dépend du champ magnétique comme le modèle à une dimension. Pour calculer le facteur de renforcement du cône ainsi que la corrélation des intensités, nous considérons le cas des faibles champs magnétiques et les effets de bords sont négligés. Dans cette limite nous retrouvons les résultats du modèle stochastique. Toutefois soulignons que même le modèle de Rayleigh à trois dimensions présente des oscillations de la fonction de corrélation en fonction du champ magnétique. Plus généralement pour étudier la diffusion multiple par des diffuseurs de Mie, nous utilisons notre programme de Monte Carlo et l'atténuation exponentielle du cône de rétrodiffusion est obtenue. Pour les champs magnétiques forts nous observons la convergence du facteur de renforcement vers des valeurs asymptotiques non-nulles et non-triviales. Ce comportement a été observé expérimentalement.⁴⁶

REFERENCES

1. R. Greenler, *"Rainbows, Halos, and Glories,"* Cambridge University Press, Cambridge (1991).
2. H.M. Nussenzweig, *Scientific American* **236**, 116 (1977).
3. H.C. van de Hulst, *"Light Scattering by Small Particles,"* Dover Publications, New York (1981).
4. A. Schuster, *Astrophys. J.* **21**, 1 (1905).
K. Schwarzschild, *"Göttinger Nachrichten,"* 41 (1906).
5. S. Chandrasekhar, *"Radiative Transfer,"* Dover Publications, New York, (1960).
6. L. Landau and E. Lifchitz, *"Cinétique Physique,"* Editions Mir, (1990).
7. S. Lovejoy, A. Davis, P. Gabriel, D. Schertzer and G.L. Austin, *J. Geophys. Res.* **95**, 699 (1990).
P. Gabriel, S. Lovejoy, A. Davis, D. Schertzer and G.L. Austin, *J. Geophys. Res.* **95**, 717 (1990).
A. Davis, P. Gabriel, S. Lovejoy, D. Schertzer and G.L. Austin, *J. Geophys. Res.* **95**, 729 (1990).
8. M.P. Egan, C.M. Leung and G.F. Spagna Jr., *Comput. Phys. Commun.* **48**, 271 (1988).
9. P.W. Anderson, *Phys. Rev.* **109** (1958).
10. R. Landauer, *Phil. Mag.* **21**, 247 (1970).
11. Y. Toyozawa, *Prog. Theor. Phys.* **26**, 29 (1961).
12. J. Hubbard, *Proc. Roy. Soc. A* **277**, 237 (1964).
13. W. Kohn, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 439 (1967).
14. N.F. Mott, *"Metal Insulator Transitions,"* Taylor and Francis, London (1974).
15. E. Akkermans, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble (1986).
16. E. Abrahams, P.W. Anderson, D.C. Licciadello and T.V. Ramakrishnan, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 673 (1979).
17. A.F. Ioffe and A.R. Regel, *Prog. Semicond.* **4**, 237 (1960).
18. B.L. Altshuler, A.G. Aronov and B.Z. Spivak, *JETP Lett.* **33**, 94 (1981).
19. Y.D. Sharvin and Y.V. Sharvin, *JETP Lett.* **34**, 272, (1981).
20. Luttinger, in: *"Mathematical Methods in Solid State and Super Fluid Theory,"* Edited by: R.C. Clark and G.H. Derrick, Oliver and Boyd, Edimbourg (1968).
21. S. John, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2169 (1984).
22. P.W. Anderson, *Phil. Mag.* **B52**, 502 (1985).
23. E. Kogan and M. Kaveh, *Phys. Rev.* **B45**, 1049, (1992).
24. S. John, *"Localization of Light,"* *Physics Today*, May, (1991).
25. *"Localization and Propagation of Classical Waves in Random or Periodic Structures,"* edited by: C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Corporation, New York (à paraître).
26. E. Akkermans and R. Maynard, *J. Physique Lett.* **46**, L-1045 (1985).
27. E. Akkermans, P.E. Wolf and R. Maynard, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1471 (1986).
28. M.P. van Albada and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 2692 (1985).
29. P.E. Wolf and G. Maret, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2696 (1985).
30. Y. Kuga and A. Ishimaru, *J. Opt. Soc. Am.* **A1**, 831 (1984).
31. G. Maret and P.E. Wolf, *Z. Phys.* **B65**, 409 (1987).

- 36. P.J. Flory, "*Statistical Mechanics of Chain Molecules*," John Wiley & Sons, New York, (1969).
- 37. A.A. Golubenstein, JETP **59**, 26 (1984).
- 38. F.C. MacKintosh and S. John, Phys. Rev. **B37**, 1884 (1988).
- 39. F.A. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, "*Optical Speckle Patterns and Coherent Backscattering in Strong Magnetic Fields*," in: Ref. 25.
- 40. F.A. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, Europhys. Lett. **21**, 551 (1993).
- 41. S.M. Cohen, D. Eliyahu, I. Freund and M. Kaveh, Phys. Rev. **A43**, 5748 (1991).
- 42. A.S. Martinez and R. Maynard, "*Polarization Statistics in Multiple Scattering of Light: a Monte Carlo Approach*," in: Ref. 25.
- 43. I. Freund, Waves in Random Media **1**, 245 (1991).
- 44. F.A. Erbacher, thèse de doctorat, Université de Constance (1992).
- 45. F.C. MacKintosh, J.X. Zhu, D.J. Pine and W.A. Weitz, Phys. Rev. **B40**, 9342 (1989).
- 46. R. Lenke and G. Maret, "*Affecting Weak Light Localization by Strong Magnetic Fields*," 1993 pre-print

CHAPITRE I

STATISTIQUE DE LA POLARISATION

Dans ce chapitre nous présenterons les concepts de base de la diffusion multiple de la lumière où nous considérons à la fois l'anisotropie de diffusion et l'aspect vectoriel du champ électromagnétique à travers les diffusions de Mie. La présentation est divisée en cinq parties. Dans la première partie, nous considérons la diffusion d'une onde électromagnétique plane polarisée par une seule sphère de rayon fini (diffusion de Mie). Les paramètres de Stokes et la représentation de Poincaré y sont introduits. Dans la deuxième partie, nous allons considérer la diffusion multiple de la lumière dans un milieu désordonné à travers des séquences de diffusion. La matrice de Mueller est introduite et nous faisons un bref rappel des simplifications qui sont obtenues en considérant les symétries du problème. La matrice de cohérence et le degré de polarisation y sont présentés. A la fin de cette partie, nous considérons les séquences de diffusion inverses qui donnent lieu à la localisation faible de la lumière (cône de retrodiffusion). Nous présentons le théorème de la séquence inverse qui est valable pour les diffusions de Mie, ce théorème nous permet d'obtenir les champs (par conséquent, les intensités) de la séquence inverse à partir de la séquence directe. Dans la troisième partie nous présentons une méthode pour obtenir les distributions de probabilité pour les intensités de Stokes et par conséquent, la distribution de polarisation pour une polarisation incidente quelconque. Cette méthode généralise celle employée par Cohen, Eliyahu, Freund et Kaveh¹, qui ont traité le problème pour une polarisation incidence rectiligne. Nous montrons que ces distributions sont paramétrées par l'intensité totale moyenne, par le degré de polarisation et par l'état de polarisation incident. La conséquence de cette dernière paramétrisation est que le mécanisme de dépolarisation pour différents états de polarisation incidents peut être très différent. Nous montrons que la représentation de Poincaré donne une image géométrique du processus de dépolarisation par le milieu désordonné. Dans la quatrième partie, nous considérons l'aspect numérique de la diffusion de Mie et nous présentons le code d'une simulation de Monte Carlo que nous avons développé. Ces quatre parties constituent une version détaillée et actualisée de l'article de la référence 2. Finalement, la dernière partie constitue un "pre-print" que nous avons mis en annexe à ce chapitre. Dans cet article, nous appliquons la méthode développée au problème à deux dimensions de la diffusion multiple de la lumière polarisée. Cette situation a été considérée

expérimentalement par Freund³ et peut être traitée analytiquement. L'approche que nous proposons est cohérente et plus rigoureuse que l'approche phénoménologique présentée par Freund.

A. DIFFUSION DE MIE, INTENSITES DE STOKES ET REPRESENTATION DE POINCARÉ

La solution exacte de la diffusion d'une onde électromagnétique plane par une sphère isotrope et homogène a été obtenue par Mie en 1908, et celle-ci est généralement connue comme la diffusion de Mie. Nous en présentons un bref résumé ci-dessous. Des dérivations plus détaillées sont exposées dans des livres d'électromagnétisme tel que celui de Stratton,⁴ ou bien dans des livres de diffusion de la lumière comme ceux de van de Hulst⁵ et Kerker.⁶ Pour les particules de forme sphéroïdale, voir les articles de Yeh et de Flesia *et al.*⁷

Tout au long de cette présentation, nous allons considérer une onde électromagnétique de fréquence de pulsation ω et longueur d'onde λ , dont la dépendance temporelle est donnée par le facteur $e^{j\omega t}$ où $j = \sqrt{-1}$. Nous désignons la constante diélectrique complexe par $\epsilon(\mathbf{r}) = \epsilon'(\mathbf{r}) + j \sigma(\mathbf{r})/\omega$, dont la partie réelle est définie par la relation $\mathbf{D} = \epsilon'(\mathbf{r}) \mathbf{E}$, où $\mathbf{D}$ et $\mathbf{E}$ sont respectivement les vecteurs d'induction et le champ électrique; la partie imaginaire tient compte de l'absorption: $\sigma(\mathbf{r})$ est la conductivité électrique à la position $\mathbf{r}$. Notons que les constantes diélectriques du milieu et de la sphère sont respectivement ϵ_m et ϵ_s .

L'onde se propage dans un milieu homogène et isotrope et elle est diffusée par une sphère de rayon a , homogène et isotrope. Ainsi, ϵ_m , ϵ_s et les perméabilités magnétiques μ_m et μ_s sont indépendants de $\mathbf{r}$. Pour le vide, nous désignerons ces constantes comme ϵ_0 et μ_0 .

Considérons une onde électromagnétique plane, dont le champ électrique a une amplitude $E_0(t) = E_0 e^{j\omega t}$, qui se propage dans un milieu isotrope et homogène d'indice de réfraction $n_m = \sqrt{\frac{\mu_m \epsilon_m}{\epsilon_0 \mu_0}}$. L'onde se propage dans la direction z avec un vecteur d'onde $\mathbf{k}$,

dont le module est $k = \omega \sqrt{\mu_m \epsilon_m} = \frac{2\pi}{\lambda}$. Le champ électrique est donné par:

$E_0(\mathbf{r}_0, t) = E_0(t) e^{j\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_0}$. Cette onde est alors diffusée par une sphère de rayon a , d'indice de réfraction n_s , située à l'origine d'un système de coordonnées. Si n_s est réel, la diffusion est élastique et l'onde diffusée se propage dans la direction $\hat{\mathbf{k}}'$, avec $|\hat{\mathbf{k}}| = |\hat{\mathbf{k}}'|$. Le plan qui contient les directions $\hat{\mathbf{k}}$ et $\hat{\mathbf{k}}'$ est appelé plan de diffusion. En coordonnées sphériques, à la position $\mathbf{r}$, de façon que $p \gg ka$ où $p = kr$, le champ électrique diffusé $E_s(\mathbf{r}, t)$ est transverse (approximation de champ lointain). La composante parallèle au plan de diffusion de ce champ est alignée le long de la direction $\hat{\theta}$, où θ est l'angle de diffusion, c'est-à-dire l'angle

entre $\hat{k}$ et $\hat{k}'$ (Fig. 1.1) et la composante perpendiculaire le long de $\hat{\phi}$, où ϕ est l'angle azimutal. Ces composantes sont données par:

$$E_s(r, t) = \frac{je^{j\phi}}{\rho} \mathbf{J}(\theta, \phi) E_o(r_o, t) , \quad (\text{I.A.1})$$

où $\mathbf{J}(\theta, \phi)$ est la matrice de Jones donnée par le produit:

$$\mathbf{J}(\theta, \phi) = \begin{bmatrix} j_{11} & j_{12} \\ j_{21} & j_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{//}(\cos\theta) & 0 \\ 0 & S_{\perp}(\cos\theta) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos\phi & \sin\phi \\ -\sin\phi & \cos\phi \end{bmatrix} . \quad (\text{I.A.2})$$

La deuxième matrice qui dépend de ϕ projette E_o dans les directions - parallèle et perpendiculaire - au plan de diffusion. La matrice qui dépend de θ est diagonale car le diffuseur est sphérique. Ses éléments sont les amplitudes de diffusion - parallèle et perpendiculaire -:

$$S_{//}(\cos\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \pi_n(\cos\theta) + b_n \tau_n(\cos\theta)] , \quad (\text{I.A.3})$$

et

$$S_{\perp}(\cos\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [b_n \pi_n(\cos\theta) + a_n \tau_n(\cos\theta)] , \quad (\text{I.A.4})$$

où

$$\pi_n(\cos\theta) = \frac{1}{\sin\theta} P_n^1(\cos\theta) \quad \text{et} \quad \tau_n(\cos\theta) = \frac{d}{d\theta} P_n^1(\cos\theta) , \quad (\text{I.A.5})$$

avec $P_n^1(\cos\theta)$: les polynômes de Legendre de première espèce d'ordre n . Nous remarquons que $\pi_n(1) = \tau_n(1) = n(n+1)/2$ et que $\pi_n(-1) = \tau_n(-1) = (-1)^n n(n+1)/2$. L'égalité $S_{//}(1) = S_{\perp}(1)$ signifie que la diffusion vers l'avant ne change pas l'état de polarisation de l'onde incidente et l'égalité $S_{//}(-1) = -S_{\perp}(-1)$ signifie que la diffusion vers l'arrière renverse l'hélicité de l'onde. Les coefficients a_n et b_n sont donnés par:

$$a_n = \frac{\psi_n(\alpha) \left[\frac{\psi_n'(\beta)}{\psi_n(\beta)} - m \frac{\psi_n'(\alpha)}{\psi_n(\alpha)} \right]}{\zeta_n(\alpha) \frac{\psi_n'(\beta)}{\psi_n(\beta)} - m \zeta_n'(\alpha)} \quad \text{et} \quad b_n = \frac{\psi_n(\alpha) \left[m \frac{\psi_n'(\beta)}{\psi_n(\beta)} - \frac{\psi_n'(\alpha)}{\psi_n(\alpha)} \right]}{m \zeta_n(\alpha) \frac{\psi_n'(\beta)}{\psi_n(\beta)} - \zeta_n'(\alpha)}, \quad (\text{I.A.6})$$

où $\alpha = ka$ et $\beta = m\alpha$ avec $m = \frac{n_s}{n_m}$ l'indice relatif de réfraction. S'il y a de l'absorption m est une variable complexe. La fonction ψ_n est la fonction de Bessel sphérique (Bessel-Ricatti), la fonction $\zeta_n = \psi_n + j \eta_n$ est la fonction de Hankel sphérique et η_n la fonction de Neumann sphérique. Le "prime" désigne la dérivation par rapport à l'argument.

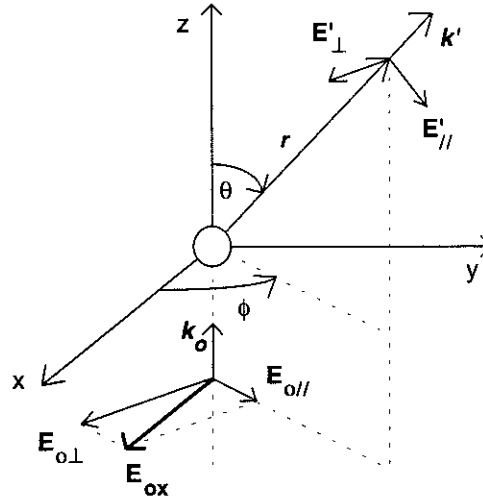


Figure 1.1 Géométrie de diffusion

Les intensités diffusées $|E_{//}|^2$, $|E_{\perp}|^2$, $u = 2\text{Re}(E_{//}E_{\perp}^*)$ et $v = 2\text{Im}(E_{//}E_{\perp}^*)$ peuvent être représentées comme étant les composantes d'un vecteur colonne. Ce vecteur est connecté au vecteur des intensités incidentes par la matrice:

$$\frac{1}{(kr)^2} \begin{bmatrix} |j_{11}|^2 & |j_{12}|^2 & \text{Re}(j_{11}j_{12}^*) & -\text{Im}(j_{11}j_{12}^*) \\ |j_{21}|^2 & |j_{22}|^2 & \text{Re}(j_{21}j_{22}^*) & -\text{Im}(j_{21}j_{22}^*) \\ 2\text{Re}(j_{11}j_{21}^*) & 2\text{Re}(j_{12}j_{22}^*) & \text{Re}(j_{11}j_{22}^* + j_{12}j_{21}^*) & -\text{Im}(j_{11}j_{22}^* - j_{12}^*j_{21}^*) \\ 2\text{Im}(j_{11}j_{21}^*) & 2\text{Im}(j_{12}j_{22}^*) & \text{Im}(j_{11}j_{12}^* + j_{12}j_{21}^*) & \text{Re}(j_{11}j_{22}^* - j_{12}j_{21}^*) \end{bmatrix}. \quad (\text{I.A.7})$$

Les intensités de Stokes sont obtenues à partir des intensités précédentes en prenant: $i = |E_{//}|^2 + |E_{\perp}|^2$ et $q = |E_{//}|^2 - |E_{\perp}|^2$. Ces nouvelles intensités obéissent à la règle de somme de Stokes:

$$i^2 = q^2 + u^2 + v^2 \quad (I.A.8)$$

qui signifie que seulement trois intensités sont indépendantes, représentant le grand et le petit axe d'une ellipse ainsi que son inclinaison. L'information sur la phase absolue a été perdue.

Une représentation géométrique des états de polarisation est donnée par la représentation de Poincaré⁸ (Fig. 1.2). Dans cette représentation les intensités de Stokes sont décrites comme:

$$\frac{q}{i} = \cos(2\chi)\cos(2\psi) \quad , \quad \frac{u}{i} = \cos(2\chi)\sin(2\psi) \quad \text{et} \quad \frac{v}{i} = \sin(2\chi) \quad , \quad (I.A.9)$$

où ψ est l'inclinaison de l'ellipse par rapport à un axe donné et $\tan\chi$ est le rapport entre le grand et le petit axe de l'ellipse. Le signe positif ou négatif de $\tan\chi$ représente la rotation de la polarisation dans le sens des aiguilles d'une montre (−) ou en sens contraire (+). Sur la sphère de Poincaré (de rayon unitaire), les pôles nord et sud représentent respectivement les états de polarisation circulaire − et +. Les hémisphères nord et sud représentent respectivement les états de polarisation elliptique − et + et l'équateur représente les états de polarisation rectiligne.

La section efficace de diffusion différentielle est donnée par:

$$\begin{aligned} \sigma_d(\cos\theta, \phi, E_o) &= \lim_{\rho \rightarrow \infty} \frac{\rho^2 |E_s|^2}{|E_o|^2} = \\ &= \frac{|S_{//}(\cos\theta)|^2 + |S_{\perp}(\cos\theta)|^2 + [|S_{//}(\cos\theta)|^2 - |S_{\perp}(\cos\theta)|^2] f(E_o, \phi)}{2} \quad , \quad (I.A.10) \end{aligned}$$

où $f(E_o, \phi) = \frac{q_o \cos(2\phi) + u_o \sin(2\phi)}{i_o}$. Ainsi la section efficace différentielle dépend non seulement des angles θ et ϕ , mais elle est encore paramétrée par les intensités de Stokes incidentes. Nous remarquons que pour une polarisation incidente circulaire ($q_o = u_o = 0$) la section efficace différentielle et les intensités de Stokes sont indépendantes de l'angle azimutal

ϕ . La section efficace σ_s de diffusion (en unités de πa^2) est obtenue par l'intégration de $\sigma_d(\theta, \phi, E_0)$ sur $\frac{d\theta \sin\theta d\phi}{4\pi}$ et vaut:

$$\sigma_s = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2) . \quad (\text{I.A.11})$$

La section efficace totale (en unités de πa^2) est obtenue à partir du théorème optique:⁸

$$\sigma_t = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re}(a_n + b_n) . \quad (\text{I.A.12})$$

La section efficace d'absorption est donnée par: $\sigma_a = \sigma_t - \sigma_s$. S'il n'y a pas de l'absorption, $\sigma_s = \sigma_t$.

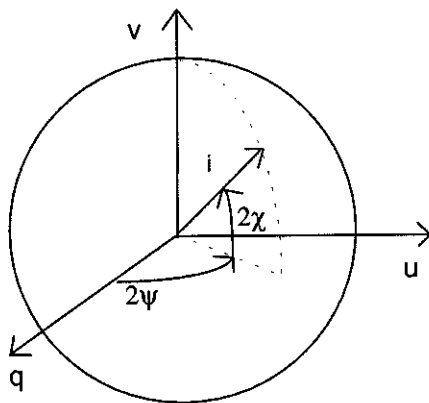


Figure 1.2 *Sphère de Poincaré*

Nous mettons l'accent sur le fait que la diffusion de Mie est anisotrope et qu'elle change la polarisation incidente qui devient elliptique en général. Cette diffusion est gouvernée par deux paramètres, l'indice relatif de réfraction m et le paramètre de taille α . En fixant m , trois régimes sont identifiés, i) le régime de Rayleigh pour $ka \ll 1$, ii) le régime intermédiaire pour $ka \sim 1$ et iii) les grandes sphères pour $ka \gg 1$. Cela est apparent sur la fonction:

$$F(ka) = 100 \cdot \frac{\text{Max}[|S_{//}(\cos\theta)|^2 - |S_{\perp}(\cos\theta)|^2]}{\text{Max}[|S_{//}(\cos\theta)|^2 + |S_{\perp}(\cos\theta)|^2]} , \quad (\text{I.A.13})$$

qui est donnée en pourcentage où *Max* prend le maximum de son argument quant θ varie de 0 à π (Fig. 1.3). Cette fonction révèle la différence entre les amplitudes de diffusion - parallèle et perpendiculaire -. Pour le régime de Rayleigh, où seulement l'ordre le plus bas en α est considéré:

$$S_{//}(\cos\theta) = -j \gamma_r \cos\theta , \quad S_{\perp}(\cos\theta) = -j \gamma_r , \quad \text{avec } \gamma_r = \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \alpha^3 . \quad (\text{I.A.14})$$

C'est la loi bien connue de diffusion $\frac{8|\gamma_r|^2 \alpha^4}{3}$ qui explique le bleu du ciel. Par conséquent, la valeur maximale de la fonction $F(\alpha)$ est de 50%. A l'autre extrême, pour de grandes sphères la fonction $F(\alpha)$ décroît vers zéro: une bonne approximation consiste à prendre $|S_{//}(\cos\theta)|^2 \sim |S_{\perp}(\cos\theta)|^2$. Cette fonction illustre quantitativement le passage entre le régime de Rayleigh et le régime de grandes sphères.

L'approximation que nous proposons pour les grandes sphères sera employée dans la simulation de Monte Carlo. De cette façon la dépendance en ϕ et E_o peut être négligée dans la section efficace différentielle (I.A.10), ce qui représente une simplification considérable des calculs.

L'anisotropie dans la diffusion de Mie est mesurée par la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion:

$$\langle \cos\theta \rangle = \frac{1}{4\pi\sigma_s} \int_0^\pi d\theta \sin\theta \int_0^{2\pi} d\phi \sigma_d(\theta, \phi, E_o) \cos\theta , \quad (\text{I.A.15})$$

l'allure de cette fonction est montrée sur la figure 1.4.

Une description de la méthode numérique permettant d'obtenir les amplitudes de diffusion est donnée dans la section D.

Dans cette section nous avons présenté un bref résumé de la diffusion d'une onde électromagnétique, dans un état de polarisation quelconque, par une sphère de rayon fini. Nous mettons l'accent sur le fait que la diffusion de Mie dépend de deux paramètres, le

paramètre de taille et l'indice relatif de réfraction. Cette diffusion change l'état de polarisation de l'onde incidente et le champ diffusé loin de la cible est très bien représenté par une onde transverse qui se propage dans la direction d'observation (la composante radiale décroît comme p^{-2} tandis que les composantes transverses décroissent comme p^{-1}).

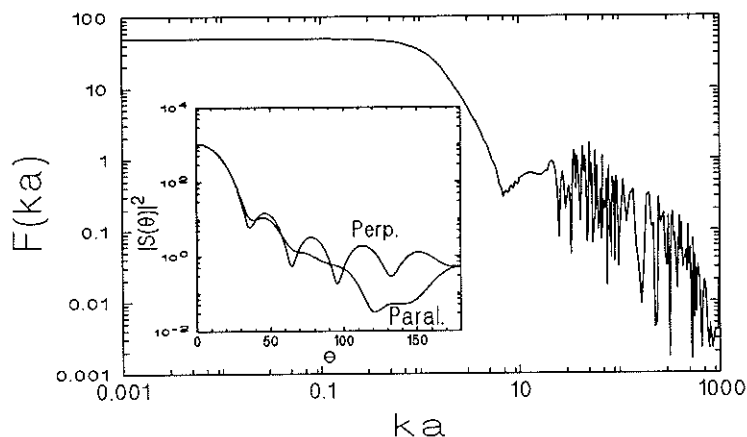


Figure 1.3 Variation de la fonction $F(ka)$ (Eq. 1.A.13) pour un indice de réfraction relatif $m = 1.19$. Pour $ka \ll 1$, c'est le régime de Rayleigh; pour $ka \sim 1$, c'est le régime intermédiaire et pour $ka \gg 1$, le régime de grandes sphères. Le petit graphique: Le carré des amplitudes de diffusion de Mie parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion pour $ka = 6.5$, $m = 1.19$.

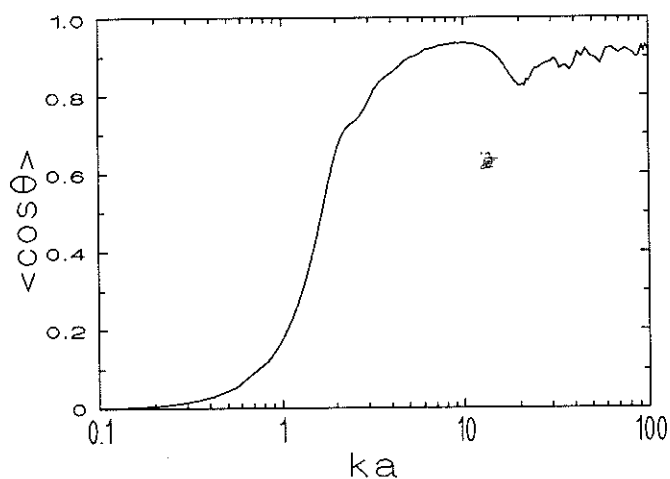


Figure 1.4 La valeur de $\langle \cos\theta \rangle$ en fonction du paramètre de taille ka pour un indice de réfraction relatif $m = 1.19$.

B. DIFFUSION MULTIPLE DE MIE ET RELATIONS DE SYMETRIE

Dans cette partie nous considérons une séquence de diffusions de Mie. L'onde diffusée par une première sphère peut alors être considérée comme l'onde incidente pour une deuxième diffusion. Alors le champ diffusé par la deuxième sphère est le champ incident pour une troisième diffusion, et ce procédé est répété successivement. Nous pouvons connaître l'état de polarisation au bout d'une séquence de n diffusions. Nous nous sommes aussi intéressés aux valeurs moyennes des intensités.

Dans les séquences de diffusion, nous considérons que la longueur d'onde est fixée, qu'il n'y a pas d'absorption ($\sigma_i = \sigma_s$) et que $kl \gg 1$, où $l = \frac{1}{\Phi \sigma_i}$ est le libre parcours moyen et Φ le nombre de diffuseurs par unité de volume. Cette dernière hypothèse nous assure qu'en moyenne chaque diffusion a lieu loin de la collision précédente, l'approximation de champ lointain est ainsi respectée. Ceci étant, nous pouvons ne considérer que les diagrammes en échelle ("ladder") de l'équation de Bethe-Salpeter.⁹ Ces diagrammes, qui sont obtenus dans l'espace des vecteurs d'onde, correspondent à des trajectoires qui sont indépendantes les unes des autres dans l'espace des vecteurs de position. De plus, cette approximation est parfaitement équivalente à l'équation de Boltzmann.¹⁰ Enfin, notons que le critère de Ioffe-Regel ($kl \gg 1$) (faible désordre) indique que le système est loin du régime de localisation forte ($kl \sim 1$).

Pour étudier la diffusion multiple de la lumière par un milieu désordonné, considérons un système de coordonnées (x, y, z) fixé (système du laboratoire) et des sphères de rayon a distribuées aléatoirement dans une tranche infinie parallèle à $x-y$ et placée entre $z = 0$ et $z = L$. De plus, la densité de sphères est supposée faible de façon que nous puissions ne considérer que les chemins indépendants et l'approximation de champ lointain pour une diffusion simple. La source de lumière et les détecteurs sont loin de la tranche. La détection est dans la direction du vecteur d'onde incident, soit en transmission, soit en réflexion.

La trajectoire d'une onde partielle est obtenue en considérant une onde électromagnétique plane avec champ électrique E_0 qui se propage initialement suivant l'axe z et qui est alors diffusée par une sphère. Nous considérons un nouveau système de coordonnées (x_1, y_1, z_1) dont l'origine est le centre de la sphère et dont les directions sont: $\hat{x}_1 = \hat{x}$, $\hat{y}_1 = \hat{y}$ et $\hat{z}_1 = \hat{z}$. Dans le repère (x_1, y_1, z_1) les angles de diffusion sont θ_1 et ϕ_1 : ils caractérisent le vecteur d'onde $\hat{k}_1$. A une distance r_1 , le champ électrique diffusé E_1 est donné par l'équation (I.A.1). En ce point nous considérons une deuxième sphère et au centre de cette sphère un nouveau système de coordonnées (x_2, y_2, z_2) de façon que $\hat{x}_2 = \hat{\theta}_1$, $\hat{y}_2 = \hat{\phi}_1$ et $\hat{z}_2 = \hat{k}_1$ où $\hat{\theta}$ et $\hat{\phi}$ sont les directions des angles en coordonnées sphériques. L'onde partielle

est diffusée dans la direction $\hat{k}_2$ et ce procédé est répété jusqu'au moment où le champ partiel trouve la n -ème et dernière sphère de cette séquence. Pour la dernière diffusion les angle θ_n et ϕ_n sont choisis de façon que $\hat{\theta}_n = \hat{x}$, $\hat{\phi}_n = \pm \hat{y}$ et $\hat{k}_n = \pm \hat{z}$ où le signe + indique la transmission et le signe - indique la réflexion. Nous soulignons qu'en réflexion les champs sont mesurés dans un système de coordonnées qui est une rotation impropre du système du laboratoire (x,y,z) . Le champ partiel qui subit des diffusions multiples à travers une séquence d'indice v , est donné par le produit:

$$E_v = \frac{j \exp(j\rho_n)}{\rho_n} J(\theta_n, \phi_n) \dots \frac{j \exp(j\rho_2)}{\rho_2} J(\theta_2, \phi_2) \frac{j \exp(j\rho_1)}{\rho_1} J(\theta_1, \phi_1) E_0$$

$$= \prod_{\kappa=1}^n \frac{j \exp(j\rho_\kappa)}{\rho_\kappa} J(\theta_\kappa, \phi_\kappa) E_0 \quad (\text{I.B.1})$$

Par le choix des angles de la dernière diffusion, nous imposons que l'onde partielle sorte du milieu dans la direction parallèle ou antiparallèle (transmission ou réflexion) au vecteur d'onde incident.

Le champ électrique sortant (transmis ou réfléchi) de l'échantillon μ est donné par la

somme sur tous les champs partiels: $E(\mu) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{v=1}^N E_v$. Pour un grand nombre de séquences

v , par le fait du théorème de la limite centrale, la partie réelle et imaginaire des composantes du champ superposé $E(\mu)_x = |E(\mu)_x| \exp[j\phi(\mu)_x]$ et $E(\mu)_y = |E(\mu)_y| \exp[j\phi(\mu)_y]$ sont des variables Gaussiennes.¹¹ Les phases $\phi(\mu)_x$ et $\phi(\mu)_y$ sont distribuées uniformément dans l'intervalle $[-\pi, \pi]$ et les modules $|E(\mu)_x|$ et $|E(\mu)_y|$ sont distribués suivant la distribution de Rayleigh:¹¹

$$D_r(|E|) = 2 \frac{|E|}{\langle |E|^2 \rangle} \exp\left(-\frac{|E|^2}{\langle |E|^2 \rangle}\right) \quad (\text{I.B.2})$$

où $\langle \dots \rangle$ est la moyenne d'ensemble. Nous remarquons que la différence de phase $\phi(\mu) = \phi(\mu)_x - \phi(\mu)_y$ est aussi distribuée uniformément dans l'intervalle $[-\pi, \pi]$.

Considérons maintenant un ensemble de M échantillons. La moyenne d'ensemble des intensités de Stokes est reliée aux termes $\langle |E_x|^2 \rangle$, $\langle |E_y|^2 \rangle$ et $\langle E_x E_y^* \rangle$ où $\langle \dots \rangle = \frac{1}{M} \sum_{\mu=1}^M \dots$, où $M \gg 1$. De cette façon nous voyons que c'est la différence de phase $\phi(\mu)$ qui intervient dans les valeurs moyennes. Nous avons donc perdu l'information sur les phases absolues $\phi(\mu)_x$ et $\phi(\mu)_y$. L'intensité moyenne est la somme des intensités de N

séquences de l'échantillon μ et la somme de M échantillons divisée par le produit NM . Ce qui revient à considérer NM échantillons avec une seule séquence par échantillon. Cet argument est valable pour le calcul des premiers moments des intensités, mais pas valable pour le calcul des moments supérieurs qui doivent, eux aussi, suivre la statistique gaussienne comme nous le verrons par la suite. Les intensités moyennes de Stokes sont alors données par:

$$I = \langle i_x \rangle + \langle i_y \rangle, \quad Q = \langle i_x \rangle - \langle i_y \rangle, \quad U = 2\text{Re}(\langle E_x E_y^* \rangle) \text{ et } V = 2\text{Im}(\langle E_x E_y^* \rangle), \quad (\text{I.B.3})$$

où $i_x = |E_x|^2$ et $i_y = |E_y|^2$. Les intensités moyennes de Stokes peuvent être écrites en fonction des intensités de Stokes incidentes i_o, q_o, u_o , et v_o . La règle de somme de Stokes (I.A.8) est vérifiée pour les intensités de Stokes incidentes si l'onde est dans un état de polarisation pure (rectiligne, circulaire ou elliptique). Mais cette règle de somme n'est plus vérifiée pour les intensités moyennes correspondant à des polarisations partielles.

Nous pouvons représenter les intensités moyennes I, Q, U et V comme les composantes d'un vecteur colonne S qui est le vecteur de Stokes. Le vecteur S est connecté au vecteur de Stokes incident S_o à travers la matrice de Mueller M qui peut être obtenue en changeant les variables de l'équation (I.A.7) et en prenant la valeur moyenne:

$$M = \begin{bmatrix} a_1 & b_1 & b_3 & b_5 \\ c_1 & a_2 & b_4 & b_6 \\ c_3 & c_4 & a_3 & b_2 \\ c_5 & c_6 & c_2 & a_4 \end{bmatrix}, \quad (\text{I.B.4})$$

où nous avons utilisé la notation de Perrin.⁵ La caractérisation complète d'un milieu désordonné se fait par la connaissance des seize éléments de la matrice de Mueller. Cependant, si l'on fait la moyenne sur le désordre, le milieu retrouve les symétries qu'il possède en absence de désordre.

De cette façon, pour une incidence et une détection normales aux parois de la tranche, les milieux désordonnés, à une et trois dimensions, présentent deux symétries *i)* rotation autour du vecteur d'onde incident $\hat{k}_o$ et *ii)* réflexion par n'importe quel plan qui contient $\hat{k}_o$. En considérant ces symétries la matrice de Mueller prend la forme:⁵

$$M = \begin{bmatrix} a_1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & a_2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \pm a_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & a_4 \end{bmatrix}, \quad (\text{I.B.5})$$

où le signe + correspond à la transmission et le signe – à la réflexion. Ces milieux sont alors entièrement caractérisés par la connaissance de trois éléments de la matrice M . En général, nous nous sommes intéressés aux rapports $a_2' = a_2/a_1$ et $a_4' = a_4/a_1$. Expérimentalement, deux situations doivent être envisagées pour caractériser le milieu désordonné. La première consiste à envoyer la lumière polarisée linéairement pour connaître a_2' et la seconde à envoyer la lumière polarisée circulairement pour connaître a_4' .

Les milieux désordonnés à deux dimensions sont moins symétriques (après avoir moyenné) que les milieux à une et trois dimensions, ils ne possèdent que la symétrie de réflexion: *i)* par le plan qui contient les diffuseurs (plan de diffusion) et *ii)* par le plan perpendiculaire au plan de diffusion. La matrice de Mueller prend alors la forme:⁵

$$M = \begin{bmatrix} a_1 & b_1 & 0 & 0 \\ b_1 & a_2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & a_3 & b_2 \\ 0 & 0 & -b_2 & a_4 \end{bmatrix}, \quad (\text{I.B.6})$$

en transmission et réflexion. Expérimentalement, pour avoir accès à ces éléments, cinq situations doivent être envisagées, avec polarisation incidente *i)* linéaire en x , *ii)* linéaire en y pour accéder à a_1 , b_1 et a_2 et *iii)* linéaire à 45° pour avoir accès à a_3 , *iv)* circulaire pour avoir accès à a_4 et *v)* elliptique pour avoir accès à b_2 .

Une matrice Hermitique et non-négative peut alors être construite à partir des intensités moyennes de Stokes:

$$C = \frac{I}{2} \begin{bmatrix} I + Q & U + jV \\ U - jV & I - Q \end{bmatrix}. \quad (\text{I.B.7})$$

Cette matrice, introduite par Born et Wolf,¹² est appelée matrice de cohérence. Notons que: *i)* en vertu de l'inégalité de Schwartz, $\text{Det}(C) \geq 0$ et *ii)* $\text{Tr}(C) = I$ (intensité totale) est un invariant. Ses vecteurs propres $\hat{v}_1$ et $\hat{v}_2$ sont orthogonaux et ses valeurs propres I_1 et I_2 sont réelles et non-négatives et représentent les intensités moyennes dans les directions des vecteurs propres $\hat{v}_1$ et $\hat{v}_2$. La base qui diagonalise la matrice de cohérence est la base qui préserve à la fois la symétrie de la tranche et de la polarisation de l'onde incidente. Sans perte de généralité, nous considérons $I_1 \geq I_2$. Le degré de polarisation est ainsi défini comme:

$$P = \frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} = \sqrt{\frac{Q^2 + U^2 + V^2}{I^2}}. \quad (\text{I.B.8})$$

Pour les milieux à une ou trois dimensions nous avons:

$$P = \sqrt{a_2'^2 + (a_4'^2 - a_2'^2) \left(\frac{\nu}{i_0}\right)} . \quad (\text{I.B.9})$$

Dans cette partie nous avons considéré la diffusion multiple de la lumière dans les milieux désordonnés et fait un bref rappel de ce que nous attendons concernant les valeurs moyennes des intensités. Nous mettons l'accent sur le fait que, dans cette approche, nous ne considérons que les diagrammes en échelle de l'équation de Bethe-Salpeter. Nous nous trouvons alors dans le cadre de l'équation de Boltzmann. L'approximation des chemins indépendants revient à considérer des diagrammes en échelles. Ceci nous a permis d'appliquer le théorème de la limite centrale aux séquences (mais pas aux diffuseurs).

Comme dernière remarque, nous soulignons que toutes les dépendances du vecteur de Stokes avec le paramètre de taille (ka), l'indice relatif de réfraction (m) et éventuellement d'autres effets, comme par exemple la rotation Faraday, se trouvent dans les coefficients de Perrin (les éléments de la matrice de Mueller).

1. Séquences Inverses

Nous avons vu qu'une séquence de diffusion est caractérisée par les vecteurs $\hat{k}_0 \rightarrow \hat{k}_1 \rightarrow \dots \hat{k}_n \rightarrow \hat{k}_{n+1}$ où $\hat{k}_{n+1}$ vaut $+\hat{k}_0$ en transmission et $-\hat{k}_0$ en réflexion. En réflexion, nous devons aussi considérer la séquence inverse, c'est-à-dire la séquence $\hat{k}_0 \rightarrow -\hat{k}_n \rightarrow \dots -\hat{k}_1 \rightarrow -\hat{k}_0$. Cette séquence a le même poids que la séquence directe et elle donne lieu au pic du cône de rétrodiffusion. Ces séquences correspondent aux diagrammes croisés dans l'équation de Bethe-Salpeter. Ces séquences ne sont pas considérées dans l'équation de Boltzmann. Si $|E_d| = |E_i| = 1$, le champ normé sortant en réflexion est:

$$E_r = \frac{1}{\sqrt{2}} [E_d + E_i] , \quad (\text{I.B.10})$$

où E_d et E_i représentent les champs qui proviennent des séquences directes et inverses. L'intensité totale est donnée par: $|E_r|^2 = \frac{|E_d|^2 + |E_i|^2 + 2\text{Re}(E_d E_i^*)}{2}$, où le dernier terme tient compte de l'interférence des ondes. La moyenne d'ensemble vaut alors: $\langle |E_r|^2 \rangle = 1 + \langle \cos \Delta \phi \rangle$ où nous avons considéré $\Delta \phi = \phi_d - \phi_i$ qui est la différence de phase entre les chemins direct et inverse. Si $\langle \cos \Delta \phi \rangle = 0$, il n'y a pas de cohérence de phase donc

$|E_r|^2 = 1$, par contre, si $\langle \cos \Delta \Phi \rangle = 1$, il existe une cohérence de phase constructive qui donne lieu au pic du cône de rétrodiffusion. Si E_d est connu, la valeur de E_i peut être obtenue à l'aide du théorème suivant:

Théorème: Considérons un champ incident E_o dans une base (x,y,z) , le champ sortant au bout de la n -ème diffusion est donné par:

$$E_d = \begin{bmatrix} j_{11}^{(n)} & j_{12}^{(n)} \\ j_{21}^{(n)} & j_{22}^{(n)} \end{bmatrix} E_o ,$$

où la diffusion multiple est représentée par les éléments de la matrice de Jones. Pour les diffuseurs sphériques, le champ sortant du chemin inverse est obtenu par "l'anti-transposition" de la matrice de Jones. Donc

$$E_i = \text{AntiTransposition} \begin{bmatrix} j_{11}^{(n)} & j_{12}^{(n)} \\ j_{21}^{(n)} & j_{22}^{(n)} \end{bmatrix} E_o = \begin{bmatrix} j_{11}^{(n)} & -j_{21}^{(n)} \\ -j_{12}^{(n)} & j_{22}^{(n)} \end{bmatrix} E_o .$$

où E_i est mesuré dans un repère qui est une rotation impropre de la base (x,y,z) .

Pour démontrer ce théorème nous allons d'abord considérer une seule diffusion. La matrice de Jones est donnée par l'équation (I.A.2). Les éléments de cette matrice, qui sont donnés par rapport au plan de diffusion, peuvent être écrits dans la base du laboratoire (x,y,z) . Cette représentation a été obtenue par Chandrasekhar et Sekera. Elle a été utilisée par Cheung et Ishimaru dans un calcul numérique de la diffusion multiple utilisant l'équation de Boltzmann. Dans cette représentation, la matrice de Jones est donnée par:

$$J(\hat{k}_1, \hat{k}_0) = \begin{bmatrix} j_{11} & j_{12} \\ j_{21} & j_{22} \end{bmatrix} , \quad (\text{I.B.11.a})$$

où

$$\begin{aligned} j_{11} &= (l,l) X_1 + (r,r) X_2 , & j_{12} &= -(r,l) X_1 + (l,r) X_2 \\ j_{21} &= -(l,r) X_1 + (r,l) X_2 , & j_{22} &= (r,r) X_1 + (l,l) X_2 , \end{aligned} \quad (\text{I.B.11.b})$$

avec

$$\begin{aligned} (l,l) &= \sqrt{(1 - \mu_0^2)(1 - \mu_1^2)} + \mu_0 \mu_1 \cos(\Delta \Phi) , & (l,r) &= -\mu_0 \sin(\Delta \Phi) , \\ (r,l) &= \mu_1 \sin(\Delta \Phi) & \text{et} & (r,r) = \cos(\Delta \Phi) , \end{aligned} \quad (\text{I.B.11.c})$$

et

$$X_1 = -j \frac{S_{\perp}(\cos \theta) - \cos \theta S_{\parallel}(\cos \theta)}{\sin^2 \theta} \text{ et } X_2 = -j \frac{S_{\parallel}(\cos \theta) - \cos \theta S_{\perp}(\cos \theta)}{\sin^2 \theta} , \quad (\text{I.B.11.d})$$

avec $\mu_0 = \cos \Theta_0$, $\mu_1 = \cos \Theta_1$ et $\Delta \Phi = \Phi_0 - \Phi_1$ où Θ_0 , Φ_0 et Θ_1 , Φ_1 sont respectivement les angles polaires de $\hat{k}_0$, le vecteur d'onde incident et de $\hat{k}_1$, le vecteur d'onde diffusé. Le champ électrique est alors écrit dans la base du vecteur d'onde, c'est-à-dire, dans les directions $\hat{\Theta}_1$ et $\hat{\Phi}_1$. Considérons maintenant la diffusion inverse, $k_0' = -\hat{k}_1$ et $\hat{k}_1' = -\hat{k}_0$. Donc $\Theta_0' = \pi - \Theta_1$, $\Theta_1' = \pi - \Theta_0$, $\Phi_0' = \pi + \Phi_1$ et $\Phi_1' = \pi + \Phi_0$, et par conséquent, $\mu_1' = -\mu_0$, $\mu_0' = -\mu_1$ et $\Delta \Phi' = -\Delta \Phi$ font que $(l, r)' = -(r, l)$ et $(r, l)' = -(l, r)$, conduisant à $j_{12}' = -j_{21}$ et $j_{21}' = -j_{12}$. La matrice de Jones de la diffusion inverse est alors donnée par la matrice anti-transposée de $J(\hat{k}_1, \hat{k}_0)$:

$$J(-\hat{k}_0, -\hat{k}_1) = \begin{bmatrix} j_{11} & -j_{21} \\ -j_{12} & j_{22} \end{bmatrix}. \quad (\text{I.B.12})$$

Pour deux diffusions, la séquence directe est donnée par: $J_d = J(\hat{k}_0, \hat{k}_1) J(\hat{k}_1, \hat{k}_0)$, les deux collisions inverses le sont par: $J_i = J(-\hat{k}_0, -\hat{k}_1) J(-\hat{k}_1, -\hat{k}_0)$. Nous voyons que J_i est la matrice anti-transposée de J_d à cause de la composition: $[AB]^{(at)} = [B]^{(at)}[A]^{(at)}$, où $[X]^{(at)}$ désigne l'antitransposition de X . La séquence de diffusions inverse est construite avec le produit: $J(-\hat{k}_0, -\hat{k}_1) \dots J(-\hat{k}_n, -\hat{k}_{n+1})$, par l'application successive de cette règle de composition. Le théorème est ainsi démontré.

C. DISTRIBUTION DES ETATS DE POLARISATION

Dans cette partie nous nous intéressons tout d'abord aux distributions des intensités de Stokes. Ensuite nous présentons une représentation géométrique destinée à comprendre comment la lumière sortant d'un milieu désordonné perd la mémoire de son état de polarisation.

Avant de procéder en général, prenons deux cas particuliers simples.

Considérons une tranche à trois dimensions qui est éclairée par de la lumière polarisée linéairement suivant x , ce qui entraîne $u_o = v_o$ et $q_o = i_o$. L'incidence et la détection sont normales aux parois de la tranche. Dans cette situation $I = a_1 i_o$, $Q = a_2 i_o$ et $U = V = 0$. La matrice de cohérence (I.B.7) est donc symétrique. Donc la base qui diagonalise C est la base x - y et les intensités I_x et I_y sont indépendantes.

Pour une polarisation incidente circulaire, $v_o = \pm i_o$ et $q_o = u_o = 0$, la base qui diagonalise C est la base circulaire $\frac{x \pm jy}{\sqrt{2}}$. Dans cette base, les intensités I_+ et I_- constituent les intensités indépendantes.

En général, les intensités i_1 et i_2 , associées aux vecteurs propres $\hat{v}_1$ et $\hat{v}_2$ de la matrice C , sont des variables indépendantes.¹¹ D'après le théorème de la limite centrale, i_1 et i_2 sont distribués suivant la distribution de Rayleigh. La différence de phase $\phi_{1,2} = \phi_1 - \phi_2$, qui est indépendante de i_1 et i_2 , est distribuée uniformément dans l'intervalle $[-\pi, \pi]$. La densité de probabilité jointe de $|E_1|$, $|E_2|$ et $\phi_{1,2}$ est tout simplement donnée par le produit des distributions de chaque variable:

$$D(|E_1|, |E_2|, \phi_{1,2}) = \frac{I}{2\pi} D_r(|E_1|) D_r(|E_2|) . \quad (\text{I.C.1})$$

En utilisant les relations: $I_1 + I_2 = I$ et $I_1 - I_2 = I P$, et en effectuant le changement de variables $i_1 = |E_1|^2$ et $i_2 = |E_2|^2$ avec $i = i_1 + i_2$, nous obtenons:

$$D(i, i_1 - i_2, \phi_{1,2}) = \frac{I}{\pi I^2 (1 - P^2)} \exp \left[-2 \frac{i - P(i_1 - i_2)}{I(1 - P^2)} \right] . \quad (\text{I.C.2})$$

Considérons maintenant une incidence linéaire en x . La base qui diagonalise C est la base x - y , donc $i_1 = i_x$ et $i_2 = i_y$. Nous avons une distribution de i , $q = i_x - i_y$ et ϕ_{xy} qui est paramétrée par l'intensité totale moyenne et par le degré de polarisation. Nous pouvons alors calculer les premiers moments des intensités de Stokes: $\langle i \rangle = I$, $\langle q \rangle = IP$, $\langle u \rangle = \langle v \rangle = 0$ où $u = \sqrt{i^2 - q^2} \sin \phi$ et $v = \sqrt{i^2 - q^2} \cos \phi$. Les deuxièmes moments sont donnés par: $\langle i^2 \rangle = \langle q^2 \rangle = I^2 \frac{3 + P^2}{2}$ et $\langle u^2 \rangle = \langle v^2 \rangle = I^2 \frac{1 - P^2}{2}$ et les variances par: $\sigma_i^2 = \sigma_q^2 = I^2 \frac{1 + P^2}{2}$ et $\sigma_u^2 = \sigma_v^2 = I^2 \frac{1 - P^2}{2}$, où $\sigma_x^2 = \langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2$. Ces variances satisfont la relation:

$$\sigma_q^2 = \sigma_u^2 = \sigma_v^2 = \sigma_i^2 + I^2 (1 - P^2) , \quad (\text{I.C.3})$$

qui peut être obtenue directement à partir de la règle de somme de Stokes. Nous remarquons que pour la lumière totalement dépolarisée ($P = 0$): $\sigma_i^2 = \sigma_q^2 = \sigma_u^2 = \sigma_v^2 = \frac{I^2}{2}$ et que pour une polarisation complète en x ($P = 1$): $\sigma_i^2 = \sigma_q^2 = I$ et $\sigma_u^2 = \sigma_v^2 = 0$.

La distribution des variables de Poincaré: i , 2χ et 2ψ devient:

$$D(i, 2\chi, 2\psi) = \frac{i \cos(2\chi)}{\pi I^2 (1 - P^2)} \exp \left[2i \frac{1 - P \cos(2\chi) \cos(2\psi)}{I^2 (1 - P^2)} \right] . \quad (\text{I.C.4})$$

En utilisant les intensités réduites q/i , u/i et v/i , les états de polarisation sont alors projetés sur une surface sphérique de rayon unitaire dans la représentation de Poincaré (sphère de Poincaré). Nous obtenons la distribution des angles de Poincaré en intégrant sur l'intensité i . La probabilité d'avoir un état de polarisation dans l'intervalle $[2\chi, 2\chi + d(2\chi)]$ et $[2\psi, 2\psi + d(2\psi)]$ est donnée par:

$$D_L(2\chi, 2\psi) d(2\chi) d(2\psi) = \frac{1 - P^2}{4\pi[1 - P\cos(2\chi)\cos(2\psi)]^2} \cos(2\chi) d(2\chi) d(2\psi) , \quad (\text{I.C.5})$$

où $\cos(2\chi) d(2\chi) d(2\psi)$ est l'élément de surface de la sphère de Poincaré. Pour une lumière totalement dépolarisée sortant d'une tranche, les états de polarisation sont distribués uniformément sur la sphère. Avec cette représentation nous pouvons voir géométriquement qu'un état de polarisation quasi-circulaire (autour du pôle) est moins probable qu'un état quasi linéaire (autour de l'équateur) (Fig. 1.5.a). La dépolarisation complète correspond à un remplissage uniforme de la sphère, l'angle 2χ est distribué suivant $\cos(2\chi)$ tandis que l'angle 2ψ est distribué uniformément.

La distribution des états de polarisation sur la sphère de Poincaré (I.C.5) donne comme premiers moments:

$$\langle \frac{q}{i} \rangle = F_1(P) = \frac{1}{P} \left[1 - \frac{1 - P^2}{2P} \ln\left(\frac{1 + P}{1 - P}\right) \right] \quad \text{et} \quad \langle \frac{u}{i} \rangle = \langle \frac{v}{i} \rangle = 0 , \quad (\text{I.C.6})$$

et comme deuxièmes moments:

$$\langle (\frac{q}{i})^2 \rangle = F_2(P) = \frac{2}{P^2} \left[1 - \frac{1 - P^2}{2P} \ln\left(\frac{1 + P}{1 - P}\right) \right] - 1 \quad (\text{I.C.7.a})$$

et

$$\langle (\frac{u}{i})^2 \rangle = F_3(P) = \langle (\frac{v}{i})^2 \rangle = \frac{1 - P^2}{P^2} \left[\frac{1}{2P} \ln\left(\frac{1 + P}{1 - P}\right) - 1 \right] , \quad (\text{I.C.7.b})$$

qui sont représentés dans la figure 1.6.

Considérons maintenant une polarisation incidente circulaire. La base qui diagonalise la matrice de cohérence est la base circulaire. En développant les intensités de Stokes dans cette base, nous voyons que v agit exactement comme q pour une incidence rectiligne. Donc les valeurs des premier et deuxième moments sont obtenues en interchangeant q et v , dans les équations (I.C.6) et (I.C.7). La distribution des angles de Poincaré devient alors:

$$D_C(2\chi, 2\psi) d(2\chi) d(2\psi) = \frac{1 - P^2}{4\pi [1 - P \sin(2\chi)]^2} \cos(2\chi) d(2\chi) d(2\psi), \quad (\text{I.C.8})$$

l'angle 2ψ est alors distribué uniformément sur la sphère (symétrie de rotation autour de l'axe v/i). La dépolarisation complète correspond à un remplissage uniforme de la sphère, l'angle 2χ est distribué suivant $\cos(2\chi)$ tandis que l'angle 2ψ est distribué uniformément pour toutes les valeurs de 2χ . Pour $P = 0$, les équations (I.C.8) et (I.C.5) convergent vers la même distribution uniforme sur la sphère. Cependant, la tendance vers cette distribution est très différente comme on peut le voir en comparant les figures 1.7 et 1.5.a. La distribution sur la sphère préserve la même symétrie que la polarisation de l'onde incidente. Pour la polarisation linéaire, l'intensité est invariante par des réflexions par le plan qui contient le champ électrique et par le plan perpendiculaire à la direction du champ. La statistique de la polarisation de la lumière est déterminée complètement par la connaissance de D_L et D_C , mais ces distributions sont paramétrées par l'intensité totale (transmise ou réfléchiée par la tranche) et par le degré de polarisation. La dépendance explicite de tous les autres paramètres (tels que la taille des diffuseurs ou l'épaisseur de la tranche) se trouve dans I et P . La polarisation circulaire est invariante par rotation autour de la direction de propagation. Remarquons que le degré de polarisation est défini comme: $P = \frac{\sqrt{\langle q \rangle^2 + \langle u \rangle^2 + \langle v \rangle^2}}{\langle i \rangle}$ donc il ne peut pas être interprété comme étant le "centre de masse" de la distribution sur la sphère de Poincaré puisque cette quantité est donnée par: $\sqrt{\langle q/i \rangle^2 + \langle u/i \rangle^2 + \langle v/i \rangle^2}$. Comme dernière remarque, il faut noter que pour engendrer ces distributions numériquement il est nécessaire de considérer plusieurs séquences par échantillon, recomposer les ondes partielles, puis calculer les moments.

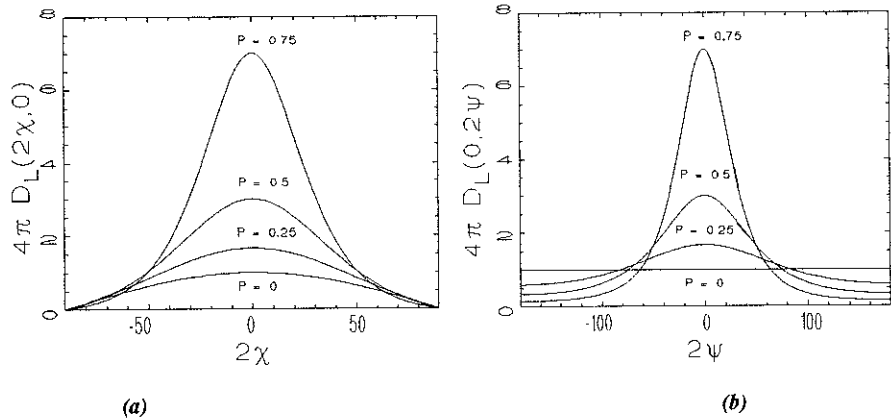


Figure 1.5 Représentation de la relaxation des états de polarisation sur la sphère de Poincaré pour une incidence avec lumière polarisée linéairement en x.

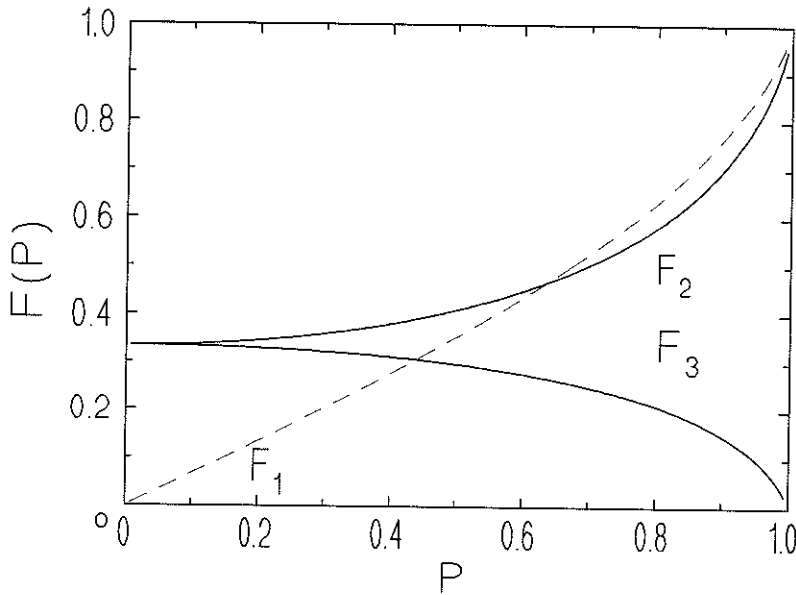


Figure 1.6 Premiers et deuxièmes moments des distributions des états de polarisation (Eq.s. I.C.6, I.C.7.a and I.C.7.b).

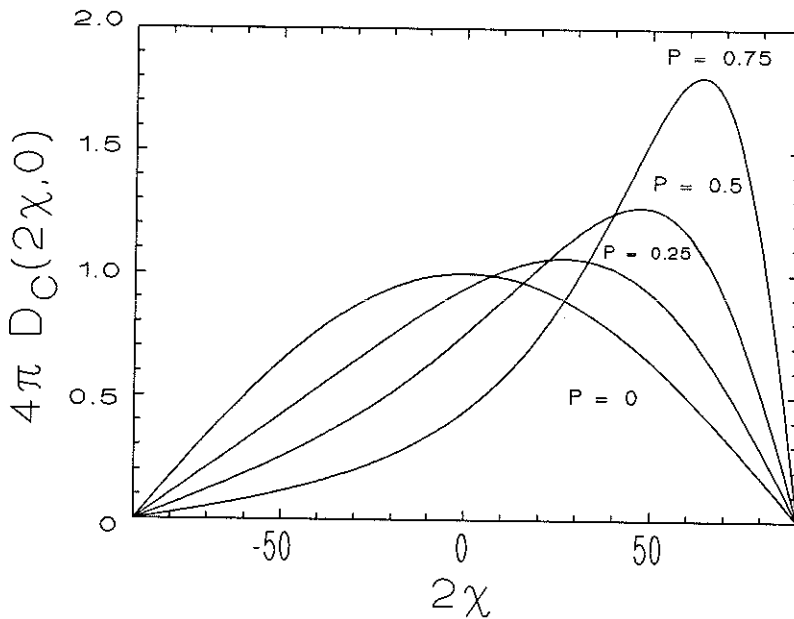


Figure 1.7 Représentation de la relaxation des états de polarisation sur la sphère de Poincaré pour une lumière incidente polarisée circulairement.

D. SIMULATION DE MONTE CARLO

Dans les parties précédentes nous avons présenté la diffusion simple et multiple de Mie en considérant des tranches à faces parallèles. L'objectif est d'obtenir les éléments de la matrice de Mueller qui lie les intensités de Stokes diffusées aux intensités incidentes. Analytiquement, nous pouvons calculer ces éléments si les diffusions sont isotropes (voir référence 9, l'annexe I de ce chapitre et le chapitre VI). Dès que la diffusion n'est plus isotrope, un calcul analytique devient très lourd, même avec des approximations du type Rayleigh-Gans.⁸ Le problème est lié au fait que le champ électrique diffusé par la particule est écrit dans un référentiel local. Pour moyenner les intensités, il est nécessaire de se rapporter à un repère absolu (laboratoire). De plus le repère absolu est nécessaire pour tenir compte de la condition aux bords lorsque le photon sort du milieu.

1. Modélisation

Nous considérons une tranche limitée par deux faces parallèles au plan x - y , où la première face coupe l'axe z à $z = 0$ et la seconde à $z = L$. Le système de coordonnées (x, y, z) est appelé système du laboratoire. A l'intérieur de cette tranche, il y a un milieu homogène et isotrope dont l'indice de réfraction est n_m , et une concentration en volume Φ de sphères de rayon a et d'indice de réfraction n_s qui sont distribuées aléatoirement. Des ondes planes polarisées, de longueur d'onde λ_{vac} , et de vecteur d'onde parallèle à la direction z , illuminent la face $z = 0$ de la tranche. Nous nous intéressons à la lumière transmise et réfléchie après la diffusion multiple.

2. Simulation Numérique

Considérons maintenant l'aspect numérique du problème. Nous avons comme données: a, n_m, n_s, Φ et L . La longueur d'onde dans le milieu entre les parois de la tranche est $\lambda = \lambda_{vac}/n_m$. Nous avons vu que la diffusion de Mie ne dépend que de deux paramètres: ka , où $k = 2\pi/\lambda$ et l'indice de réfraction relatif $m = n_s/n_m$. Nous pouvons ainsi calculer:

- i) la section efficace de diffusion (Eq. I.A.11),
- ii) la section efficace totale (Eq. I.A.12),
- iii) la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion (Eq. I.A.15, voir référence 5 pour la formule en fonction des coefficients a_n et b_n)

et

- iv) les amplitudes de diffusion (Eq. I.A.3 et 4).

Comme nous allons le voir par la suite, il est souhaitable de représenter les données le plus utilisées sous forme d'une table numérique où la première colonne contient $\cos\theta$ et les deux colonnes suivantes les amplitudes de diffusion $S_{//}(\cos\theta)$ et $S_{\perp}(\cos\theta)$. Pour le calcul des polynômes de Legendre des amplitudes de diffusion (Eq. I.A.5), nous utilisons un algorithme adapté de la référence 13 et de la formule de récurrence 8.5.2 trouvée dans la référence 14. Dans la dernière colonne de cette table nous mettrons les valeurs de la fonction cumulative de la fonction de phase: $\frac{1}{4\pi\sigma_s} \int_{-1}^{\cos\theta} d(\cos\theta') \sigma_d(\cos\theta')$, où, comme dans les simulations précédentes¹⁵⁻¹⁷, nous faisons l'approximation que: $|S_{//}(\cos\theta)|^2 \approx |S_{\perp}(\cos\theta)|^2$ et donc que la section efficace différentielle σ_d (Eq. I.A.10) ne dépend ni de l'angle azimutal ϕ ni de l'état de polarisation incident. Nous avons partagé cette table en 180 valeurs de $\cos\theta$ uniformément distribuées.

Il reste à calculer numériquement les coefficients de Mie a_n et b_n (Eq. I.A.6). Pour cela, nous employons la méthode de Grehan et Gouesbet,¹⁸ qui utilise l'algorithme de Lentz¹⁹ pour l'obtention des fonctions de Bessel. Cet algorithme présente quelques avantages par rapport aux algorithmes plus traditionnels (trouvés dans la référence 13, par exemple): le principal est qu'il est stable si les arguments sont complexes, ce qui est le cas lorsque l'absorption est prise en compte. Les coefficients a_n et b_n avec ka fixé sont des valeurs complexes et n varie de 1 à l'infini. Pour $n < ka$ les coefficients sont grands et ils tombent très rapidement pour $n \approx ka$ et sont virtuellement nuls quand n dépasse ka de 10. Ceci est confirmé par leurs expressions asymptotiques.⁵ Nous considérons la valeur de coupure comme étant au moins $ka + 30$. Dans la référence 18 se trouvent des tableaux de données plus récentes qui nous permettent de tester cette partie du programme.

Comme nous l'avons montré dans la section B, pour un échantillon, le champ électrique sortant est la somme de tous les champs partiels, c'est-à-dire les champs qui viennent des différentes séquences de diffusion. Comme ces séquences sont indépendantes, au lieu de considérer M séquences pour chaque échantillon, et N échantillons, nous pouvons considérer une seule séquence, mais NM échantillons. Cet argument est valable si l'on ne s'intéresse qu'à la valeur moyenne des intensités. Nous soulignons que cet argument n'est pas valable si l'on s'intéresse aux écarts types par exemple: dans ce cas la recombinaison des champs partiels est nécessaire. Il est loisible de considérer ces deux situations. La recombinaison de champs partiels est nécessaire pour obtenir des distributions, comme par exemple les distributions d'intensités ou la distribution des états de polarisation. Par contre, pour obtenir les valeurs moyennes nous considérons une séquence par échantillon puisque l'algorithme est alors beaucoup plus rapide.

3. Algorithme

Considérons maintenant les séquences de diffusion. La méthode de Monte Carlo pour engendrer ces séquences suit le schéma suivant:

1. Le photon est injecté dans la tranche à l'origine du système de coordonnées.
2. Il se propage sur une distance r , qui est donnée par une distribution exponentielle dont la valeur moyenne est le libre parcours moyen $\ell = \frac{1}{\sigma_t \Phi}$.
3. La possibilité de quitter la tranche est examinée. Si 'Oui' aller à 9.
4. La possibilité d'absorption est examinée. Si 'Oui' aller à 1.
5. Les coordonnées de la collision sont calculées.
6. L'angle de diffusion est donné par la loi de phase de Mie et l'angle azimutal est donné par une distribution uniforme.
7. La nouvelle direction est calculée dans le repère absolu et la matrice de Jones est obtenue dans la représentation de Chandrasekhar-Sehera.
8. Retourner en 2.
9. Le photon quitte la tranche. Vérification si il été transmis ou en réfléchi.
10. La dernière collision est reprise.
11. Le photon va quitter la tranche perpendiculairement aux parois.
12. La matrice de Jones et le poids de la séquence (donné par la fonction de phase de la dernière collision) sont calculés.
13. Si réflexion, calculer le champ de la séquence inverse par le théorème de la séquence inverse.
14. Si l'option "recomposer les champs" a été choisie.
 - a. Additionner le nouveau champ au précédent.
 - b. Si le nombre de séquences est plus petit que N_s , où N_s dépend de la précision choisie pour la simulation (remarque *iii*, ci-dessous) retourner en 1.
15. Calcul de la matrice de Mueller.
16. Calcul des valeurs moyennes en tenant compte du poids de chaque séquence.
17. Si le nombre de séquences est plus petit M (pour simplifier nous avons pris $M = N_s$), retourner en 1.

Nous avons quelques remarques à faire par rapport à ce schéma.

i) L'angle azimutal ϕ est donné par une distribution uniforme tandis que l'angle de diffusion θ est choisi suivant la méthode de la fonction cumulative, comme dans la référence 16. Les éléments de cette table sont interpolés linéairement. C'est la raison pour laquelle nous avons construit une table de valeurs. Rigoureusement, cette approximation peut être justifiée pour les grandes sphères. Pour les sphères de Mie, il biaise les chemins de diffusion, cependant, les champs électriques sont calculés correctement par les formules de Mie. Jusqu'à présent, ce biais n'a pas été estimé. La vraie distribution de Mie pose un gros problème de temps de calcul car elle dépend de l'angle azimutal ϕ et elle est paramétrée par l'état de polarisation incidente, pire encore, elle est non-séparable. Pour engendrer cette distribution numériquement nous devons faire appel à la méthode de refus¹³ ("rejection method") qui est très inefficace. En bref, le rapport biais/temps de calcul est, de loin, plus favorable à la méthode de la fonction cumulative, ce qui explique son utilisation dans des simulations précédentes.¹⁵⁻¹⁷ Cette méthode constitue ainsi le meilleur choix sur le "marché" des algorithmes.

ii) Le calcul des éléments de la matrice de Jones pose des problèmes de convergence, nous devons normaliser ces éléments. Il existe plusieurs méthodes pour le faire. Nous avons choisi comme règle de normalisation: $|j_{11}|^2 + |j_{12}|^2 + |j_{21}|^2 + |j_{22}|^2 = I$ (Eq. I.A.2) à chaque collision. Cette normalisation donne une intensité unitaire le long de la direction x pour l'onde sortante, ce qui est pratique pour étudier le cône de rétrodiffusion.

iii) La précision de la simulation dépend du nombre de séquences tirées (N_s) et varie comme $1/\sqrt{N_s}$ (pas 17). Cette même observation est valable pour le nombre de séquences nécessaires pendant la recombinaison des champs (pas 14.b).

iv) Le générateur de nombres aléatoires est une pièce importante dans une simulation de Monte Carlo. Nous avons choisi le générateur RAN3 trouvé dans la référence 13.

v) Nous soulignons que cette méthode de Monte Carlo n'est pas équivalente à la solution de l'équation du transfert radiatif. Elle présente des différences à un niveau fondamental puisqu'avec l'équation de transfert radiatif on ne peut pas recomposer les champs et avoir les distributions des intensités ou des états de polarisation, par exemple. De plus,

avec l'équation du transfert radiatif, on ne tient pas compte des chemins inverses qui sont importants pour la réflexion. Une différence importante entre l'équation de transfert radiatif et la méthode de Monte Carlo est que dans l'équation de transfert radiatif, chaque élément de volume doit contenir un grand nombre de diffusions, de façon que l'intensité spécifique puisse être considérée comme une valeur moyenne. Ce procédé est approché et nous le discuterons en détail dans le chapitre II en le comparant au problème de la marche au hasard où des solutions exactes existent.

4. Curiosités

Pour traiter l'anisotropie de la diffusion de la lumière, nous avons écrit un code de simulation numérique du type Monte Carlo. Ce code a été écrit en FORTRAN pour la facilité de ce langage à manipuler les nombres complexes. Vu le développement très rapide de la puissance des ordinateurs personnels, nous nous sommes attachés à la portabilité du programme. Actuellement, ce programme, de 3000 lignes environ, tourne facilement dans les machines du type station de travail (IBM RISC 6000). Etant donné ses fonctions et ses objectifs, nous l'avons baptisé "SLab." qui veut dire "tranche", mais aussi "Scatterings Laboratory".

5. Améliorations

Pour terminer cette section, nous proposons quelques améliorations qui n'ont pas encore été faites. Comme les modules de l'amplitude de diffusion peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur et que la partition uniforme de la table de valeurs donne le même poids pour chaque valeur, une partition non-uniforme, où l'on pourrait choisir des bonnes régions pour une interpolation linéaire, permettrait de diminuer le nombre de valeurs de la table. Cela économiserait du temps de calcul pour engendrer chaque collision. Concernant la distribution de phase approchée de Mie, une étude plus approfondie, en comparant avec la vraie distribution, serait très souhaitable.

E. CONCLUSION

Dans ce chapitre nous avons considéré la propagation de la lumière dans un milieu diffusif. Nous nous sommes placés dans le cas de diffuseurs sphériques et d'ondes électromagnétiques planes en utilisant la diffusion de Mie. La modélisation consiste à supposer que chaque onde partielle subit des séquences de diffusion multiple. Les champs sortant sont recomposés et nous obtenons ainsi le champ total diffusé par l'échantillon. En réflexion, nous avons montré que le champ électrique de la séquence inverse, séquence qui

donne lieu au cône de rétrodiffusion, peut être obtenu à partir de la séquence directe par une opération mathématique simple d'"antitransposition" de la matrice de Jones effective. Nous avons donc écrit un code de simulation de Monte Carlo à partir de ce résultat qui est fondamentalement différent d'une modélisation partant de l'équation du transfert radiatif.²⁰ La différence entre notre simulation et celles de Butcher,¹⁵ Kunkel et Weinman¹⁶ et Bruscaaglioni et Zaccanti¹⁷ est que nous considérons la propagation des champs électriques et non la propagation des intensités, ce qui nous permet d'avoir numériquement toutes les distributions statistiques à partir de la recombinaison des champs. L'autre différence importante est que dans leurs simulations, les effets de la localisation faible de la lumière ne sont pas pris en compte.

En utilisant le théorème de la limite centrale, nous avons obtenu analytiquement les distributions des intensités de Stokes et des états de polarisation. Il s'avère que le milieu désordonné à trois dimensions est parfaitement caractérisé par trois paramètres: l'intensité totale (transmise ou réfléchi), les degrés de polarisation pour une lumière incidente polarisée linéairement ou circulairement. Notre approche pour décrire le processus de dépolariation de la lumière incidente par le milieu désordonné généralise celle de Cohen, Eliyahu, Freund et Kaveh,¹ puisque nous considérons la polarisation incidente circulaire en plus de la linéaire. Nous proposons de représenter ces processus dans la représentation de Poincaré qui fournit une image géométrique des différents mécanismes de dépolariation.

Nous avons aussi étudié le problème de la diffusion de la lumière par un milieu désordonné à deux dimensions (annexe I). Nous avons obtenu les intensités de Stokes pour ce milieu à partir d'un calcul complet de tous les éléments de la matrice de Mueller. Notre approche permet d'expliquer, à partir d'un point de vue microscopique, les expériences de Freund.³

Pour terminer ce chapitre, nous soulignons que les séquences de diffusions représentent la diffusion multiple des champs partiels. Pour le calcul des intensités, nous pouvons considérer un seul champ partiel par échantillon mais beaucoup plus d'échantillons. De plus, le théorème de la limite centrale a été appliqué aux séquences de diffusion, au moment de la recombinaison des champs, et pas aux diffuseurs. Nous pouvons ainsi avoir des séquences qui comportent peu de diffusions.

F. REFERENCES

1. S.M. Cohen, D. Eliyahu, I. Freund and M. Kaveh, *Phys. Rev. A* **43**, 5748 (1991).
2. A.S. Martinez and R. Maynard, in: *"Localization and Propagation of Classical Waves in Random and Periodic Structures,"* edited by: C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Cooperation, New York (à paraître).
3. I. Freund, *Waves in Random Media* **1**, 245 (1991).
4. J. Stratton, *"Electromagnetic Theory,"* McGraw-Hill Book Co. (1941).
5. H.C. Van de Hulst, *"Light Scattering by Small Particles,"* Dover Publications, New York (1981).
6. M. Kerker, *"The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation,"* Academic Press, New York (1969).
7. C. Yeh, *Phys. Rev.* **135**, A1193 (1964).
C. Flesia, A. Mugnai and L. Stefanutti, *"Depolarization Effect by Nonspherical Particles on the Lidar Signal,"* in: *Topical Meeting on Atmospheric, Volume and Surface Scattering and Propagation*, Florence (1991).
8. A. Ishimaru, *"Wave Propagation and Scattering in Random Media,"* Academic Press, New York (1978).
9. E. Akkermans, P.E. Wolf, R. Maynard and G. Maret, *J. Phys.* **49**, 77 (Paris) (1988).
10. L. Landau and E. Lifchitz, *"Cinétique Physique,"* Editions Mir (1990).
11. J. Goodman, *"Statistical Optics,"* John Wiley & Sons, New York (1985).
12. M. Born and E. Wolf, *"Principles of Optics,"* Pergamon Press, Oxford (1975).
13. W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky and W.T. Vetterling, *"Numerical Recipes, The Art of Science Computing,"* Cambridge University Press, Cambridge (1989).
14. I.A. Stegun, in *"Handbook of Mathematical Functions,"* Edited by: M. Abramowitz and I.A. Stegun, Dover Publications, New York (1972).
15. E.A. Butcher, *Appl. Opt.* **12**, 2391 (1973).
16. K.E. Kunkel and J.A. Weinman, *J. Atmos. Sci.* **33**, 1772 (1976).
17. P. Bruscaaglioni and G. Zaccanti, in: *"Scattering in Volume and Surfaces,"* Edited by: M. Nieto-Vesperinas and J.C. Dainty, Elsevier Publishers B.V. (1990).
18. G. Grehan and G. Gouesbet, *Appl. Opt.* **18**, 3489 (1979).
19. W.J. Lentz, *Appl. Opt.* **15**, 668 (1976).
20. G.I. Marchuk, G.A. Mikhailov, M.A. Nazaraliev, R.A. Darbinjan, B.A. Kargin and B.S. Elepov, in *"The Monte Carlo Methods in Atmospheric Optics,"* Springer-Verlag Berlin (1980).

ANNEXE I

POLARIZING BEHAVIOR OF THE TWO-DIMENSIONAL MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT

A.S. Martinez and R. Maynard

Laboratoire d'Expérimentation Numérique and
Centre de Recherche sur les Très Basses Températures
Maison des Magistères CNRS
BP 166
38042 Grenoble Cedex 9 France

ABSTRACT

The calculation of the multiply scattered intensities and polarization degree is presented for a two-dimensional optical medium from a microscopic point of view. The calculation is exact and takes correctly into account the boundary as well as the absorption and the reversed paths in reflection. We find that the multiple scattering does not alter the incident linear polarization perpendicular or parallel to the scattering plane. The persistence of the perpendicular polarization state is robust while the persistence of the parallel one is unstable, originated by the boundary effect. For arbitrary incident polarization, the multiple scattering medium acts like a polarizer in the diffusion regime. These effects were indeed observed experimentally. The method is applied to thin cylinders for which we give explicit expressions for the intermediate regime of the polarization degree as a function of the number of scatterings.

Recently a growing interest has been observed on the multiple scattering of waves in low dimensional systems.¹ It is known that in two dimensions and for a disordered structure, the likelihood of the localization is stronger than in three dimensions. The first experiments on these reduced dimensionality systems started to appear only in the last years. Two-dimensional optical scattering media have been constructed by van der Mark,² Dalichouch *et al.*,³ with the object of observing the localization of light and by Freund⁴ with the objective to study the problem of the polarization. In fact, the multiple scattering of waves in disordered media is well known within four approximations: scalar waves, point-like scatterers, independent Feynman paths and weak disorder.⁵ The vectorial nature of the electromagnetic waves is often neglected. Freund's main experimental results for the polarization are: *i*) if the information about the total intensity is lost, the medium is fully described by three elements of the Mueller matrix and *ii*) linearly incident polarized light along one of the two symmetry directions (parallel or perpendicular to the scattering plane) remains linearly polarized.

These results have been obtained for the backscattering configuration and they have been explained by a phenomenological approach, with arguments based on the diffusion approximation. This approach presents some difficulties since for reflection, the diffusion approximation is not entirely justified, since the most probable scattering paths are short. Also, the reversed paths, which give rise to the weak localization, were not taken into account. A more rigorous analytical treatment as well as a better description of how the diffusion regime is reached is desired.

In this letter we present a calculation, from a microscopic point of view, of the elements of the Mueller matrix when light is multiply scattered in a two-dimensional random medium. We are able to study the intermediate regime (between the single and diffusive scatterings). The medium is formed by long circular cylinders, which may be absorbing, aligned on the y -direction and randomly distributed on the plane x - z , confined in a strip of thickness L ($0 < z < L$). For transmission and reflection, we obtain a complete memory of the polarization for incident linearly polarized light perpendicular and parallel to the cylinders axis. This result is independent of the radius of the cylinders, wavelength and absorption. The multiply scattered polarization state is the same as the incident one, as it was observed experimentally. We show that for the perpendicular incidence with respect to the cylinder axis, this polarization memory is a consequence of the boundaries. For other incident polarization states and for thin circular cylinders, we show that, contrary to point-like (Rayleigh) scatterers, the polarization degree P depends on the relative refractive index. For few scatterings, P decreases as the number of scatterings n increases. As n increases further, P also increases, in such a way that in the diffusion regime ($n \gg 1$) the multiple scattered light is linearly polarized along the direction of the cylinders axis. The medium

acts like a polarizer as pointed out by Freund.⁴ This processus is described geometrically by means of the Poincaré representation.

The scattering of polarized light by a circular cylinder of arbitrary size can be calculated exactly.^{6,7} A plane electromagnetic wave, with electric field E_0 , propagates toward the positive z with wavevector $\hat{k}$ in an isotropic, non-absorbing and homogeneous medium with refractive index n_m . It is then scattered by an infinite circular cylinder, of radius a and refractive index n_c , aligned along the direction y located at the origin of a coordinate system. In general, n_c can be complex, but if it is real, the scattering is elastic and the scattered wave propagates in the direction $\hat{k}'$, with $|\hat{k}| = |\hat{k}'|$. In cylindrical coordinates, at the position r , so that $\rho \gg ka$ ($\rho = kr$), the scattered electric field E_s is nearly transverse (far-field approximation). The perpendicular and parallel components of the electric field relative to the cylinder axis (directions $\hat{y}$ and $\hat{\theta}$) respectively, where θ is the angle between $\hat{k}$ and $\hat{k}'$, are given, in terms of the Jones matrix by:

$$E_s = \sqrt{\frac{2}{\pi\rho}} e^{-j(\rho + 3\pi/4)} \begin{bmatrix} T_2(\theta) & 0 \\ 0 & T_I(\theta) \end{bmatrix} E_0 \quad (1)$$

It must be emphasized that the components of the electrical field E_0 and E_s are not given in the same frame: E_0 has components in the absolute frame and E_s in the k -frame (rotated from the absolute one by the angle θ). The Jones matrix is θ dependent and diagonal, since the incidence is normal to the cylinder axis. Its elements are the parallel and perpendicular factors $T_2(\theta)$ and $T_I(\theta)$, respectively, found in references 6 or 7. We stress that the scattering is anisotropic and changes the polarization of the incident wave which, in general, becomes elliptically polarized. This scattering is governed by two parameters, the size parameter ka and the relative refractive index $m = n_c / n_m$. The fundamental property of this optically two-dimensional medium is that the field components are not mixed due to the translational invariance of the scattering system along cylinder axis.

To study the multiple scattering of light by a disordered sample, let us consider long circular cylinders of radius a aligned along the direction y and randomly distributed in a slab between $z = 0$ and $z = L$. The light source and the receivers are far away from this region and detection is performed in the direction of the incident light either in transmission or in reflection. A partial field trajectory is obtained by considering an incident plane electromagnetic wave, with electric field E_0 , propagating along the positive z axis and then scattered by a cylinder. A new coordinate system is considered (x_I, y, z_I) with origin at the center of this cylinder and directions $\hat{x}_I = \hat{x}$ and $\hat{z}_I = \hat{z}$. In the frame (x_I, y, z_I) the scattering angle is θ_I , for the scattered wave vector $\hat{k}_I = \hat{r}_I$, the scattered electric field is given by Eq. 1 in the far field approximation. Let us consider a second cylinder at this position. Again, at

the center of this cylinder we consider a new coordinate system (x_2, y, z_2) with $\hat{x}_2 = \hat{\theta}_1$ and $\hat{z}_2 = \hat{k}_1$. This frame is the rotated of $\hat{\theta}_1$ with respect to (x_1, y, z_1) . The partial field is scattered along $\hat{k}_2$ and this procedure is repeated successively until the partial field meets the n -th and last cylinder of this sequence. For the last scattering we impose that the angle θ_n is such that $\hat{\theta}_n = \pm \hat{x}$ and $\hat{k}_n = \pm \hat{z}$ (+ for transmission and - for reflection). In the laboratory frame the multiply scattered emergent partial field of the sequence is given by the product from the right- to the left-hand side:

$$E = \prod_{\kappa=1}^n \sqrt{\frac{2}{\pi \rho_{\kappa}}} \exp[-j(\rho_{\kappa} + 3\pi/4)] \begin{bmatrix} T_2(\theta_{\kappa}) & 0 \\ 0 & T_1(\theta_{\kappa}) \end{bmatrix} E_0. \quad (2)$$

The exit condition is readily expressed in transmission by: $\Sigma_{\kappa=1}^n \theta_{\kappa} = 2p\pi$ with p an integer and in reflection by: $\Sigma_{\kappa=1}^n \theta_{\kappa} = 2(p-1)\pi$. We notice that *i*) the field is measured in reflection in a basis which is an improper rotation of the base (x, y, z) and *ii*) since the y -component is unchanged during the multiple scattering, only the component of the electric field parallel to the scattering plane is changed.

For light, because of the vectorial nature of the field, a disordered medium is entirely characterized if the distributions of the Stokes intensities are known for a given incidence. The electric field of multiply scattered waves emerging from the medium in a fixed direction, say, direction z , for a given incident polarization, can be written in a matrix form, the coherence matrix:^{8,9} $C = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} I+Q & U+jV \\ U-jV & I-Q \end{bmatrix}$, where $j = \sqrt{-1}$ and $I = \langle i \rangle$, $Q = \langle q \rangle$, $U = \langle u \rangle$ and $V = \langle v \rangle$ are the Stokes intensities averaged over the disorder with: $i = |E_x|^2 + |E_y|^2$, $q = |E_x|^2 - |E_y|^2$, $u = 2\text{Re}(E_x E_y^*)$ and $v = 2\text{Im}(E_x E_y^*)$. The polarization degree is defined as: $P \equiv \sqrt{\frac{Q^2 + U^2 + V^2}{I^2}}$.

The whole description of the polarization statistics is given by the knowledge of the polarization degree for a given incident polarization state,¹⁰⁻¹² which depends on the coherence matrix. The Stokes intensities are related to the incident ones throughout the Mueller matrix which has sixteen elements. The average over the disorder takes into account the symmetries of the boundaries and eight of these sixteen elements vanish.⁶

The ensemble average makes the system invariant by the global symmetries of the sample, which in two dimensions are: *i*) reflection by the scattering plane and *ii*) reflection by a plane perpendicular to it. The averaged Stokes intensities are then given by:

$$\begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_1 & b_1 & 0 & 0 \\ b_1 & a_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & a_4 & -b_2 \\ 0 & 0 & b_2 & a_4 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_o \\ q_o \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}, \quad (3)$$

where $a_1 = (J_{22} + J_{11})/2$, $b_1 = (J_{22} - J_{11})/2$, $b_2 = 2\text{Im}(J_{21})$ and $a_4 = 2\text{Re}(J_{21})$ with $J_{ij} = \langle \Pi_{\kappa} \frac{2T_i(\theta_{\kappa})T_j(\theta_{\kappa})^*}{\pi\rho_{\kappa}} \rangle$, where $ij = 1, 2$ or x, y .

The degree of polarization for incident light in a pure state $i_o^2 = q_o^2 + u_o^2 + v_o^2$, is given by:

$$P^2 = 1 - \frac{(1 - a_4'^2 - b_1'^2 - b_2'^2)(1 - q_o'^2)}{(1 + b_1'q_o')^2}, \quad (4)$$

with $q_o' = q_o/i_o$ and $b_1' = b_1/a_1$, $b_2' = b_2/a_1$ and $a_4' = a_4/a_1$. We notice that in this case P depends on the incident polarization state through the ratio q_o/i_o . It is seen that for incident linearly polarized light perpendicular or parallel to the cylinders axis, $u_o = v_o = 0$ and $q_o = \pm i_o$, so that $P = 1$. Hence, for these incident polarization states, the multiple scattering of light does not destroy the polarization of incident light. Polarization parallel to the cylinders axis remains in the same polarization state after each scattering. On the other hand, perpendicular polarization to the cylinder axis, the components x and z , in the laboratory frame, are randomized by the multiple scattering, but because of the exit condition, the z -component necessary vanishes! This polarization memory was observed in the reflection experiment.⁴

Let us now consider the average over the configuration of the cylinders in transmission:

$$J_{ij} = \left[\prod_{\kappa=1}^n \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\theta_{\kappa} T_i(\theta_{\kappa}) T_j(\theta_{\kappa})^* \right] \delta(\Sigma_{\kappa} \frac{n}{l} \theta_{\kappa} - 2p\pi). \quad (5)$$

The delta-function assures that the emerging wave vector is perpendicular to the boundary. This function can be written as: $\delta(\Sigma_{\kappa} \frac{n}{l} \theta_{\kappa} - 2p\pi) = \sum_{v=-\infty}^{\infty} \exp(jv \Sigma_{\kappa} \frac{n}{l} \theta_{\kappa})$ for transmission, and as: $\delta(\Sigma_{\kappa} \frac{n}{l} \theta_{\kappa} - (2p - 1)\pi) = \sum_{v=-\infty}^{\infty} (-1)^v \exp(jv \Sigma_{\kappa} \frac{n}{l} \theta_{\kappa})$ in reflection, leading to:

$$J_{ij} = \sum_{\nu=-\infty}^{\infty} \begin{bmatrix} 1 \\ (-1)^{\nu} \end{bmatrix} F_{ij}(\nu)^n \quad \text{with} \quad F_{ij}(\nu) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\theta \, T_i(\theta) T_j(\theta)^* e^{j\nu\theta}, \quad (6)$$

as the scatterings are independent. The upper value concerns the transmission and the lower one reflection.

So far we have considered the direct paths, nevertheless we know that in reflection the reversed sequences have the same weights. If the incidence and detection are perpendicular to the slab, the reversed scattering sequence can be obtained by anti-transposing the Jones matrix of the direct sequence. The proof of this statement will appear in reference 12. For the two-dimensional optical medium, the Jones matrix of each sequence is diagonal so that the reversed sequences interfere constructively with the direct ones. Nevertheless, the polarization degree is insensitive to the backscattering enhancement and the factor 2 cancels off in the polarization degree as indicated in Eq. 4.

The calculation can be carried out completely in the "Rayleigh" limit ($ka \ll 1$). For thin cylinders the T -factors are given by: $T_1(\theta) = j\gamma$, $T_2(\theta) = G(m)\gamma \cos(\theta)$ with $\gamma = \frac{\pi(ka)^2(m^2 - 1)}{4}$ and $G(m) = \frac{-2}{m^2 + 1}$, where γ and $G(m)$, where $|G(m)| \leq 1$, are functions of the complex relative refractive index m which takes the absorption into account. The absorption plays a different role in T_1 and T_2 . In units of $|m|^{2n}$, we obtain from Eq. 6 :

$$J_{11} = 1, \quad J_{22} = g^n (1 + \frac{1}{2^{n-1}}) \quad \text{and} \quad J_{21} = \pm 2 \left(\frac{-jG(m)}{2} \right)^n, \quad (7)$$

where $g = |G(m)|^2/2$ and the plus sign is for transmission and the minus one for reflection.

The elements of the Mueller matrix a_1, a_4, b_1 and b_2 can be calculated:

$$b_1' = \frac{g^n(1 + 1/2^{n-1}) - 1}{g^n(1 + 1/2^{n-1}) + 1}, \quad b_2' = \pm \frac{4\text{Im}[(-jG(m)/2)^n]}{g^n(1 + 1/2^{n-1}) + 1}, \quad a_4' = \pm \frac{4\text{Re}[(-jG(m)/2)^n]}{g^n(1 + 1/2^{n-1}) + 1}. \quad (8)$$

The asymptotic values are: $b_1' = -(1 - 2g^n)$, $b_2' = \pm 4\text{Im}[(-jG(m)/2)^n]$ and $a_4' = \pm 4\text{Re}[(-jG(m)/2)^n]$. For $m = 1$, the factors $T_1(\theta)$ and $T_2(\theta)$ are the perpendicular and parallel scattering amplitudes for the Rayleigh spheres. The polarization degree is obtained from the above equations with Eq. 4 and reads:

$$P_n(g, q_o')^2 = 1 - \frac{4g^{2n}[2^n(1 + 1/2^{n-1}) - 4](1 - q_o'^2)}{2^n[1 - q_o' + g^n(1 + 1/2^{n-1})(1 + q_o')]} \quad (9)$$

This function is plotted in figure 1. We stress that the polarization degree is obtained in the approximation of independent paths and correctly takes into account the boundary effects. This can be seen in the limiting case of only one scattering. In this case, the scattering is either forwards or backwards and the polarization degree is not changed, so that for $n = 1$, Eq. 9 gives $P = 1$. The polarization degree depends on the absorption through g . This dependence in the relative refractive index (absorption) is not seen for point-like scatterers in three dimensions.^{14,15} In the diffusion regime $n \gg 1$, the polarization degree is simply given by: $P_n(m) = 1 - g^{2n}(1 - q_o'^2)/(1 - q_o')^2$. As the number of scattering increases, the polarization degree also increases, converging to a pure polarization state ($P = 1$) for $n \gg 1$. The multiple scattered light is then linearly polarized when the number of scattering is large. The emerging polarization is always polarized parallel to the cylinders axis, except for incident linearly polarized light perpendicular to the cylinders axis which is not altered. If the medium is illuminated with non-polarized light, the multiply scattered light will be polarized in the direction parallel to the cylinder axis. This polarizer behavior of the two dimensional scattering medium was observed experimentally by Freund.⁴

We point out that in the phenomenological calculation carried out by Freund, he uses the function $G_n = (1/2)^n$ which is one result obtained for punctual scatterers in three dimensions.¹⁵ In our calculation, since the Stokes intensities are obtained from the T -factors of the cylinders, this consideration is not necessary, the result comes out automatically. For cylinders this factor $G_n = (IG(m)/2)^n$ and depends on the absorption through the relative refractive index of the medium. The approach we have used is very general and furnishes the basis for a numerical calculation (Eq. 6) for thick cylinders. The polarization degree can also be written as a function of the slab length: $P(L, m) = \int_0^\infty dn D(L; n) P_n(g, q_o')$, where $D(L; n)$ is the distribution of the paths with n scatterings for a two-dimensional medium of thickness L . So that for thick strips $P(L, m) = 1$.

As illustrated in figure 1, a partial depolarization of the light appears for small values of n and non special direction of incident polarization. This can be understood in the Poincaré representation. By considering n as an iteration parameter, the points A ($Q/I = 1$) and B ($Q/I = -1$) must be considered as fixed points. The point A is a repulsive fixed point, the polarization is maintained only along the x -axis (perpendicular to the cylinder axis) during the iteration for an initial linear polarization along $\hat{x}$, it is an effect of the boundary condition. On the other hand, the point B corresponds to the polarization along the y -axis (parallel to the cylinders axis), it is an attractive fixed point. All the initial polarization states with $Q/I \neq 1$ (it

is not important how close it is from the point A) will converge to B for $n \gg 1$, where the polarization degree becomes 1 again.

In summary, the main result of this letter is that the electric field can be obtained by the elements J_{ij} in Eq. 6, which takes into account the boundary condition of the light exiting the strip in transmission and reflection as well as the microscopic nature of the scatterer (the T -factors). From the values of J_{ij} , a better description of how the system reaches the diffusion regime can be given. Explicit expressions are given for the multiple scattering by thin cylinders. Our approach to the problem gives a better support to Freund's experimental results.⁴ These analytical results have been used as a test to a more general Monte Carlo simulation.¹¹⁻¹³ These results can also be considered as a limiting case when a magnetic field is applied to the sample producing a Faraday rotation in between the scatterings.¹⁴

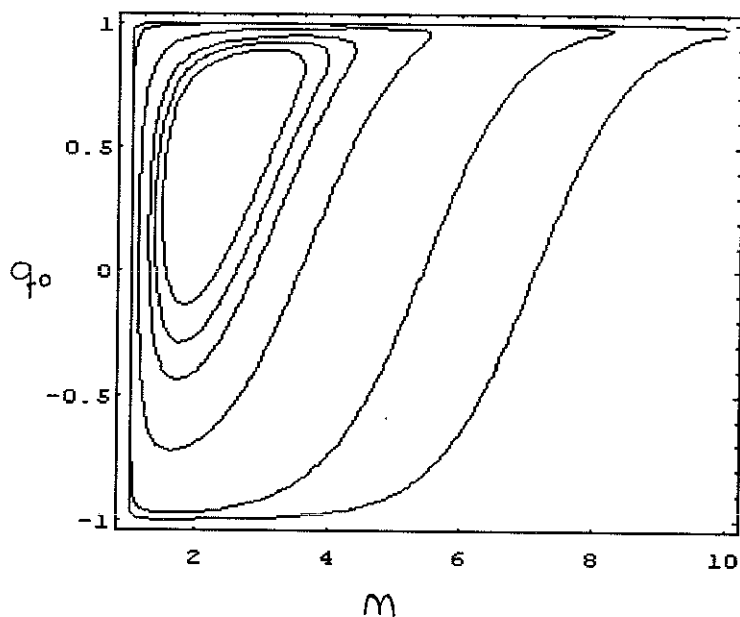
One of us (A.S.M.) wants to acknowledge the financial support of C.A.P.E.S..

REFERENCES

1. "Localization and Propagation of Classical Waves in Disordered and Ordered Structures," Edited by: C.M. Soukoulis, Plenum Press Corporation. (to appear).
2. M.P. van der Mark, Ph.D. Thesis, University of Amsterdam, 1990.
3. R. Dalichaouch, J.P. Armstrong, S. Schutz, P.M. Platzman and S.L. Call, *Nature* **354**, 53 (1991).
4. I. Freund, *Waves in Random Media* **1**, 245 (1991).
5. See for instance: "Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media," Edited by: P. Sheng, World Scientific Publishing, Singapore (1990).
6. H.C. van de Hulst, "Light Scattering by Small Particles," Dover Publications, New York (1981).
7. M. Kerker, "The Scattering of Light and other Electromagnetic Radiation," Academic Press, (1969).
8. M. Born and E. Wolf, "Principles of Optics," Pergamon Press, (1975).
9. J. Goodman, "Statistical Optics," John Wiley & Sons, (1985).
10. S.M. Cohen, D. Eliyahu, I. Freund and M. Kaveh, *Phys. Rev.* **A43**, 5748 (1991).
11. A.S. Martinez and R. Maynard, "Polarization Statistics in Multiple Scattering of Light: a Monte Carlo Approach," in reference 1.
12. A.S. Martinez and R. Maynard, "Faraday Effect in the Multiple Scattering of Light: a Monte Carlo Simulation," in "Soft Order in Physical Systems," Edit by: R. Bruinsma and Y. Rabin, Plenum Publishing Corporation, New York (to appear).
13. A.S. Martinez and R. Maynard, "Faraday Effect and Multiple Scattering of Light," (in preparation).
14. M.J. Stephen and G. Cwilich, *Phys. Rev.* **B34**, 7564 (1986).
15. E. Akkermans, P.E. Wolf, R. Maynard and G. Maret, *J. Phys.* **49**, 77 (1988).

FIGURE CAPTIONS

Figure 1. Plot of the polarization degree P (Eq. 9) as a function of the scattering number n and the incident polarization state (q_o') for the Rayleigh spheres on a plane ($g = 1/2$). For incident linear polarization parallel or perpendicular to the cylinders axis, there is no depolarization ($P = 1$). The polarization degree is robust for the parallel incidence ($q_o' = 1$) and unstable for the perpendicular one ($q_o' = -1$). For other incident polarization states, P decreases for small values of n but as n increases further P increases converging to $P = 1$ as $n \gg 1$.



CHAPITRE II

STATISTIQUE DES SEQUENCES DE DIFFUSION

Dans le chapitre précédent nous avons considéré la diffusion multiple de la lumière pour des séquences de n diffusions. Cependant, pour l'expérience, ce n'est pas le nombre de diffusions qui est fixé, mais une longueur caractéristique du système, telle que l'épaisseur L d'une tranche qui contient des inhomogénéités. Le but de ce chapitre est de justifier l'étude de séquences de diffusion par la méthode de la marche au hasard qui se prête bien à une simulation numérique du type Monte Carlo. Nous allons aussi comparer cette approche avec celle de l'équation de Boltzmann. La statistique de ces séquences est alors étudiée dans une tranche. Dans la première partie, nous obtenons l'équation de transfert radiatif (équation de Boltzmann pour la lumière) qui présente une analogie très étroite avec le problème du gaz de Lorentz. Ensuite nous considérons deux situations: le modèle à une dimension et l'approximation de diffusion. Dans la deuxième partie, nous considérons le problème de la marche au hasard qui a été bien étudiée dans le contexte des polymères. Dans la troisième partie, nous faisons une comparaison entre l'équation de Boltzmann et la marche au hasard. Nous montrons que l'équation de Boltzmann peut être considérée comme étant une approximation du type "champ moyen" du problème de la marche au hasard. Ces deux approches ne sont pas équivalentes. Enfin, dans la dernière partie, nous étudions les séquences de diffusion dans une tranche. Tout au long de ce chapitre, nous ne considérons que des ondes scalaires.

A. THEORIE DE TRANSPORT (EQUATION DE BOLTZMANN)

Dans cette section nous étudions le phénomène de diffusion d'un gaz très léger dans un gaz très lourd. La vitesse moyenne des particules lourdes est petite devant celle des particules légères. De ce fait, les particules lourdes peuvent être considérées de façon approchée comme étant immobiles. Lorsqu'une particule légère entre en collision avec une particule lourde, nous pouvons considérer que cette dernière reste immobile. Quant à la vitesse de la particule légère, elle peut changer de direction sans changer de norme. Si la concentration du gaz léger dans le mélange est faible, les collisions de ces atomes les uns avec les autres sont alors

relativement rares, de sorte que nous pouvons admettre que les particules légères n'entrent en collision qu'avec les particules lourdes. Ce modèle a été développé par H.A. Lorentz (1905) et il est exposé dans le cours de cinétique physique de Landau et Lifchitz.¹

Pour la lumière, le modèle du gaz de Lorentz devient très réaliste, puisque les particules légères sont des photons. Leur masse est nulle et contrairement aux électrons, il n'y a pas d'interaction entre photons. Les particules lourdes sont des défauts dans un milieu homogène, comme par exemple les gouttes d'eau dans les nuages, ou les billes de polystyrène dans l'eau. La seule approximation consiste à négliger le transfert d'impulsion entre le photon et le diffuseur lors d'une collision, ce qui est très raisonnable pour la lumière. Dans la suite nous ferons un bref rappel des hypothèses qui amènent à l'équation de transfert radiatif.

La densité *moyenne* de particules dans l'intervalle $[r, r + dr]$ et $[p, p + dp]$ de l'espace de phase à l'instant t est représentée par la fonction de répartition: $f(r, \hat{p}, t)$ où r est le vecteur de position et $\hat{p}$ le vecteur unitaire d'impulsion. La densité *moyenne* de particules dans le volume dr est alors: $\rho(r, t) = \int d\Omega f(r, \hat{p}, t)$, où $d\Omega = d(\cos\theta_p)d\phi_p$ est l'angle solide dans l'espace des impulsions.

Un élément de volume dr est un volume petit devant le volume caractéristique de l'échantillon L^3 , mais grand par rapport aux dimensions des particules. Quant à l'intervalle de temps dt , il est de l'ordre de grandeur du temps de parcours des particules à travers les éléments dr . La relation entre les dimensions des éléments de volume et le libre parcours moyen l peut être quelconque. Cependant, lorsque la dimension des éléments de volume est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen, la densité ρ , déterminée par la fonction de répartition, perd son caractère de valeur moyenne puisqu'elle peut varier beaucoup d'un élément de volume à l'autre. Si les dimensions des éléments dr ne sont pas grandes par rapport à l , la densité ρ n'est pas une grandeur macroscopique: les fluctuations du nombre de particules contenues dans dr sont comparables à sa valeur moyenne. La densité ρ ne devient une grandeur macroscopique que si elle est déterminée par rapport à des volumes dr tels que: $(dr)^{1/3} \gg l$; les fluctuations du nombre de particules dans ces volumes sont alors relativement petites. Il est clair qu'une approche macroscopique n'est possible que si les dimensions caractéristiques du problème satisfont la relation: $L \gg (dr)^{1/3} \gg l$.

Considérons pour l'instant un milieu homogène et non-dissipatif. La fonction de répartition ne dépend que de la direction de l'impulsion, le système est conservatif, et le théorème de Liouville (équation de continuité dans l'espace de phase) peut être appliqué: $d_t f(r, \hat{p}, t) = 0$. Si il n'y a pas de force externe $F = d_t \hat{p} = 0$, nous pouvons écrire:

$$(\partial_t + v \cdot \nabla) f(r, \hat{p}, t) = 0, \quad (\text{II.A.1})$$

où $v = d_t r = v \hat{p}$ est la vitesse de la particule et le gradient ∇ agit sur la variable r .

Considérons maintenant le désordre introduit par la présence des diffuseurs qui en principe peuvent absorber des photons et dont le nombre par unité de volume (densité en volume) est faible. Dans le cadre de cette approximation, la densité de diffuseurs est donnée par $1/(\sigma_t \ell)$ où la section efficace totale σ_t est obtenue à partir de l'intégration de la section efficace différentielle de diffusion $\sigma(\hat{p} \rightarrow \hat{p}')$ sur tous les angles solides $d\Omega'$, $\hat{p}$ et $\hat{p}'$ étant respectivement la direction des particules incidente et sortante: $\sigma_t = \int d\Omega' \sigma(\hat{p} \rightarrow \hat{p}')$. La norme de p n'intervient pas dans la section efficace totale reflectant ainsi l'isotropie de l'espace. Les diffuseurs peuvent dissiper une partie de l'énergie et il peut changer abruptement la direction des impulsions. Il y a donc des particules qui peuvent rentrer, des particules qui peuvent sortir et des particules qui peuvent être absorbées dans l'intervalle $[r, r + dr]$ et $[p, p + dp]$ de l'espace de phase en raison de la diffusion. Nous devons donc introduire un terme de collision dans l'équation de Liouville.

Pour obtenir ce terme de collision, nous allons supposer l'absence d'absorption. Pendant l'intervalle de temps dt , les particules dans l'intervalle $[r, r + dr]$ et $[p, p + dp]$ voyagent sur une distance $dr = v dt$. Le nombre moyen de particules qui vont subir des collisions et quitter cet élément de volume dans l'espace de phase en dt est donc: $df = -\frac{v}{\sigma_t \ell} [\int d\Omega' f(r, \hat{p}, t) \sigma(\hat{p} \rightarrow \hat{p}')] dt = -\frac{v}{\ell} f(r, \hat{p}, t) dt$. Cet élément de l'espace de phase peut être peuplé par des particules qui se trouvent dans l'intervalle $[r, r + dr]$ et $[p', p' + dp']$ et qui sont diffusées vers lui. Nous rappelons que $p = p'$ et en dt le nombre de particules qui arrivent dans l'élément de l'espace de phase considéré est: $df = \frac{v}{4\pi \ell} [\int d\Omega' f(r, \hat{p}', t) \Phi(\hat{p}, \hat{p}')] dt$. L'anisotropie des diffusions est évaluée grâce à la fonction de phase $\Phi(\hat{p}, \hat{p}') = 4\pi \sigma(\hat{p}' \rightarrow \hat{p})/\sigma_t$. Soulignons que bien que le mouvement des particules soit supposé classique, la fonction de phase peut être obtenue quantiquement (mécanique ondulatoire). Cette fonction est nécessairement symétrique dans les opérations de renversement du temps et d'inversion des coordonnées spatiales (principe de réciprocité). Avec le terme de collision l'équation de Liouville devient: $d_t f = -\frac{v}{\ell} f(r, \hat{p}, t) dt + \frac{v}{4\pi \ell} [\int d\Omega' f(r, \hat{p}', t) \Phi(\hat{p}, \hat{p}')] dt$. Nous obtenons ainsi équation de transfert radiatif:

$$(\partial_t + v \cdot \nabla) f(r, \hat{p}, t) = -\frac{v f(r, \hat{p}, t)}{\ell} + \frac{v}{4\pi \ell} \int d\Omega' f(r, \hat{p}', t) \Phi(\hat{p}, \hat{p}') \quad (\text{II.A.2})$$

La fonction de répartition contient toutes les informations sur le système. Cependant, nous nous sommes intéressés aux informations partielles: la densité de courant de particules et la densité de particules. En utilisant l'égalité:

$$\mathbf{v} \cdot \nabla f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t) = \nabla \cdot (\mathbf{v} f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t)) , \quad (\text{II.A.3})$$

où $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$ car la direction de $\mathbf{v}$ ($= \mathbf{v} \hat{\mathbf{p}}$) est fixée et en intégrant l'équation II.A.2 sur l'angle solide $d\Omega/4\pi$, où $\frac{1}{4\pi} \int d\Omega \Phi(\hat{\mathbf{p}}, \hat{\mathbf{p}}') = 1$, nous obtenons l'équation de continuité (conservation du nombre de particules):

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = 0 , \quad (\text{II.A.4})$$

où le flux de particules dans la direction de $\mathbf{v}$ est donné par la relation: $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{4\pi} \int d\Omega \mathbf{v} f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t)$. En multipliant l'équation II.A.2 par $\mathbf{v}$, en utilisant l'équation II.A.3, en intégrant sur $d\Omega/4\pi$ et en considérant la fonction de phase de Mie donnée par l'équation I.A.10:

$$\Phi(\hat{\mathbf{p}}, \hat{\mathbf{p}}') = \frac{2\pi}{\sigma_t} \{ |S_{//}(\cos\theta_p)|^2 + |S_{\perp}(\cos\theta_p)|^2 - [|S_{//}(\cos\theta_p)|^2 - |S_{\perp}(\cos\theta_p)|^2] \frac{q_o \cos(2\Phi_p) + u_o \sin(2\Phi_p)}{i_o} \}$$

où $S(\cos\theta_p)$ est l'amplitude de diffusion (les indices indiquent la partie parallèle et la partie perpendiculaire au plan de diffusion) et i_o , q_o et u_o sont les intensités de Stokes incidentes. De la fonction de phase ci-dessus nous obtenons: $\frac{1}{4\pi} \int d\Omega \hat{\mathbf{p}} \Phi(\hat{\mathbf{p}}, \hat{\mathbf{p}}') = \mu \hat{\mathbf{p}}$ avec $\mu = \langle \cos\theta_p \rangle$ où θ_p est l'angle de diffusion. Nous déduisons ainsi l'équation hydrodynamique (conservation des impulsions):

$$\partial_t \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{4\pi} \int d\Omega \mathbf{v} (\mathbf{v} \cdot \nabla) f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t) = - (1 - \mu) \frac{\mathbf{v} \mathbf{J}(\mathbf{r}, t)}{l} . \quad (\text{II.A.5})$$

En appliquant la divergence à l'équation ci-dessus et en utilisant l'équation de continuité, nous obtenons:

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) - \frac{l}{(1 - \mu) v} \frac{1}{4\pi} \int d\Omega (\mathbf{v} \cdot \nabla)^2 f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t) = - \frac{l}{(1 - \mu) v} \partial_t^2 \rho(\mathbf{r}, t) . \quad (\text{II.A.6.a})$$

Jusqu'à présent nous n'avons fait aucune approximation. Pour étudier l'ordre de grandeur de chaque terme de l'équation ci-dessus, il est loisible de considérer la transformée de Fourier de $\rho(r, t)$ et de $f(r, \hat{p}, t)$. La variable conjuguée du temps dans l'espace de Fourier est ω_f et celle conjuguée de l'espace est k_f . Dans l'espace de Fourier l'opérateur ∂_t devient $j \omega_f$ et l'opérateur ∇ devient $j k_f$ où $j = \sqrt{-1}$. Le premier terme est alors de l'ordre de ω_f , le deuxième de l'ordre de k_f^2 et le troisième de l'ordre de ω_f^2 . En utilisant l'équation de continuité avec la loi de Fick: $J \propto \nabla \rho$ (réponse linéaire), nous avons: $\omega_f \propto k_f^2$. Le terme à gauche de l'équation II.A.6.a est de l'ordre de k_f^4 . D'autre part une distance r est typiquement beaucoup plus grande que $(dr)^{\frac{1}{3}}$ et par suite que l . Comme $k_f \propto \frac{1}{r}$ (par la transformation de Fourier), nous vérifions la relation de la limite hydrodynamique: $k_f l \ll 1$. Nous pouvons ainsi négliger la dérivée seconde par rapport au temps dans l'équation II.A.6.a. Nous obtenons ainsi:

$$\partial_t \rho(r, t) - \frac{l}{(1 - \mu) v} \frac{1}{4\pi} \int d\Omega (\mathbf{v} \cdot \nabla)^2 f(r, \hat{p}, t) = 0, \quad (\text{II.A.6.b})$$

Nous arrivons ici à un point important du développement de l'équation de Boltzmann. Nous voyons que l'expression ci-dessus ressemble beaucoup à l'équation de diffusion. Le gros problème est qu'elle dépend de la fonction de répartition dont les symétries sont inconnues. Avant de poursuivre, nous proposons d'étudier le cas à une dimension de l'équation de Boltzmann, où nous ne ferons pas de simplification de f par rapport à l'anisotropie.

1. Equation de Boltzmann à Une Dimension.

A une dimension, l'équation de Boltzmann prend une forme très simple puisque l'espace de phase a seulement deux degrés de liberté (Fig. 2.1): la variable de position z , qui est une variable continue et la variable d'impulsion p_z , qui est une variable discrète à deux états: ($p_z = \pm mv_z$ où m est la masse de la particule). Il est important de noter qu'à une dimension, on considère généralement deux types de fonction de phase: *i*) la fonction de phase du modèle p - q (qui représente bien le comportement d'une particule qui exécute une marche au hasard en présence d'une force)^{2,3}: la particule a la probabilité p d'être diffusée vers la droite et la probabilité $q = 1 - p$ d'être diffusée vers la gauche, *ii*) l'autre fonction de phase est celle du modèle T - R (qui représente mieux l'anisotropie de diffusion)⁴: la particule a la probabilité T d'être diffusée vers l'avant et la probabilité $R = 1 - T$ d'être diffusée vers l'arrière, quel que soit le côté d'où elle arrive. Nous allons considérer le modèle T - R .

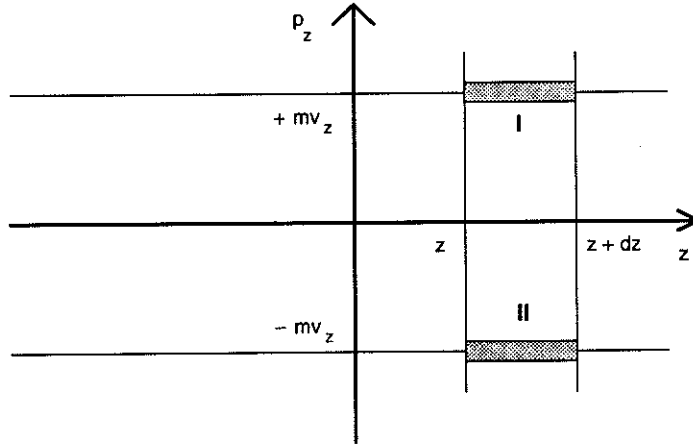


Figure 2.1. Espace de phase pour le modèle à une dimension, la variable de position z est continue, tandis que la variable d'impulsion p_z est discrète.

A l'instant t , pour les régions I et II de l'espace de phase (figure 2.1) nous avons respectivement: $(\partial_t + v_z \partial_z) f(z, p_z, t) = -\frac{v_z}{l} r [f(z, p_z, t) - f(z, -p_z, t)]$ et $(\partial_t - v_z \partial_z) f(z, -p_z, t) = \frac{v_z}{l} r [f(z, p_z, t) - f(z, -p_z, t)]$. De la somme et de la différence des équations au dessus nous obtenons l'équation de continuité: $\partial_t \rho(z, t) + \partial_z J(z, t) = 0$ et l'équation hydrodynamique: $\partial_t J(z, t) + v_z^2 \partial_z \rho(z, t) = -2 \frac{v_z}{l} r J(z, t)$, où $\rho(z, t) = f(z, p_z, t) + f(z, -p_z, t)$ est la densité de particules et $J(z, t) = v_z [f(z, p_z, t) - f(z, -p_z, t)]$ est la densité de courant. En appliquant l'opérateur ∂_z à l'équation hydrodynamique et en utilisant l'équation de continuité, nous obtenons: $(\partial_t - \frac{v_z l}{2r} \partial_z^2) \rho(z, t) = -\frac{l}{2r v_z} \partial_t^2 \rho(z, t)$. En négligeant la dérivée seconde par rapport au temps, nous obtenons l'équation de diffusion:

$$(\partial_t - D_{tr}^* \partial_z^2) \rho(z, t) = 0, \quad (\text{II.A.7.a})$$

où $D_{tr}^* = \frac{D_o}{2r}$, $D_o = v_z l$ étant la constante de diffusion pour le cas isotrope. Puisque $T + R = 1$ et $\mu = \langle \cos \theta \rangle = T - R$, où θ est l'angle de diffusion, nous avons: $2R = 1 - \mu$, ainsi:

$$D_{tr}^* = \frac{D_o}{1 - \mu}. \quad (\text{II.A.7.b})$$

Soulignons que ce résultat a été obtenu sans faire aucune approximation par rapport à l'anisotropie. La seule approximation qui a été faite consiste à négliger le terme $\frac{1}{v_z} \partial_t^2 \rho(z, t)$. Cette approximation est l'approximation la plus standard dans le cadre de l'équation de Boltzmann. De plus, la validité de cette approximation a été vérifiée numériquement.⁵ Revenons à la situation à trois dimensions.

2. Approximation de Diffusion

Considérons la fonction de répartition $f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t)$ et considérons une direction $\hat{\mathbf{p}}'$. Nous pouvons développer la fonction $f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t)$ en polynômes de Legendre: $f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t) = \sum_{l=0}^{\infty} f_l(\mathbf{r}, t) P_l(\cos\Theta)$, où $\cos\Theta = \hat{\mathbf{p}}' \cdot \hat{\mathbf{p}}$. Avec l'approximation $f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t) \equiv f_0(\mathbf{r}, t) + f_1(\mathbf{r}, t) P_1(\cos\Theta)$, nous obtenons, par l'intégration de f sur $d\Omega'$ et $v d\Omega'$: $f_0(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \rho(\mathbf{r}, t)$ et $f_1(\mathbf{r}, t) = \frac{3}{2v} \cos\Theta J(\mathbf{r}, t)$, d'où: $f(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}, t) \equiv \frac{1}{2} \rho(\mathbf{r}, t) + \frac{3}{2v} \cos\Theta J(\mathbf{r}, t)$. L'approximation de ne considérer que les termes $l = 0, 1$ du développement de f est justifiée si $U(\mathbf{r}, t)/v$ est beaucoup plus petit que la densité de particules $\rho(\mathbf{r}, t)$ au point $\mathbf{r}$. Cette approximation est équivalente à dire que la fonction de répartition est faiblement dépendante de la direction de l'impulsion ($\hat{\mathbf{p}}$).^{6,7} (Cette expansion nous fait penser à l'approximation de Born pour la diffusion simple.) Avec cette expression approchée de f et l'équation II.A.6.b nous voyons que le terme en $J(\mathbf{r}, t)$ est beaucoup plus petit que les autres termes, donc nous le négligeons. On obtient ainsi l'équation de diffusion:

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) - D_{tr}^* \nabla^2 \rho(\mathbf{r}, t) = 0 \quad \text{où} \quad D_{tr}^* = \frac{D_o}{1 - \mu} \quad (\text{II.A.8})$$

$D_o = \frac{v \ell}{3}$ étant la constante de diffusion du modèle isotrope. ⁸ Il faut bien souligner que cette équation n'est valable que pour le cas de faible anisotropie, c'est-à-dire: $|\mu| \ll 1$. Nous notons que D_o dépend de la dimensionalité (d) du système, en général: $D_o = \frac{v \ell}{d}$. La solution de l'équation de diffusion est une gaussienne avec une dispersion de $2D_{tr}^* t$:

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{(4\pi D_{tr}^* t)^{\frac{d}{2}}} \exp \left[-\frac{r^2}{4D_{tr}^* t} \right], \quad (\text{II.A.9.a})$$

pour une condition initiale $\rho(r, t = 0) = \delta(r)$. Les problèmes de transport faiblement anisotropes peuvent être considérés comme des problèmes de transport isotropes, mais à l'échelle du libre parcours moyen de transport l^* , donc:

$$D_{tr}^* = \frac{v l^*}{d} \quad \text{avec} \quad l^* = \frac{l}{1 - \mu} . \quad (\text{II.A.9.b})$$

Il est intéressant de remarquer que l'anisotropie est entièrement décrite par une seule variable, la constante de diffusion D_{tr}^* ou bien le libre parcours moyen de transport l^* . La linéarisation que nous avons faite est équivalente à celles trouvées dans les références 6 et 7.

B. MARCHE ALÉATOIRE

Dans la section précédente nous avons considéré la diffusion multiple de la lumière à partir de l'équation de Boltzmann. Dans cette section nous allons utiliser l'approche de la marche au hasard. Considérons une marche au hasard de n pas, telle que les diffuseurs successifs se trouvent à une distance l les uns des autres. Pour simplifier, l'angle ϕ est considéré comme une variable aléatoire distribuée uniformément. La fonction de phase est donc indépendante de l'angle azimutal ϕ . Le calcul pour ϕ distribué non-uniformément peut être effectué.⁸ L'angle de diffusion θ est donné par la fonction de phase $\Phi(\cos\theta)$. La longueur de cette séquence est de $s = n l$. Le premier diffuseur est placé à $z = l$ d'un système de référence (x, y, z) et des photons sont injectés à l'origine du système de référence suivant la direction de z positif (Fig. 2.2). La distance entre le début et la fin de la séquence est de $r = \sum_{\kappa=1}^n l_{\kappa}$ où $l_{\kappa} = l (\sin\theta_{\kappa} \cos\phi_{\kappa} \hat{\theta}_{\kappa-1} + \sin\theta_{\kappa} \sin\phi_{\kappa} \hat{\phi}_{\kappa-1} + \cos\theta_{\kappa} \hat{k}_{\kappa-1})$ est le vecteur qui connecte le diffuseur $\kappa - 1$ au diffuseur κ . Les angles θ_{κ} et ϕ_{κ} sont donnés dans la base locale des cosinus directeurs $\kappa - 1$. Si nous considérons M séquences indépendantes, où $M \gg 1$, à cause du théorème de la limite centrale, la variable r suit une distribution gaussienne: $\rho(r, n) = [\frac{d}{2\pi \sigma_n^2}]^{d/2} \exp [- \frac{d (r - \langle r \rangle)^2}{2 \sigma_n^2}]$, où $\sigma^2 = \langle r^2 \rangle - \langle r \rangle^2$ est le carré de la variance de r . On s'intéresse alors aux premier et deuxième moments.

1. Premier Moment

La position moyenne de la particule peut être obtenue en observant que le premier pas vaut toujours l . Le deuxième pas vaut en moyenne $l \langle \cos\theta \rangle \hat{z}$, à cause de la distribution uniforme en ϕ . Le troisième pas vaut en moyenne $l \langle \cos\theta \rangle \hat{z}$ dans la direction du deuxième pas, donc: $l \langle \cos\theta \rangle^2 \hat{z}$ et ainsi de suite, de sorte que: $\langle r \rangle = l (1 + \mu + \mu^2 + \dots + \mu^{n-1}) \hat{z}$.

Dans la limite $n \gg l$, ce qui est équivalent à considérer la limite hydrodynamique dans l'équation de Boltzmann, nous avons:

$$\langle r \rangle \equiv l^* z \quad \text{avec} \quad l^* = \frac{l}{1 - \mu}, \quad (\text{II.B.1})$$

où $\mu = \langle \cos \theta \rangle$.

Nous pouvons donner plusieurs interprétations physiques de cette grandeur l^* . Elle est la position moyenne de la particule dans une marche au hasard dont le premier pas est fixé. Elle peut aussi représenter la distance moyenne au bout de laquelle le vecteur d'onde perd la mémoire de sa direction incidente. Dans le contexte des polymères, cette grandeur est appelée longueur de persistance. Dans le contexte de la théorie du transport (équation de Boltzmann), elle est appelée libre parcours moyen de transport (par analogie au libre parcours moyen $\bar{l}$).

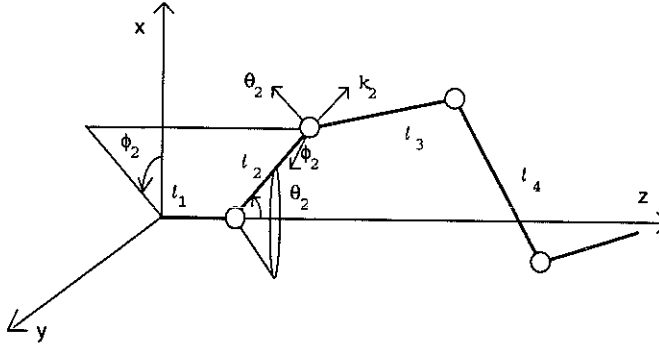


Figure 2.2. Séquence de diffusion. La première diffusion a lieu à l'origine du système de référence. Les angles ϕ sont distribués uniformément tandis que les angles θ sont distribués suivant la fonction de phase. La distance entre deux diffuseurs est fixe et égale à l .

a. Longueur de persistance

Suivant la définition de Flory,⁸ la longueur de persistance est définie comme la moyenne de la somme des projections de tous les segments $\kappa' \geq \kappa$ dans une chaîne infiniment longue. Le segment κ est loin des bouts de la chaîne, i.e., $1 \ll \kappa \ll n$. La longueur de persistance est donc donné par:

$$l^* \hat{l}_\kappa = \sum_{\kappa' \geq \kappa}^n l_{\kappa'} \cdot \hat{l}_\kappa. \quad (\text{II.B.2})$$

b. Libre parcours moyen de transport

Comme nous avons vu dans le cadre de l'équation de Boltzmann, le libre parcours moyen de transport peut être interprété comme étant l'échelle où le problème est rendu isotrope. A l'échelle de l^* , la particule est diffusée isotropiquement dans l'espace. Ainsi l^* est l'échelle où la particule perd la mémoire de la direction d'incidence.

2. Deuxième Moment

Pour ce calcul nous reprenons la démarche de Arlonis et MacKnight:⁹

$$\langle r^2 \rangle = \sum_{\kappa=1}^n \langle l_{\kappa} \cdot l_{\kappa} \rangle + \sum_{\kappa \neq \kappa'=1}^n \langle l_{\kappa} \cdot l_{\kappa'} \rangle, \quad (\text{II.B.3.a})$$

la première somme vaut $n l^2$. Pour calculer la seconde somme, nous considérons premièrement le produit scalaire $l_{\kappa} \cdot l_{\kappa+1}$. La projection moyenne de l_{κ} sur son premier voisin est $l \mu$ donc $\langle l_{\kappa} \cdot l_{\kappa+1} \rangle = l^2 \mu$. Considérons maintenant le deuxième plus proche voisin $l_{\kappa} \cdot l_{\kappa+2}$. Nous voyons que la valeur de ce produit scalaire fluctue quand $l_{\kappa+2}$ tourne au tour de l'axe de $l_{\kappa+1}$. Cependant, la projection moyenne de $l_{\kappa+2}$ sur $l_{\kappa+1}$ est $l \mu$ et la projection moyenne de ce vecteur sur l_{κ} est donc $l^2 \mu^2$. En développant cet argument pour les autres termes de la somme nous pouvons écrire:

$$\begin{aligned} \langle r^2 \rangle = l^2 [n + (\mu + \mu^2 + \mu^3 + \dots + \mu^{n-1}) + (\mu + \mu + \mu^2 + \dots + \mu^{n-2}) + \\ (\mu^2 + \mu + \mu + \dots + \mu^{n-3}) + \dots + (\mu^{n-1} + \mu^{n-2} + \mu^{n-3} + \dots + \mu)] . \end{aligned} \quad (\text{II.B.3.b})$$

En collectant les termes en μ ,

$$\langle r^2 \rangle = l^2 [n + 2 \sum_{\kappa=1}^{n-1} (n - \kappa) \mu^{\kappa}] = l^2 [n \frac{1 + \mu}{1 - \mu} - 2\mu \frac{1 - \mu^n}{(1 - \mu)^2}] , \quad (\text{II.B.3.c})$$

où nous considérons $n \gg 1$,

$$\langle r^2 \rangle \cong n l^2 \frac{1 + \mu}{1 - \mu} , \quad (\text{II.B.3.d})$$

3. Densité de Particules

La distribution de particules à la position $[r, r + dr]$ pour la marche au hasard anisotrope ($\mu \neq 0$) de n pas dans un espace de dimension d est donnée par:

$$\rho(r, n) = \left[\frac{d}{2\pi \sigma_n^{*2}} \right]^{\frac{d}{2}} \exp \left[-\frac{d(r - \langle r \rangle)^2}{2 \sigma_n^{*2}} \right], \quad (\text{II.B.4.a})$$

où

$$\sigma_n^{*2} = \langle r^2 \rangle - \langle r \rangle^2 \cong n l^2 \frac{1 + \mu}{1 - \mu} = \sigma_o^2 \frac{1 + \mu}{1 - \mu}, \quad (\text{II.B.4.b})$$

$\sigma_o^2 = n l^2$ étant la variance de la marche au hasard isotrope ($\mu = 0$). Nous avons négligé le terme $\langle r \rangle^2$ devant $\langle r^2 \rangle$ puisque n est grand devant l'unité.

a. Rayon de giration

Pour les polymères le rayon de giration S est défini par⁸:

$$S^2 = \frac{l}{2d} \sigma_n^{*2}. \quad (\text{II.B.5})$$

b. Transport

Pour établir la liaison avec le problème de transport, effectuons un changement de variable. Nous considérons le temps comme étant $t = n \tau_o$ où $\tau_o = \frac{l}{v}$ est le temps écoulé entre deux diffusions successives et v est la vitesse de la particule. Nous pouvons obtenir une équation de diffusion en appliquant ∂_t et ∇^2 à l'équation II.B.4.a, ce qui donne une constante de diffusion:

$$D_{rw}^* = \frac{S^2}{\tau_o} = \frac{D_o}{2} \frac{1 + \mu}{1 - \mu}. \quad (\text{II.B.6})$$

Les marches au hasard anisotropes peuvent être considérées comme étant des marches au hasard isotropes mais avec une constante de diffusion (variance) renormalisée (Eq. II.B.6). Comme dans le cas de l'équation de Boltzmann, l'anisotropie n'est contenue que dans une seule grandeur, la constante de diffusion. Mais contrairement à l'équation de Boltzmann, le libre parcours moyen de transport reste indéterminé. Il nous faut une condition supplémentaire. Nous allons étudier ce point plus en détail dans la section D.

C. COMPARAISON ENTRE LA THEORIE DE TRANSPORT ET LA MARCHE ALEATOIRE

Tous les résultats que nous avons présentés jusqu'à présent sont connus depuis longtemps. Par contre, à notre connaissance, la comparaison entre ces deux approches semble avoir été peu étudiée. La tendance générale consiste à dire que les deux approches sont équivalentes parce qu'elles obéissent à une équation de diffusion. Nous allons montrer que les deux approches ne sont pas équivalentes.

La théorie de transport ainsi que la marche aléatoire aboutissent à une équation de diffusion: $\partial_t \rho(r,t) - D^* \nabla^2 \rho(r,t) = 0$, qui est régie par la constante de diffusion D^* . Cependant la théorie de transport donne une constante de diffusion (Eq. I.B.9.b): $D_{tr}^* = \frac{D_o}{1 - \mu}$, tandis que la marche au hasard donne (Eq. II.B.6): $D_{rw}^* = \frac{D_o}{2} \frac{1 + \mu}{1 - \mu}$.

$$\frac{D_{rw}^*}{D_{tr}^*} = \frac{1 + \mu}{2}, \quad (\text{II.C.1})$$

et nous avons une différence de $\frac{D_{tr}^* - D_{rw}^*}{D_{rw}^*} = \frac{1 - \mu}{1 + \mu}$.

Considérons le cas de la diffusion isotrope ($\mu = 0$). La constante de diffusion obtenue par la théorie de transport et la marche au hasard sont: $D_{tr}^* = 2 D_{rw}^* = D_o = \frac{v l}{d}$. Donc la théorie de transport et la marche au hasard ne sont pas équivalentes. Considérons maintenant le cas de faible anisotropie $|\mu| \ll 1$. Dans cette situation nous ne considérons que le premier ordre en μ , l'approche de la théorie de transport donne: $D_{tr}^* = D_o (1 + \mu)$, tandis que l'approche de la marche au hasard donne: $D_{rw}^* = D_o \frac{1 + 2\mu}{2}$. Naturellement on se pose la question: Si les deux approches ne sont pas équivalentes, quelle est la bonne approche ?

Pour pouvoir répondre à cette question, nous devons considérer le cas à une dimension avec $\mu \rightarrow -1$. Dans cette situation il y a beaucoup de collisions vers l'arrière, les particules ont tendance à rester piégées entre deux diffuseurs, l'approche de la théorie de transport donne (Eq. II.A.9.b): $D_{tr}^* \rightarrow \frac{D_o}{2}$, tandis que la marche aléatoire donne (II.B.6): $D_{rw}^* \rightarrow 0$. La particule ayant une tendance à être localisée entre deux diffuseurs, la constante de diffusion doit forcément tendre vers zéro. Le résultat de Boltzmann nous dit que la constante de diffusion tend vers une valeur finie et non-nulle, ce qui implique un processus de diffusion non-nul.

Considérons maintenant le cas limite de très forte anisotropie vers l'avant, nous avons donc $\mu = 1 - \delta$, où $\delta \ll 1$. L'équation II.C.1 donne: $\frac{D_{rw}^*}{D_{tr}^*} = 1 + \frac{\delta}{2}$ et les deux approches deviennent équivalentes (Fig. 2.3) puisque δ est petit.

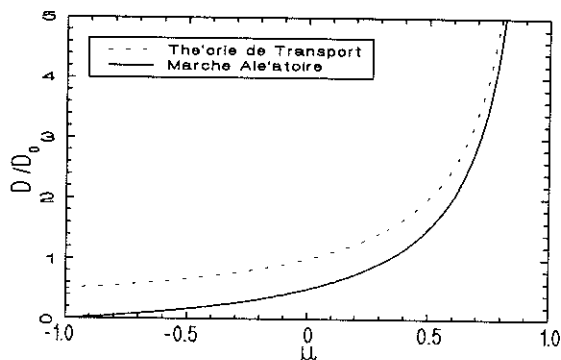


Figure 2.3. Comparaison entre la constante de diffusion obtenue par la théorie de transport et celle obtenue par la théorie de la marche au hasard en fonction de l'anisotropie.

Dans la figure 2.3 nous faisons une comparaison entre la constante de diffusion obtenue par la marche au hasard et celle obtenue par la théorie de transport. Nous voyons que la constante de diffusion de la marche au hasard est plus petite que celle de transport. Il est important de mettre l'accent sur le fait que la constante de diffusion de transport ne décrit pas, même qualitativement, le bon comportement physique pour $\mu \approx -1$ car elle ne converge pas vers zéro. Il est intéressant de faire une analogie entre les grandeurs caractéristiques des polymères et de la marche aléatoire avec le problème de la diffusion multiple. Cette analogie est faite dans la table 1.

1. Approximation de "Champ Moyen"

En comparant ces deux approches, nous voyons que la théorie de transport n'est pas équivalente à la marche au hasard. Nous allons montrer que la théorie de transport et la théorie de la marche au hasard conduisent à la même constante de diffusion si dans la seconde, on fait une approximation du type "champ moyen". Pour cela, reprenons l'équation II.B.3.a :

$$\langle r^2 \rangle = n l^2 + \sum_{\kappa' \neq \kappa = l}^n l_{\kappa'} \cdot l_{\kappa} \quad (II.C.2)$$

L'approximation du "champ moyen" consiste à dire que tous les segments l_{κ} sont équivalents et égaux au premier:

$$\langle r^2 \rangle \cong n (l^2 + l \langle \sum_{\kappa'=2}^n l_{\kappa'} \rangle \hat{l}_1) \cong n l^2 (1 + \frac{\mu}{1-\mu}) = n l l^* \quad (\text{II.C.3})$$

où nous avons pris $n \gg 1$ et où l^* est donné par l'équation II.B.1. En calculant la variance de r , puis la constante de diffusion, nous retrouvons le résultat de la théorie de transport. Avec cette approximation nous ne sommes pas capables d'expliquer le facteur 2 qui fait la différence entre les deux approches.

Table 1. Analogie entre les problèmes des polymères, la marche aléatoire et la théorie de transport. L'indice "o" correspond aux diffusions isotropes.

Polymères	Marche Aléatoire	Diffusion Multiple
séparation entre les monomères (l)	longueur des pas (l)	libre parcours moyen (l)
longueur du polymère (s)	nombre de pas (n)	temps (t)
longueur de persistance (l^*)	$\langle r_n \rangle = (l^*)$	libre parcours moyen de transport (l^*)
rayon de giration ($S = S_o \frac{1+\mu}{1-\mu}$)	$\langle \sigma_n^2 \rangle = \sigma_{o,n}^2 \frac{1+\mu}{1-\mu}$	constante de diffusion ($D = \frac{D_o}{2} \frac{1+\mu}{1-\mu}$)

Pour interpréter physiquement ces résultats nous devons bien comprendre l'esprit de l'approximation de champ moyen. Pour les modèles de spin, cette approximation (Curie-Weiss) consiste à mettre toutes les interactions (dans le problème de marche au hasard représenté par l'anisotropie de diffusion) sous la forme d'un champ externe effectif qui dépend de l'aimantation du système et qui agit de la même façon sur tous les spins du réseau, qui deviennent indépendants. Une autre interprétation peut être donnée à l'approximation de champ moyen, en considérant que chaque spin interagit de la même façon avec tous les autres spins du système. Les concepts de réseau et de bords sont perdus.¹⁰

Considérons une analogie entre l'espace de phases et le modèle de spins décrit dans le paragraphe précédent. Dans cette analogie les éléments de volume $d\mathbf{r}$ correspondent aux spins tandis que l'anisotropie correspond aux interactions entre les spins. Nous pouvons conjecturer que l'approximation du type champ moyen pour l'équation de Boltzmann consiste à prendre des éléments de volume avec une longueur caractéristique beaucoup plus grande que le libre parcours moyen de transport $(d\mathbf{r})^{1/3} \gg l^*$. La diffusion d'une particule vers un autre élément de volume est maintenant isotrope (chaque élément de volume de l'espace de phase "interagit" avec tous les autres de la même façon). Les corrélations entre la position et l'impulsion, qui caractérisent les effets de bord, sont ainsi complètement perdues.

L'équation de Boltzmann comme approximation du problème de la marche au hasard pose un autre problème. Nous savons que l'équation de Boltzmann peut être obtenue à partir des premiers principes. Elle peut être obtenue en faisant l'approximation d'échelle ("ladder") dans l'équation de Bethe-Salpeter. Le rôle de cette approximation est de négliger les corrélations entre les séquences de diffusions. Les séquences sont ainsi indépendantes les unes des autres. C'est justement cette approximation qui nous a permis d'utiliser une approche de marche au hasard simple. Les marches au hasard que nous avons considérées ne sont pas "self-avoiding" ni ramifiées. Donc, en principe, la marche au hasard et l'équation de Boltzmann doivent être équivalentes puisqu'elles proviennent de la même approximation de l'équation de Bethe-Salpeter. Nous remarquons que l'hypothèse de diffusion isotrope n'est pas nécessaire pour l'établissement de l'équation de Bethe-Salpeter. Peut-être que l'approximation "de champ moyen" résulte du calcul du noyau de collision. A notre connaissance, c'est un problème ouvert.

Nous remarquons que van Albada, van Tiggelen, Lagendijk et Tip,^{11,12,13} ont démontré qu'une impulsion lumineuse se propageant dans un milieu désordonné donne lieu à une constante de diffusion qui est plus petite que celle prédite par l'équation de Boltzmann. Ferrari et Gangji¹⁴ ont mesuré expérimentalement une constante de diffusion qui est approximativement 50% plus petite que celle de la théorie de transport.

D. STATISTIQUE DES SEQUENCES DE DIFFUSION DANS UNE TRANCHE

Dans la partie précédente, nous avons vu que l'approximation de diffusion peut être considérée comme une approximation du problème de la marche aléatoire. Dans cette partie nous allons donc considérer les conditions aux bords pour les marches aléatoires. Notre démarche consiste à remplacer une marche aléatoire anisotrope par une marche aléatoire isotrope équivalente, puis à obtenir la distribution du nombre de collisions dans une tranche

d'épaisseur fixée. Dans le contexte de l'équation de Boltzmann, ce problème est connu comme le problème de Milne.^{6,7} Il a été étudié en détail récemment par Nieuwenhuizen et Luck,¹⁵ qui prennent en compte la différence entre les indices de réfraction de la tranche et du milieu extérieur.

Nous avons vu dans la partie B que les marches au hasard anisotropes peuvent être considérées comme des marches au hasard isotropes mais avec une variance renormalisée (Eq. II.B.4.b):

$$\sigma_n^2 = n l^2 \frac{1+\mu}{1-\mu} = n' l'^2 \quad . \quad (\text{II.D.1})$$

Cette "recette" nous dit que la grandeur renormalisée est le produit $n l^2$. Le choix de n' et l' n'est pas univoque. Il nous faut encore une autre condition. Nous remarquons que pour tenir compte des bords dans l'équation de Boltzmann il faut aussi une condition supplémentaire. Dans ce cas nous devons imposer que le flux diffusif des particules entrant est nul sur les bords.^{6,7,16} C'est la condition de Milne.

Pour les polymères, cette nouvelle condition consiste à considérer le polymère renormalisé (marche isotrope) avec la même longueur que le polymère original (marche anisotrope).⁹ En imposant la condition $n l = n' l'$, avec l'équation II.D.1 nous avons:

$$n' = n \frac{1-\mu}{1+\mu} \quad \text{et} \quad l' = l \frac{1+\mu}{1-\mu} \quad .$$

Considérons maintenant la distribution de séquences de diffusion dans une tranche d'épaisseur L . Les diffusions sont isotropes à l'échelle de l' et le nombre de diffusions n' n'est plus fixé. Pour $\frac{L}{l'} \gg 1$, la distribution de n' est paramétrée par le rapport $\frac{L}{l'}$ et elle peut être obtenue de plusieurs façons différentes: la méthode des multiplicateurs de Lagrange, la méthode de Green, etc. (voir références 2, 17, 18 et 19):

$$P(n'; \frac{L}{l'}) \propto \sum_{\kappa=1}^{\frac{L}{l'}} \left[\frac{(-1)^{\kappa+1}}{\kappa} \right] \sin(\pi \kappa \frac{l'}{L}) \sin(\pi \kappa \frac{\gamma l'}{L}) \exp[-\frac{n'}{2} (\frac{\pi \kappa l'}{L})^2] \quad (\text{II.D.2})$$

où le terme supérieur représente la transmission et le terme inférieur représente la réflexion. La variable γ a été artificiellement introduite pour tenir compte de la distance entre la dernière diffusion et la paroi de la tranche. La dimensionnalité du système est donnée par d .

Nous voyons que la distribution ci-dessus dépend de la variance $(n'l)^2$, c'est-à-dire de la constante de diffusion dans l'exponentielle, mais aussi du rapport $\frac{L}{l'}$ dans les fonctions sinus. Il est important de remarquer que le terme exponentiel tient compte de l'intérieur de la tranche ("bulk"), tandis que les fonctions sinus tiennent compte des effets de bords. En considérant la marche isotrope équivalente, la première collision se produit à une distance l' du bord. Pour la dernière collision, nous considérons qu'elle a lieu en moyenne à une distance $\gamma l'$ du bord. En transmission, la distribution n'est pas très sensible à la valeur de γ , puisque les chemins sont longs ($\frac{L}{l'} \gg 1$). La valeur de γ devient importante en réflexion, car dans ce cas la plupart des chemins sont courts, même dans la limite de diffusion ($\frac{L}{l'} \gg 1$).²⁰

1. Réflexion

En réflexion, pour un milieu semi-infini, nous pouvons considérer $\frac{\pi \kappa l'}{L}$ comme une variable continue et remplacer la somme de l'équation II.D.2 par une intégrale. Si l'on prend pour simplifier $\gamma = 1$, on a:

$$P_R(n', \frac{L}{l'}) \propto \sqrt{\frac{\pi d}{8 n'}} (1 - \exp(-\frac{2 d}{n'})) \propto n'^{-3/2} \rightarrow P_R(s) \propto s^{-3/2}, \quad (\text{II.D.3})$$

où $s = n l$ est la longueur d'un chemin et où nous avons supposé $n' \gg 1$. Il est intéressant de remarquer que cette distribution est indépendante de la dimensionnalité du système.

Dans la figure 2.4 nous avons représenté les distributions numériques de chemins de diffusion pour une tranche mince et une tranche plus épaisse et la distribution théorique donnée par l'équation II.D.3. Nous voyons que cette distribution ne décrit pas le bon comportement pour la tranche mince. Cela est attendu parce que la distribution II.D.2 n'est valable que pour le régime de diffusion. Par contre, pour une tranche plus épaisse, nous obtenons le comportement de la distribution II.D.3. L'écart entre la distribution numérique et la distribution théorique est grand pour les grandes valeurs de $s = n l \gg \frac{L^2}{l'}$. Cet écart est dû à l'épaisseur finie de la tranche.

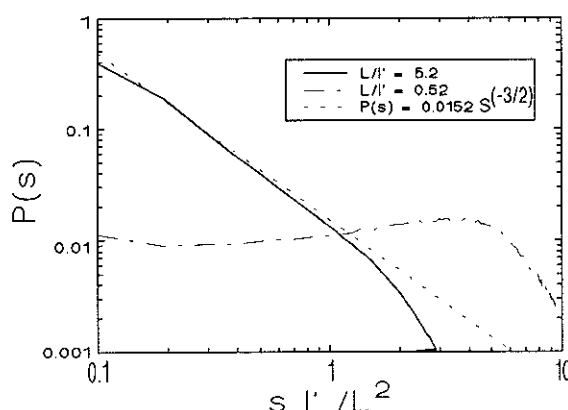


Figure 2.4 Distributions des chemins de diffusion en réflexion. L'anisotropie de diffusion est caractérisée par $\langle \cos \theta \rangle = 0.92$. Pour une tranche épaisse ($LA' = 5.2$) nous retrouvons le résultat du régime de diffusion. L'écart à $s = n l' \gg 1$ est dû à l'épaisseur finie de la tranche. Pour une tranche plus mince ($LA' = 0.52$) la distribution s'écarte beaucoup de la distribution du régime de diffusion.

2. Transmission

Pour la transmission nous pouvons obtenir simplement le comportement de la distribution pour n' grand devant l'unité, grâce au terme dominant donné par $\kappa = 1$:

$$P_T(n' \frac{L}{l'}) \propto \exp\left[-\frac{n'}{2d} \left(\frac{\pi l'}{L}\right)^2\right] \rightarrow P_T(s) \propto \exp\left[-\frac{\pi^2}{2d} \left(\frac{s l'}{L^2}\right)\right]. \quad (\text{II.D.4})$$

Dans la figure 2.5 nous avons représenté les distributions numériques de chemins de diffusion pour une tranche mince et une tranche plus épaisse et la distribution théorique donnée par l'expression simplifiée II.D.4. Nous voyons que cette distribution ne décrit pas le bon comportement pour la tranche mince. Nous remarquons l'absence de chemins courts $s < L$ pour cette situation. Par contre, pour une tranche plus épaisse, nous obtenons une décroissance exponentielle donnée à peu près par la distribution II.D.4.

Nous remarquons que la bonne variance (constante de diffusion) pour tenir compte de l'anisotropie est celle de la théorie de la marche au hasard et pas celle de la théorie de transport. Ceci a été observé numériquement par van Keuren.²¹

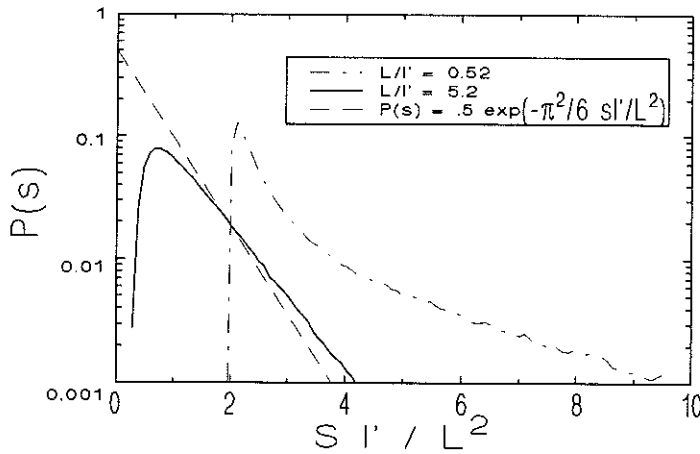


Figure 2.5 Distributions des chemins de diffusion en transmission. L'anisotropie de diffusion est caractérisée par $\langle \cos\theta \rangle = 0.92$. Pour une tranche épaisse ($\frac{L}{l'} = 5.2$) et $s = n l' \gg \frac{L^2}{l'}$, nous trouvons une décroissance exponentielle qui est à peu près donnée par l'expression simplifiée H.D.4, le résultat du régime de diffusion. Pour une tranche plus mince ($\frac{L}{l'} = 0.52$) la distribution s'écarte beaucoup de la distribution du régime de diffusion et nous remarquons l'absence de chemins courts $s < L$.

3. Coefficients de transmission et réflexion

Dans la figure 2.6 nous montrons quelques séquences de diffusion transmises et réfléchies dans une tranche. Ces séquences ont été engendrées par notre simulation numérique où chaque diffusion est anisotrope ($\langle \cos\theta \rangle = 0.92$). L'épaisseur de la tranche est mesurée en unités de $l' = l \frac{1+\mu}{1-\mu}$. Nous notons que les séquences sont "attachées" perpendiculairement aux parois de la tranche comme on le voit dans les figures 2.6.a et 2.6.b. Pour une tranche plus épaisse, nous voyons dans la figure 2.6.c que les chemins en transmission sont forcément plus longs que ceux en réflexion.

Dans la figure 2.7 nous montrons les coefficients de transmission T et réflexion R en fonction de l'épaisseur de la tranche. Nous observons que $T = R = \frac{1}{2}$ pour $\frac{L}{l'} \equiv 1$. En transmission, nous voyons l'approche asymptotique à la loi: $T \propto \frac{1}{L l'}$.

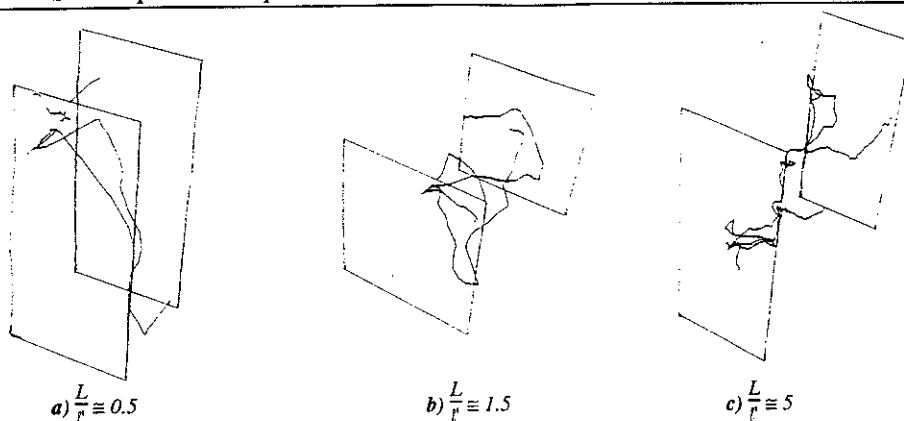


Figure 2.6 Séquence de diffusion en transmission et en réflexion dans une tranche. L'anisotropie de diffusion est caractérisée par $\langle \cos \theta \rangle = 0.92$.

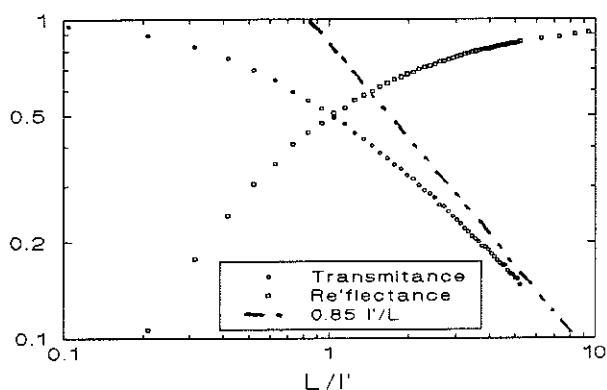


Figure 2.7 Coefficients de transmission et de réflexion en fonction de l'épaisseur de la tranche. L'anisotropie de diffusion est caractérisée par $\langle \cos \theta \rangle = 0.92$.

E. CONCLUSION

Dans ce chapitre nous avons comparé les approches de Boltzmann et de la marche au hasard pour le problème de transport, plus spécifiquement pour la diffusion multiple de la lumière. Nous avons montré que l'équation du transfert radiatif est une approximation du type "champ moyen" de la marche au hasard. Nous obtenons ainsi une constante de diffusion, dont la valeur est plus petite que celle de Boltzmann et qui varie différemment avec l'anisotropie.

En conclusion, nous pouvons classer les différentes modélisations théoriques du problème de la diffusion multiple. *i)* Le modèle le plus simple que l'on puisse considérer est

l'approximation de diffusion. *ii*) Un traitement plus réaliste consiste à considérer l'équation de Boltzmann. *iii*) Une amélioration significative consiste à utiliser le modèle de la marche aléatoire. *iv*) Même dans le cadre de la marche aléatoire, il est très difficile de tenir compte correctement des effets de bords dans le cas de trois dimensions. *v*) Un traitement de Monte Carlo se montre alors utile. Enfin, un modèle plus élaboré de marche au hasard pourrait être envisagé, où les croisements entre chemins de diffusion qui jouent un rôle important dans les corrélations à longue portée seraient pris en compte.

F. REFERENCES

1. L. Landau et E. Lifchitz, "Cinétique Physique," Editions Mir (1990).
2. W. Feller, "An introduction to Probability Theory and its Applications," John Wiley and Sons, New York (1968).
3. Alexander S., Bernasconi J., Schneider W.R. et Orbach R., Rev. Mod. Phys. **53**, 175 (1981).
4. A. Langefeld, rapport de D.E.A., Université Joseph Fourier, Grenoble (1990).
5. A. Heiderich, communication privée.
6. P.M. Morse et H. Feshbach, "Methods of Theoretical Physics," McGraw-Hill Co., New York (1953).
7. A. Ishimaru, "Wave Propagation and Scattering in Random Media," Academic Press, New York (1978).
8. P.J. Flory, "Statistical Mechanics of Chain Molecules," John Wiley and Sons, New York (1969).
9. J.J. Arlonis et W.J. MacKnight, "Introduction to Polymer Viscoelasticity," John Wiley and Sons, New York (1983).
10. A.S. Martinez, thèse de master, Université de São Paulo, São Carlos (1988).
11. M.P. van Albada, B.A. van Tiggelen, A. Lagendijk et A. Tip, Phys. Rev. Lett. **66**, 3132 (1991).
12. B.A. van Tiggelen, A. Lagendijk, M.P. van Albada et A. Tip, Phys. Rev. **B45**, 12233 (1992).
13. B.A. van Tiggelen, thèse de doctorat, Université d'Amsterdam (1992).
14. L.A. Ferrari et Al-Karim Gangji, J. Appl. Phys. **73**, 3133 (1993).
15. Th.M. Nieuwenhuizen et J.M. Luck, "Skin Layer of Diffusive Media," Phys. Rev. E (1993) (sous presse).
16. H.C. van de Hulst, "Multiple Scattering of Light," Academic Press, New York (1980).
17. J. Crank, "The Mathematics of Diffusion," Clarendon Press, Oxford (1990).
18. D. Bicout, E. Akkermans et R. Maynard, J. Phys. (Paris) **II**, 471 (1991).
19. D. Bicout, thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble (1992).
20. D.J. Pine, D.A. Weitz, G. Maret, P.E. Wolf, E. Herbolzheimer et P.M. Chaikin, in: "Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media," edited by: P. Sheng, World Scientific, Singapore (1990).
21. E. van Keuren, communication privée.

CHAPITRE III

POLARIZATION STATISTICS IN MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT: A MONTE CARLO APPROACH

A.S. Martinez and R. Maynard

Expérimentation Numérique and
Centre de Recherche sur les Très Basses Températures
Maison des Magistères CNRS
BP 166
38042 Grenoble Cedex 9 France

ABSTRACT

The statistics of the depolarization of light by multiple scattering is a complex problem in the regime of Mie scattering. Nevertheless, the correlation functions (Stokes intensities) can be entirely determined by studying the loss of memory of both initial linear and circular polarizations as a function of the thickness of a slab (L) in units of the transport mean free path (l^*).

These multiple scatterings of light have been simulated by a Monte Carlo algorithm in the approximation of independent paths and large spheres. We find that, contrary to what is observed for Rayleigh scatterers, the depolarization rate is about twice as large for the linear incident polarization as for the circular one. Also, the mechanism of depolarization is more complex than envisaged previously, since the most probable intermediate states are elliptical rather than linear or circular.

The randomization of the wavevector and helicity of light can be readily seen by the geometrical picture furnished by the Poincaré representation. The polarization states are projected on a sphere, with the linear states located on the equator, the circular ones on the poles and the elliptical ones on the hemispheres. The depolarization process is seen as the spreading-out of the polarization state cloud around the incident state.

These studies lead to new concepts of specific characteristic lengths, which are associated with the vectorial nature of the fields, enriching the standard concept of transport mean free path introduced in the context of scalar multiple scattering.

To be published in *"Localization and Propagation of Classical Waves in Random and Periodic Structures,"*
edited by C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Corporation, New York (to appear).

A. INTRODUCTION

The multiple scattering of waves in random media is well-known so far within four major approximations: *i*) scalar waves, *ii*) point-like scatterers, *iii*) independent Feynman paths, and *iv*) weak concentration of disorder. If the scattering is elastic, the wave interferences are not destroyed by the sample averaging. If the system presents time-reversal invariance, the weak localization effect is observed through the coherent back-scattered cone.¹ The consequences of this residual interference phenomenon can be observed in various physical systems, among them, electrons diffusing in impure metals (mesoscopic scale) or light diffusing in turbid suspensions.

For the case of light, the polarization must be taken into account because of the vectorial nature of the field. This is a difficult problem for the following reason: during the successive multiple scatterings, the transverse electrical field is transformed by the Mie scattering amplitudes and in each step the electric field must be projected onto the scattering plane. This transformation can be simply described by the product of the complex 2x2 (Jones) matrices in the local scattering frame.² The difficulty occurs when this transformation is projected in the laboratory frame, to take into account the geometrical boundary condition.

For point-like scatterers (Rayleigh scattering) a great simplification occurs, since for incident linear polarization, the scattered light remains linearly polarized and it is only parametrized by the emerging wavevector. This is expressed by a real 3x3 matrix in the lab. frame.³⁻⁵ The multiple Rayleigh scattering of n -th order can be treated⁵ analytically by a system of recurrence equations. Its solution yields the depolarization degree as well as the various correlation functions for polarization.

The simplest experimental configuration for measuring the polarization correlation is the slab geometry confining the scatterers. The incident and emerging wavevectors of the plane waves are perpendicular to the slab planes or equivalently parallel to z for transmission or anti-parallel for reflection. For this geometry, the incident and emergent electric fields are in the x - y plane and several symmetries are present: rotation around the z axis and reflection by a plane containing this axis. Remarkably, for this simple geometry, only three parameters are necessary to characterize entirely the random medium. Following the notation of reference 6, these parameters are called a_1 , a_2 and a_4 . They are the elements of the diagonal Mueller matrix acting on the incident Stokes vector.⁶ They have a simple physical meaning: a_1 describes the total transmitted or reflected intensity, $|a_2|$ and $|a_4|$ (divided by a_1) are the polarization degree for incident linear and circular polarization, respectively. Therefore, when the absolute value of the multiply scattered intensity is not relevant, only two measurements are necessary for characterizing the medium, leading to $a'_2 = a_2/a_1$ and $a'_4 = a_4/a_1$.

The scattering by Mie particles, with $a \geq \lambda$, where a is the sphere radius and λ the wave length, is different from Rayleigh scattering. In this case, the characteristic lengths of the multiple-scattering medium must be scaled by the transport mean free path, as was observed in the coherent backscattering experiments.⁷ By measuring the time-correlation of the intensity in a reflection experiment, it was observed^{8,9} that the rate of decorrelation is reversed in the regime of large spheres. For point-like scatterers, the circular polarization decreases faster than the linear one. It is just the opposite for large spheres, the circular polarization is more persistent than the linear one. Moreover, the characteristic length for the randomization of the helicity of circular polarized light is greater than the transport mean free path l^* .

Several problems remain in the context of the multiple scattering of electromagnetic field and call for a deepening of the analysis. For a very large number of scalar wave scatterings, corresponding to thick slabs for instance, the general frame of the theory is the diffusion equation. This leads to a well-known distribution function for the length of the Feynman paths $P(s)$. This "pure" diffusion regime corresponds to complete depolarization of the light. But the approach to the diffusion regime, or still, the cross-over between the single scattering and the "pure" diffusion regime, that we call intermediate regime, raises important problems. What are the polarization decays for the two basic incident polarized light - linear and circular - and how do they depend on the particle size and shape? More precisely, is the approach to complete depolarization state for large spheres given as an effective Rayleigh regime, in the space scale l^* instead of the mean free path l ? What are the effects of the boundary conditions on the correlation functions?

To progress in the understanding of this complex problem, we have written a complete computer program based on the Mie scattering and a Monte Carlo algorithm for generating the independent sequences of scatterings. The correlations for polarization can be obtained in transmission or reflection, through a slab of variable thickness, for different incident polarization states. Contrary to what is observed for Rayleigh scatterers, the circular polarization is more persistent than the linear one. The depolarization rate is about twice as large for the linear incident polarization than for the circular one. Also, the mechanism of depolarization is more complex than envisaged previously by the helicity flip model.⁸ The partial polarization of light is elliptical rather than linear or circular. It is better represented on the Poincaré sphere, the space of the Stokes parameters, rather than in the $\hat{k}$, space where the trajectories are described. Our results fit well the experimental data.¹⁰

The paper is divided as follows. In section II, a brief review is presented of Mie scattering, Stokes intensities and Poincaré sphere. In section III, the multiple Mie scattering is introduced using the Jones formalism. The consequences of the approximation of independent paths are briefly discussed in the context of polarization statistics and the

distribution of the polarization states is obtained analytically on the Poincaré sphere. The description of the Monte Carlo simulation program is given in section IV. Results and discussions of the multiple scattering correlations are reported in section V.

B. SINGLE MIE SCATTERING, STOKES INTENSITIES AND POINCARÉ REPRESENTATION

The scattering of polarized light by a sphere of arbitrary size can be calculated exactly and it is known as Mie scattering. A plane electromagnetic wave with electric field $\mathbf{E}_0$ propagates toward the positive z with wavevector $\hat{\mathbf{k}}$, in an isotropic, homogeneous and non-absorbing medium with refractive index n_m . It is then scattered by a sphere of radius a and refractive index n_s , located at the origin of a coordinate system. If n_s is real, the scattering is elastic and the scattered wave propagates in the direction $\hat{\mathbf{k}}'$, with $|\hat{\mathbf{k}}| = |\hat{\mathbf{k}}'|$. The plane containing the directions $\hat{\mathbf{k}}$ and $\hat{\mathbf{k}}'$ is called the scattering plane. In spherical coordinates, at the position r , so that $\rho \gg ka$ ($\rho = kr$), the scattered electric field $\mathbf{E}_s$ is nearly transverse (far-field approximation). The electric field components parallel and perpendicular to the scattering plane, direction $\hat{\theta}$ and $\hat{\phi}$, respectively, where ϕ is the azimuthal angle and θ the angle between $\hat{\mathbf{k}}$ and $\hat{\mathbf{k}}'$, are given by:

$$\mathbf{E}_s = \frac{je^{j\rho}}{\rho} \mathbf{J}(\theta, \phi) \mathbf{E}_0, \quad (2.1.1)$$

where $j = \sqrt{-1}$ and $\mathbf{J}$ is the Jones matrix given by the product:

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} S_{//}(\theta) & 0 \\ 0 & S_{\perp}(\theta) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \cos\phi & \sin\phi \\ -\sin\phi & \cos\phi \end{bmatrix}. \quad (2.1.2)$$

The second matrix, ϕ dependent, projects $\mathbf{E}_0$ on the parallel and perpendicular directions of the scattering plane. The first one, θ dependent, is diagonal, reflecting the spherical symmetry of the scatterer and its elements are the parallel and perpendicular scattering amplitudes $S_{//}(\theta)$ and $S_{\perp}(\theta)$, respectively, found in references 6 and 11. We notice that from the Mie theory, the equality $S_{//}(0) = S_{\perp}(0)$ means that forward scattering does not change the incident polarization state and that $S_{//}(\pi) = -S_{\perp}(\pi)$ means that the backward scattering reverses the helicity of the incident polarization state. The intensity and polarization are given by the Stokes intensities $i = |E_x|^2 + |E_y|^2$, $q = |E_x|^2 - |E_y|^2$, $u = 2\text{Re}(E_x E_y^*)$ and

$v = 2\text{Im}(E_x E_y^*)$, and obey the Stokes sum rule $i^2 = q^2 + u^2 + v^2$. A geometrical representation for the polarization states is provided by the Poincaré representation.¹¹ In this representation $q = i \cos(2\chi) \cos(2\psi)$, $u = i \cos(2\chi) \sin(2\psi)$ and $v = i \sin(2\chi)$, where ψ is the inclination angle of the ellipse (of the electric field) with respect to given axes and $\tan\chi$ is the ratio between the semimajor and semiminor axes of the ellipse. The positive and negative values $\tan\chi$ stand for left- and right-handed polarizations. On the Poincaré sphere the north and south poles represent left- and right-handed circular polarization, respectively. The northern and southern hemispheres represent left- and right-handed elliptic polarizations and the equator represents linear polarizations.

The differential scattering cross section can be written as:

$$\sigma_d(\theta, \phi, \mathbf{E}_0) = \frac{1}{2} [|S_{//}(\theta)|^2 + |S_{\perp}(\theta)|^2 + |S_{//}(\theta)|^2 - |S_{\perp}(\theta)|^2] f(\mathbf{E}_0, \phi), \quad (2.2)$$

where $f(\mathbf{E}_0, \phi) = (q_o \cos 2\phi + u_o \sin 2\phi) / i_o$. The differential scattering cross section is dependent on θ and ϕ ; moreover it is parametrized by the incident Stokes intensities. For a circular polarized incident wave ($q_o = u_o = 0$), the differential cross section and the Stokes intensities are independent of the azimuthal angle ϕ . From $\sigma_d(\theta, \phi, \mathbf{E}_0)$, one gets the scattering cross section σ_s by integrating over the solid angle $d\theta \cos\theta d\phi / (4\pi)$.

We emphasize that the Mie scattering is anisotropic and changes the polarization of the incident wave which, in general, becomes elliptically polarized. This scattering is governed by two parameters, the size parameter ka and the relative refractive index $m = n_s / n_m$. Fixing m , three regimes are identified, i) Rayleigh for $ka \ll 1$, ii) intermediate for $ka \sim 1$ and iii) large spheres for $ka \gg 1$. This is apparent from the variation of the function (in percent):

$$F(ka) = 100 \frac{\text{Max}[|S_{//}(\theta)|^2 - |S_{\perp}(\theta)|^2]}{\text{Max}[|S_{//}(\theta)|^2 + |S_{\perp}(\theta)|^2]}, \quad (2.3)$$

where Max takes the maximum of its argument when θ varies from 0 to π (Fig. 1). This function points out the difference between the parallel and perpendicular scattering amplitudes. For the Rayleigh regime, the scattering amplitudes are well-known and $F(ka)$ has a maximum value of 50%, while, for large spheres, a good approximation is to consider $|S_{//}(\theta)|^2 \sim |S_{\perp}(\theta)|^2$. This illustrates quantitatively which regime must be considered in a particular situation. For $ka = 6.5$, $F(ka)$ is less than 0.5%, which justifies the approximation of a large sphere, where the dependence on ϕ and $\mathbf{E}_0$ is neglected in Eq. (2.2). This approximation will be used in the numerical simulation. Anisotropy is characterized by :

$$\langle \cos\theta \rangle = \frac{1}{4\pi\sigma_s} \int_0^\pi d\theta \sin\theta \int_0^{2\pi} d\phi \sigma_d(\theta, \phi) \cos\theta \quad \text{and} \quad i^*/l = n^* = 1/(1 - \langle \cos\theta \rangle).$$

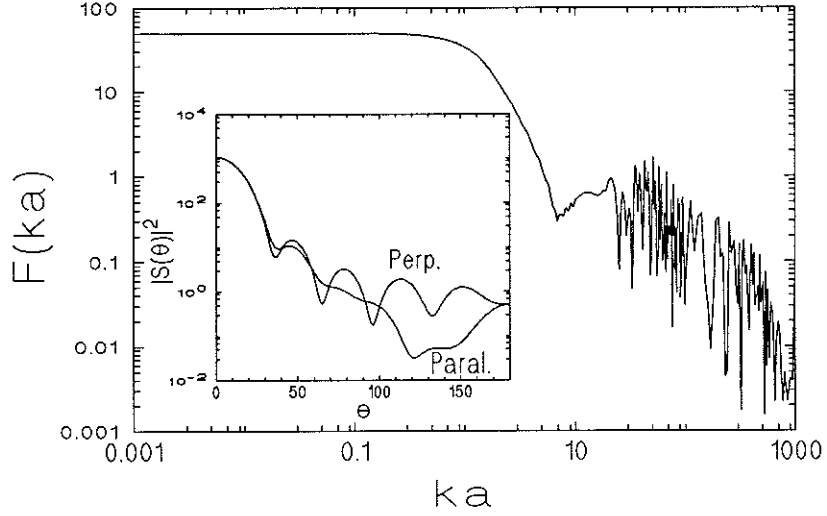


Figure 1. Variation of F (Eq. 2.3) as a function of ka for relative refractive index $m = 1.19$. Rayleigh regime is observed for $ka \ll 1$, the intermediate one for $ka \sim 1$ and the large sphere regime for $ka \gg 1$. Inset: The square of the parallel and perpendicular Mie amplitudes for $ka = 6.5$, $m = 1.19$ and $n^* = 12.6$.

C. MULTIPLE MIE SCATTERING

To study the multiple scattering of light by a disordered sample, let us consider a fixed laboratory coordinate system (x, y, z) and randomly distributed spheres of radius a in a slab parallel to the x - y plane placed between $z = 0$ and $z = L$. Moreover, the far-field approximation is assured by $kl \gg 1$, where l is the mean free path. The light source and the receivers are far away from this region and detection is performed in the direction of the incident light either in transmission or in reflection. A partial field trajectory is obtained by considering a plane electromagnetic wave, with electric field E_0 , propagating along the positive z axis and then scattered by a sphere. A new coordinate system is considered (x_1, y_1, z_1) with origin at the center of this sphere and directions $\hat{x}_1 = \hat{x}$, $\hat{y}_1 = \hat{y}$ and $\hat{z}_1 = \hat{z}$. In the frame (x_1, y_1, z_1) , the scattering angles are θ_1 , ϕ_1 and at r_1 for the scattered wavevector $\hat{k}_1$ and in the far field approximation the scattered electric field is given by Eq. (2.1.1). Let us consider a second sphere at this position. Again, at the center of this sphere we consider a new coordinate system (x_2, y_2, z_2) with $\hat{x}_2 = \hat{\theta}_1$, $\hat{y}_2 = \hat{\phi}_1$ and $\hat{z}_2 = \hat{k}_1$. The partial field is scattered along $\hat{k}_2$ and this procedure is repeated until the partial field meets the n -th and last sphere of this sequence. For the last scattering, we impose the angles θ_n and ϕ_n are such that

$\hat{\theta}_n = \hat{x}$, $\hat{\phi}_n = \pm \hat{y}$ and $\hat{k}_n = \pm \hat{z}$. In the laboratory frame the multiply scattered partial field by the v -th sequence is given by:

$$E_v = \frac{j \exp(j\rho_n)}{\rho_n} J(\theta_n, \phi_n) \dots \frac{j \exp(j\rho_2)}{\rho_2} J(\theta_2, \phi_2) \frac{j \exp(j\rho_1)}{\rho_1} J(\theta_1, \phi_1) E_o. \quad (3.1)$$

By the choice of the angles of the last scattering, we impose that the photon emerges from the medium along the z direction, with a wavevector either parallel or anti-parallel (transmission or reflection) to the incident one.

The transmitted and reflected electric field of the sample μ is given by the summation $E^{(\mu)} = \sum_{\nu} M_{\nu} E_{\nu} / \sqrt{M}$. For a large number of independent sequences ν , by virtue of the central limit theorem, the real and imaginary parts of the superposed photon field $E^{(\mu)}_x = |E^{(\mu)}_x| \exp(j\phi^{(\mu)}_x)$ and $E^{(\mu)}_y = |E^{(\mu)}_y| \exp(j\phi^{(\mu)}_y)$ are Gaussian variables.¹² Thus, in polar representation, the modules $|E^{(\mu)}_x|$ and $|E^{(\mu)}_y|$ are distributed according to the Rayleigh probability density¹² and the phases $\phi^{(\mu)}_x$ and $\phi^{(\mu)}_y$ are uniformly distributed in the interval $[0, 2\pi]$.¹² The phase difference $\phi^{(\mu)} = \phi^{(\mu)}_x - \phi^{(\mu)}_y$ is also uniformly distributed in the interval $[-\pi, \pi]$.

Consider now an ensemble of samples μ . The ensemble averaged Stokes intensities are related to $\langle |E^{(\mu)}_x|^2 \rangle_e$, $\langle |E^{(\mu)}_y|^2 \rangle_e$ and $\langle E^{(\mu)}_x E^{(\mu)*}_y \rangle_e$ where $\langle \dots \rangle_e = \sum_{\mu=1}^N \dots / N$, with $N \gg 1$. A standard approximation is to consider that the phases are random in the product $E^{(\mu)}_l E^{(\mu)*}_m$, (with $l, m = x, y$), since they come from independent paths. The mean intensity is the summation of the intensities of the M sequences of the sample μ and summation over N samples divided by NM . This is equivalent to considering the intensities of one sequence per sample, but NM samples. This equivalence simplifies the calculation because each scattered partial field can be considered as a photon field. This is possible for the calculation of the first moment of the physical quantities, but not for the higher moments which obey Gaussian statistics. This point will be detailed in section V.

The ensemble average makes the system invariant under the symmetries of the sample. For a slab and perpendicular incidence and detection, these symmetries are: *i*) rotation around the incident wavevector and *ii*) reflection by a plane containing this vector. The averaged Stokes intensities are: $I = \langle i \rangle_e = a_1 i_o$, $Q = \langle q \rangle_e = a_2 q_o$, $U = \langle u \rangle_e = a_3 u_o$ and $V = \langle v \rangle_e = a_4 v_o$, where $a_3 = \pm a_2$, the sign plus holding for transmission and minus for reflection.⁶

The degree of polarization is defined as:

$$P = \sqrt{\frac{Q^2 + U^2 + V^2}{I^2}} = \sqrt{\left(\frac{a_2}{a_1}\right)^2 + \frac{a_4^2 - a_2^2}{a_1^2} \left(\frac{v_o}{i_o}\right)^2}, \quad (3.2)$$

where we have used the Stokes sum rule for the incident polarized light. For incident linear ($v_o = 0$) and circular ($v_o = \pm i_o$) polarized light, P is given, respectively, by $|a_2|/a_1$ and $|a_4|/a_1$, hence only two parameters are necessary to characterize completely the scattering medium.

A Hermitian matrix can be constructed from the Stokes intensities. This is called the coherence matrix:¹²

$$C = \frac{I}{2} \begin{bmatrix} I + Q & U + jV \\ U - jV & I - Q \end{bmatrix}, \quad (3.3)$$

The eigenvectors are orthogonal and the eigenvalues are real. In the eigenvector basis, the eigenvalues are independent intensities, and the phase difference of the electric fields is also independent and uniformly distributed, by virtue of the central limit theorem. The basis which diagonalizes C is the basis that preserves the symmetry of the wave polarization and slab. For linearly polarized light, this basis is the lab. frame (x, y, z) , since $U = V = 0$, following the central limit theorem. The amplitudes $|E_x|$ and $|E_y|$ are obtained from the Rayleigh distribution:¹²

$$P_R(|E_x|) = 2 \frac{|E_x|}{I_x} \exp\left(\frac{-i_x}{I_x}\right), \quad (3.4)$$

where $I_x = (I + Q)/2$ and $i_x = |E_x|^2$. The joint probability density is the product of the distributions of the independent variables:

$$P_J(|E_x|, |E_y|, \phi) = \frac{P_R(|E_x|)P_R(|E_y|)}{2\pi}. \quad (3.5)$$

For linearly polarized incident light, we notice that $U = V = 0$ and the polarization degree is merely $P = |Q|/I$. The distribution for i and q as variables is:

$$P_f(i, q, \phi) = \frac{1}{\pi I^2 (1 - P^2)} \exp \left[\frac{-2(i - qP)}{I(1 - P^2)} \right] . \quad (3.6)$$

This distribution is parametrized by the mean total intensity and by the polarization degree, and it is completely equivalent to the distribution obtained recently in reference 13. In terms of the variables $u = \cos \phi \sqrt{i^2 - q^2}$ and $v = \sin \phi \sqrt{i^2 - q^2}$, one has a new distribution, which leads to the expected mean values $\langle i \rangle_e = I$, $\langle q \rangle_e = IP$, $\langle u \rangle_e = \langle v \rangle_e = 0$, and to the variances $\sigma_i^2 = \sigma_q^2 = I^2(1 + P^2)/2$ and $\sigma_u^2 = \sigma_v^2 = I^2(1 - P^2)/2$, where $\sigma_x^2 = \langle x \rangle_e^2 - \langle x^2 \rangle_e$. The variances of the Stokes intensities are not all independent and for any incident polarization, they must satisfy the relation:

$$\sigma_q^2 + \sigma_u^2 + \sigma_v^2 = \sigma_i^2 + I^2(1 - P^2) , \quad (3.7)$$

which comes from the Stokes sum rule.

Still considering linearly polarized incident light, the distribution can be transformed to the Poincaré variables i , 2χ and 2ψ and it reads:

$$P_f(i, 2\chi, 2\psi) = \frac{i \cos(2\chi) \exp \{ -2i [1 - P \cos(2\chi) \cos(2\psi)] / (I(1 - P^2)) \}}{\pi I^2 (1 - P^2)} . \quad (3.8)$$

Using the reduced intensities q/i , u/i and v/i , the polarization states are projected onto a spherical surface of the Poincaré representation, and one obtains the distribution of the Poincaré angles by integrating over the intensity i . The probability to have a polarization state in the interval $[2\chi, 2\chi + d(2\chi)]$ and $[2\psi, 2\psi + d(2\psi)]$ is given by:

$$P_L(2\chi, 2\psi) d(2\chi) d(2\psi) = \frac{1 - P^2}{4\pi [1 - P \cos(2\chi) \cos(2\psi)]^2} \cos(2\chi) d(2\chi) d(2\psi) , \quad (3.9)$$

where $\cos(2\chi) d(2\chi) d(2\psi)$ is the surface element of the Poincaré sphere. For totally depolarized emerging light from the slab ($P = 0$) the polarization states are uniformly distributed on the sphere. Within this representation, one can geometrically see that a quasi-circular state (located around the pole) is less probable to occur than a quasi-linear one (located around the equator). This distribution leads to the first moments and to the second moments:

$$\langle \frac{q}{i} \rangle_e = \frac{1}{P} \left[1 - \frac{1-P^2}{2P} \ln \left(\frac{1+P}{1-P} \right) \right] \quad \text{and} \quad \langle \frac{u}{i} \rangle_e = \langle \frac{v}{i} \rangle_e = 0, \quad (3.10)$$

$$\langle \left(\frac{q}{i} \right)^2 \rangle_e = \frac{2}{P^2} \left[1 - \frac{1-P^2}{2P} \ln \left(\frac{1+P}{1-P} \right) \right] - 1 \quad \text{and} \\ \langle \left(\frac{u}{i} \right)^2 \rangle_e = \langle \left(\frac{v}{i} \right)^2 \rangle_e = \frac{1-P^2}{P^2} \left[\frac{1}{2P} \ln \left(\frac{1+P}{1-P} \right) - 1 \right]. \quad (3.11)$$

Let us consider circular incident polarization. The basis which diagonalizes the coherence matrix is $(x + jy)/\sqrt{2}$, $(x - jy)/\sqrt{2}$. Expanding the Stokes intensities in this basis, one sees that v plays exactly the same role as q for incident linear polarization in the lab. frame. The distribution of the Stokes intensities is then given by replacing q by v in Eq. (3.3). The distribution of the Poincaré angles is then given by:

$$P_C(2\chi, 2\psi) d(2\chi) d(2\psi) = \frac{1-P^2}{4\pi[1-P\sin(2\chi)]^2} \cos(2\chi) d(2\chi) d(2\psi), \quad (3.12)$$

while the angle 2ψ is uniformly distributed (rotation symmetry around the v/i -axis).

For $P = 0$, Eq. (3.7) yields the same function as the distribution for linearly polarized incident light, but the approach to this regime is drastically different. The distribution of polarization states on the Poincaré sphere preserves the symmetry of the incident polarization state. For linearly polarized light the intensity is invariant by a reflection on a plane containing the electric field and by reflection on a plane parallel to it. Circular incident polarization is invariant by a rotation around the propagation direction. The first and second moments are obtained by interchanging the intensities q and v in Eqs. (3.10) and (3.11), respectively.

The statistics of the depolarization of light is completely determined by the knowledge of $P_L(2\chi, 2\psi)$ and $P_C(2\chi, 2\psi)$, but these distributions are parametrized by the polarization degree P which is known only for Rayleigh scatterers but not in general. Moreover, the polarization degree depends on the thickness of the slab.

For non-Rayleigh scatterers, the polarization degree was studied numerically by the radiative transfer theory.¹⁴ Although this approach takes into account the phase difference between the electric field components, it does not furnish the absolute phase for a given scattering sequence. Moreover, the intermediate regime $L \sim t^*$ is poorly described by this theory. The numerical simulation based on the Monte Carlo algorithm is more flexible.

D. MONTE CARLO SIMULATION

To simulate sequences of Mie scatterings in a slab of length L , we have used a Monte Carlo method. The spherical Bessel functions, needed to calculate the Mie coefficients, have been obtained using the Lentz algorithm,¹⁵ and the coefficients were obtained as described in reference 16. The Neumann functions and the Legendre polynomials are obtained from adapted algorithms found in reference 17.

The distance that a photon travels without suffering a collision is given by the distribution $\exp(-r/l)/l$. The distance $l = 1/(\phi_c \sigma_s)$ is the mean free path, where ϕ_c is the concentration of spheres and σ_s is the scattering cross section. We are interested on the dependence of physical quantities as a function of the reduced slab length L/l^* . In practice, this is generally performed by fixing L and varying ϕ_c . In our simulation, we consider l fixed, such that $kl = 1000$, corresponding to weak concentration, justifying the far field approximation, and we vary L . Therefore, the electric fields of each Mie scattering are calculated within the far-field approximation.

In the slab, the photon history starts at the origin of the laboratory frame (x, y, z) . It propagates along the z axis until $z' > 0$. This distance is generated following the exponential distribution. If $z' > L$, the photon leaves the slab without suffering a collision and the electric field is calculated on the plane $z = L$. On the other hand, if $0 < z' < L$, a sphere of radius a is present and the electric field is calculated at this position. A new coordinate system (x_I, y_I, z_I) is considered, just as described in section II. The scattering angles θ_I and ϕ_I are generated by the Mie distribution and a new distance r_I by the Poisson distribution. This new position (θ_I, ϕ_I, r_I) is then calculated in the lab. frame. If its z -component is greater than L the photon is transmitted, if it is negative, the photon is reflected. In both cases the field is calculated on the boundary of the slab. We notice that after every scattering the field is normalized. If the photon does not escape from the slab, new angles are chosen following the Mie distribution and a new distance is generated. This process is repeated successively till the moment a sphere lies outside the slab. The last scattering is not random, the photon is forced to escape perpendicularly to the plane of the slab. A weight is then assigned to each sequence. This weight is the probability for a photon to be scattered in the direction θ' and ϕ' that are the calculated angles for the photon to leave the slab perpendicularly. In transmission, the multiply scattered electric field is calculated in the lab. frame (x, y, z) but in reflection, it is calculated in the frame $(x, y, z)_r$. This frame is obtained by an improper rotation of the lab. frame $(x \rightarrow x, y \rightarrow -y, z \rightarrow -z)$.

An important step of the method resides in the choice of the scattering angles θ and ϕ . We emphasize that the complete Mie distribution is not separable (Eq. (2.2)). Even worse, it is parametrized by the incident field. Generating this distribution numerically, by the

rejection method, is very time consuming. For large spheres, the distribution takes a simpler form. It is independent of both ϕ and of the incident field. Therefore, the angle ϕ can be chosen following a uniform distribution and the angle θ is given by the approximate large sphere Mie distribution $[|S_{//}(\theta)|^2 + |S_{\perp}(\theta)|^2]/(2\sigma_s)$. This simplification has already been used in previous simulations.¹⁸⁻²⁰ In this case, the angle θ can be generated by the cumulative function (the integral of the large sphere Mie distribution). This method is very efficient, since a single random number is needed for each θ . The values of the cumulative function can be tabulated as well as the values of the scattering amplitudes. The tables are divided in intervals of 1° in θ and data are obtained from these tables by linear interpolation.

We emphasize here that the numerical study of the distribution of polarization states on the Poincaré sphere is done by considering the summation over the partial fields and then the intensity is calculated for each sample. On the other hand, the polarization degree is obtained considering one sequence per sample since only the mean values of the Stokes intensities are necessary. The polarization degree for incident linearly polarized light is scaled by L/l^* as shown in reference 20.

E. POLARIZATION MEMORY: RESULTS AND DISCUSSION

1. Transmission

The polarization degrees for incident linear and circular polarization were obtained by our numerical simulation for the following values $ka = 6.5$, $m = 1.19$ and $kl = 1000$ leading to $l/l^* = 12.6$ and $\sigma_s/\pi a^2 = 2.41$. The experimental counterpart¹⁰ corresponds to $\lambda_{vac} = 514.5$ nm propagating in water ($n_m = 1.33$) and polystyrene ($n_s = 1.58$) spheres of mean radius 400 nm in a slab of $L = 1$ mm leading to $ka = 6.5$, $m = 1.19$ and the concentration in volume is varied to alter the ratio L/l^* . The results of the simulation and experiment are plotted in Fig. 2.

For very thin slabs ($L/l^* \ll 1$), $P(L/l^*)$ is close to one. This means that the photons cross the slab with trajectories which are very close to a straight line, since each single scattering is strongly peaked forwards (Fig. 1 inset). This does not alter significantly the incident polarization state. For $L \sim 2l^*$, the transmission coefficient is close to 50%. This value happens because a photon needs, in average, a distance l^* to turn its direction of $\pi/2$, (l^* is a gyration radius) and then they can either be transmitted or reflected with equal probability. $L \equiv 3l^*$ is a limiting value for the dominant effects of the boundaries. This

value can be understood in the following way: by subtracting l^* from each boundary, the trajectories still have at least one gyration radius for an "isotropization" of $\hat{k}$. When $L > 3l^*$ the degree of polarization decreases exponentially with L/l^* . A characteristic depolarization length can then be assigned to the incident circular and linear state from the fitted curves (ae^{bL/l^*}):

$$P_L(L/l^*) \sim e^{-0.716L/l^*} \quad \text{and} \quad P_C(L/l^*) \sim e^{-0.358L/l^*}. \quad (5.1)$$

These characteristic lengths are:

$$l^{**}_{\text{linear}} = 1.39 l^* \quad \text{and} \quad l^{**}_{\text{circular}} = 2.79 l^*, \quad (5.2)$$

so that $l^{**}_{\text{circular}}/l^{**}_{\text{linear}} = 2.00$.

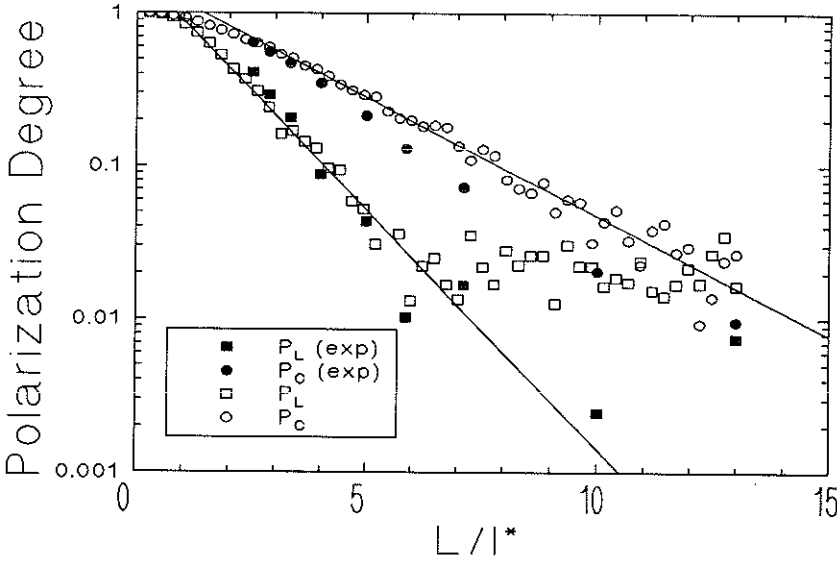


Figure 2. Degree of polarization in transmission for linearly and circularly incident polarized light polarization as a function of L/l^* , for at least 10000 outgoing photons, with the parameters $ka = 6.50$, $kl = 1000$ and $m = 1.19$. The simulation data are fitted, for $L/l^* > 2.5$ by $P(L/l^*) = ae^{bL/l^*}$ with $a = 1.84$ and $b = -0.716$ for incident linear polarization and $a = 1.68$, and $b = -0.358$ for incident circular polarization. The values around $P = 0.02$ correspond to a numerical noise. The experimental data are found in reference 10.

To emphasize the strong difference between the Rayleigh and the Mie regime, we have plotted the variable $\delta = P_L - P_C$ as a function of L/l^* . The Rayleigh expression of δ is obtained from the simple expression of the basic parameters a'_2 and a'_4 as a function of the number of scatterings n for large n ,^{5,21} convoluted with the standard distribution $P(s;L)$ of the diffusion theory:

$$P_L(L\lambda) \sim e^{-1.07L\lambda} \quad \text{and} \quad P_C(L\lambda) \sim e^{-2.08L\lambda} . \quad (5.3)$$

The most striking difference is the change of sign for δ showing the non universal behavior of the multiple scattering regime (Fig. 3). These results are reported in Table 1 where the characteristic lengths for the different regimes are collected.

Table 1. Differences of the characteristic lengths for scalar and vectorial fields and for Rayleigh and Mie (large spheres) regimes.

Characteristic Length	Scalar Fields	Vectorial Fields	
		Linear	Circular
Rayleigh	l	$0.935 l$	$0.481 l$
Mie (Large Spheres)	l^*	$1.39 l^*$	$2.79 l^*$

The change of the sense of the inequality between P_L and P_C can be understood in a simple way:⁸ in the Rayleigh regime, isotropy of the scattering weights equivalently the forward- and backscattering. For incident linear polarization both scattering modes preserve the linear polarization and maintain the polarization degree at a high value. The situation is reversed for circular polarization since the backscatterings flip the helicity of the incident polarization, hence $P_L > P_C$. For Mie or large spheres, the scattering is strongly peaked forwards and the randomization of the azimuthal angle ϕ affects considerably the linear polarization while the circular one is almost preserved, hence $P_L < P_C$.

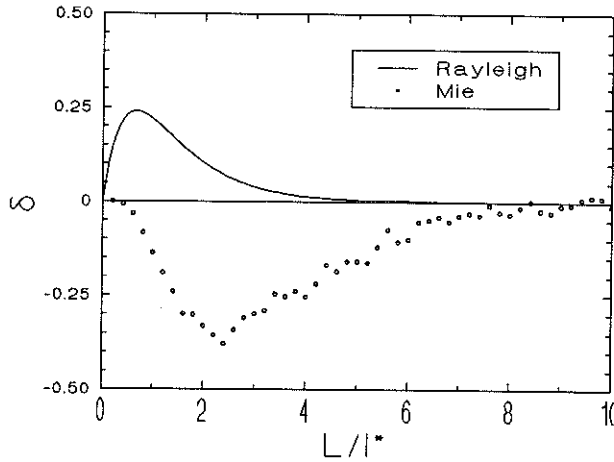


Figure 3. $\delta = P_L - P_C$ as a function of Ll^* for the Rayleigh and Mie regimes. Contrary to the point-like scatterers δ is negative for large spheres.

2. Reflection

For the same values of the parameters ka , kl and m , the polarization degree is obtained in the reflection geometry and represented in Fig. 4. The main result is the non-vanishing asymptotic value of P_C for large Ll^* (up to 50), exhibiting a strong persistent degree of polarization for very thick slabs. This result was previously reported⁸ for indirect measurements of the depolarization by dynamical correlation function or by numerical solution¹⁴ of the radiative transfer equation. Indeed, it originates from the dominant weight of the short loops for the reflection geometry (in the diffusion theory $P(s) \sim s^{-3/2}$, see, for example, reference 22). We stress that, like in references 8 and 14, we have not taken into account the contribution of the reversed sequences, which gives rise to the back-scattering cone.

For thinner slabs $L \sim l^*$, P_C has a maximum. This situation corresponds to slabs where the first loops of gyration l^* can be put within the thickness. The degree of circular polarization remains high, since the helicity is almost preserved along these loops. When $L < l^*$, these loops are inhibited and only the very rare (but efficient) backscattering collisions subsist. Concerning the linear polarization, the degree is always very weak by efficient ϕ -randomization, previously mentioned.

It may be concluded that the diffusion theory is not the appropriate context for the analysis of these results: both the boundary effect and the anisotropy of the scattering ($l^* = 12.6l$) provide features which must be handled by other considerations.

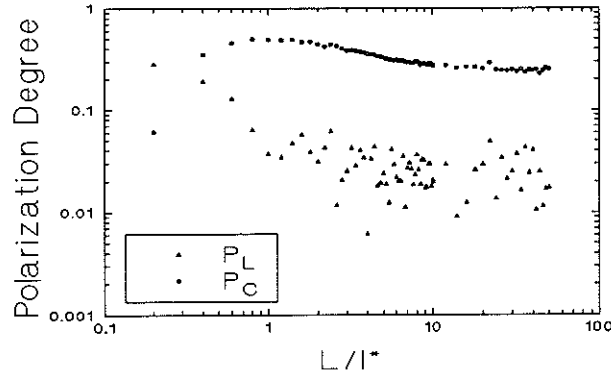


Figure 4. Polarization degree as a function of L/l^* in reflection. The parameters are the same as in Fig. 2. For incident circular polarization, the degree of polarization converges asymptotically to a value around 0.25. The polarization memory of circular polarized light is then observed in the Mie regime. The values around $P = 0.02$ correspond to a numerical noise.

3. Poincaré Sphere

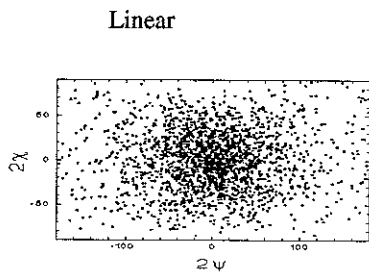
A description of depolarization processes is given by the complete distribution of the polarization states. A useful geometrical picture of the two depolarization modes, one associated with the randomization of the direction of the electric field and the other associated with the randomization of the helicity of the wave, is given by the Poincaré representation. The polarization state of each outgoing recomposed field is projected onto the Poincaré sphere of unit radius with axes q/i , u/i and v/i . The Poincaré clouds are shown in the plane-sphere representation of Fig. 5 for several slab lengths in transmission.

For very thin slabs, the polarization states on the Poincaré sphere are concentrated close to the incident state, respectively, on the equator for linear polarization and on one of the poles for circular state. As the slab thickens, the polarization states for the linear incident mode migrate towards east and west and to the north and south indicating that the depolarization is caused by the randomization of direction of the electric field and helicity. This can be seen more quantitatively by the variation of the first and second moments of the reduced Stokes intensities as a function of P (Eqs. 3.10 and 3.11). For $L/l^* \sim 3$, this distribution converges to the diffusion law, where the states are uniformly distributed on the sphere. For the incident circular polarization state, the distribution is independent of the angle 2ψ . This rotation symmetry around the axis v/i reflects the fact that each Mie scattering is independent of the azimuthal angle ϕ . This distribution migrates towards the equator as L increases. For $L/l^* \sim 3$, one hemisphere is almost filled. This distribution starts populating

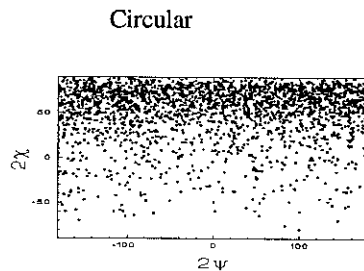
the opposite hemisphere for larger values of L . For $L/l^* > 6$, the distribution is practically uniform on the sphere.

An advantage of the Poincaré representation is the possibility to exhibit clearly the important difference between the processes of depolarization through Rayleigh and Mie regimes. Now we consider the intensities of each scattering sequence (not the recomposed field). For Rayleigh scatterings, the linear polarization is completely destroyed in a few scatterings by transitions on the equatorial circle. Also, the incident circular polarization is flipped to the opposite helicity in few scatterings. A good approximation is to consider the equator line (ϕ - or 2ψ -depolarization) and the v/i -axis (helicity or 2χ -depolarization), both as one manifold on the Poincaré sphere. Hence, the mechanism proposed recently⁸ describes correctly the Rayleigh regime. Quite different is the polarization process for the Mie or large sphere scatterings. Here, it is seen as the spreading-out of the polarization state cloud around the incident state. The implied phase space is actually of two-dimensional nature on the Poincaré sphere and the elliptical polarization is largely dominant. A theoretical approach founded on renormalization methods is in progress.

The enhancement factor 2 for the incident circular polarization can be explained tentatively by exploring the rotation symmetry around the v/i axis on the Poincaré sphere for circular incident polarization. Linear polarization can be written as a sum of right- and left-handed circular polarization with equal amplitudes. The right and left-handed circular polarizations are represented on the Poincaré sphere as the south and north pole, respectively. As the slab becomes thicker, the two circular distributions migrate towards the equator, so the diffusion distribution will be reached about twice as fast as for a single circular state. The reasoning that two linear states dephased of $\pi/2$ form a circular state cannot be applied, because the rotation of the sphere around q/i or u/i is not symmetric and a composition rule is not easily found. For Rayleigh particles, this argument cannot be applied since there is no continuous filling of the elliptical states.



a) $P = 0.753$



d) $P = 0.881$

Linear

Circular

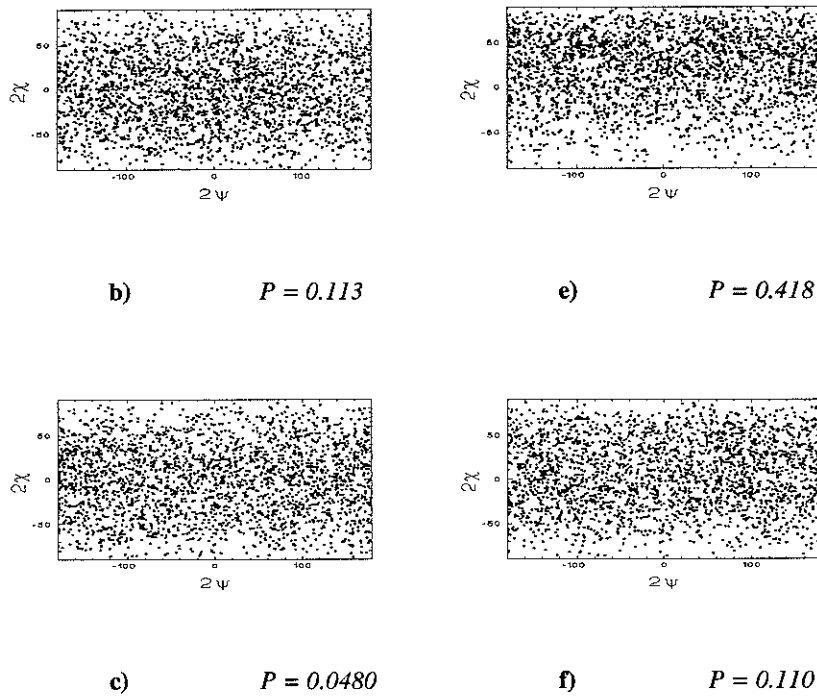


Figure 5. Plane-sphere of the Poincaré representation for different thickness of slabs. These figures have been generated by the recombination of about 625 partial fields and at least 625 transmitted polarization states have been plotted. The parameters are the same as in Fig. 2. Linear and circular incident polarization states correspond to the left and right columns. Slab thicknesses of $L = 1, 3$ and 6λ correspond to the first, second, and third rows, respectively.

F. CONCLUSION

The numerical approach of the complex problem of the polarization correlation is based on the exact Mie scattering amplitudes and on a Monte Carlo algorithm for generating independent sequences of multiple scattering. In the intermediate regime of non-zero polarization degree, the Mie, or large spheres, multiple scattering is quite different from the point-like or Rayleigh scattering. Two important results have been obtained with this numerical simulation in the Mie regime:

i) The rate of depolarization is different for circular and linear incident polarization. In the large-sphere regime they differ from the Rayleigh regime, since the helicity of circular polarization needs more scatterings to be randomized. Contrary to what was claimed in reference 21, the difference between the circular and linear polarization degree (the parameter δ) is not positive.

ii) The depolarization process is given by a continuous and progressive covering of the Poincaré sphere as a function of the polarization degree, which is a function of the slab length. Contrary to reference 13, elliptical states are the most probable ones and they are important in the depolarization process, especially for incident circular polarization. The helicity flip model⁸ is oversimplified.

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank F. Erbacher, R. Lenke and G. Maret for results prior to publication and for fruitful discussions as well as S. Alexander, and A. Dauchy for general assistance. One of us (A.S.M.) also wishes to thank C.A.P.E.S. for financial support.

REFERENCES

1. See, for instance: M.P. van Albada, M.B. van der Mark and A. Lagendijk, "Experiments on weak localization of light and their interpretation," in: *Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media*, P. Sheng editor, World Scientific Publishing, Singapore (1990).
2. P.S. Theocaris and E.E. Gdoutos, *Matrix Theory of Photoelasticity*, SpringerVerlag, Berlin (1979).
3. E. Akkermans, P.E. Wolf and R. Maynard, Phys. Rev. Lett. **56**, 1471 (1986).
4. M.J. Stephen and G. Cwilich, Phys. Rev. **B34**, 7564 (1986).
5. E. Akkermans, P.E. Wolf, R. Maynard and G. Maret, J. Phys. (Paris) **49**, 77 (1988).
6. H.C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles*, Dover Publications, New York (1981).
7. P.E. Wolf, G. Maret, E. Akkermans and R. Maynard, J. Phys. (Paris) **49**, 63 (1988).
8. F.C. MacKintosh, J.X. Zhu, D.J. Pine and D.A. Weitz, Phys. Rev. **B40**, 9342 (1989).
9. P.E. Wolf and G. Maret, "Dynamics of Brownian particles from strongly multiple light scattering," in: *Scattering in Volumes and Surfaces*, M. Nieto-Vesperino and J.C. Dainty editors, Elsevier Science Publishers B.V. (1990).
10. F.A. Erbacher, Ph.D. thesis, Constance University (1992).
11. A. Ishimaru, *Wave Propagation and Scattering in Random Media*, Academic Press, New York (1978).
12. J. Goodman, *Statistical Optics*, John Wiley & Sons, Inc., (1985).

13. S.M. Cohen, D. Eliyahu, I. Freund and M. Kaveh, Phys. Rev. **A43**, 5748 (1991).
14. R.L. Cheung and Ishimaru, Appl. Opt. **21**, 3792 (1982).
15. W.J. Lentz, Appl. Opt. **15**, 668 (1976).
16. G. Grehan and G. Gouesbet, Appl. Opt. **18**, 3489 (1979).
17. W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky and W.T. Vetterling, *Numerical Recipes, The Art of Science Computing*, Cambridge University Press (1989).
18. E.A. Bucher, Appl. Opt. **12**, 2391 (1973).
19. K.E. Kunkel and J.A. Weinman, J. Atmos. Sci. **33**, 1772 (1976).
20. P. Bruscaaglioni and G. Zaccanti, "Depolarization of radiation due to multiple scattering," in: *Topical Meeting on Atmospheric, Volume and Surface Scattering and Propagation*, Florence (1991).
21. I. Freund, Opt. Commun. **81**, 251 (1991).
22. D. Bicout, E. Akkermans and R. Maynard, J. Phys. (Paris) **II**, 471 (1991).

CHAPITRE IV

FARADAY EFFECT IN THE MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT: A MONTE CARLO SIMULATION

A.S. Martinez and R. Maynard
Laboratoire d'Expérimentation Numérique and
Centre de Recherche sur les Très Basses Températures
Maison des Magistères CNRS
BP 166
38042 Grenoble Cedex 9 France

ABSTRACT

A Monte Carlo simulation is used to obtain the intensity correlation function in the multiple scattering of an incident linearly polarized light in a magneto-optically active medium. The scatterers are finite spheres and each single scattering is calculated by the Mie theory. For the diffusion regime, the results predicted by a simple stochastic theory are verified. On the other hand, in the intermediate regime, the correlation function is described by the one-dimensional model, which explains the origin of the unexpected oscillations of the correlation function.

To be published in: *"Soft Order in Physical Systems , "* edited by: R. Bruinsma and Y. Rabin
Plenum Publishing Corporation, New York (to appear).

The observation of the weak localization in multiple scattering of waves in disordered media such as the enhanced back scattering of light¹ or the universal conductance fluctuation in mesoscopic conductors,² has stimulated research in this field.³ However, our knowledge on the wave propagation in disordered media remains mainly restricted to scalar waves, point-like (isotropic) scatterings and independent Feynman paths.³ The level of this last approximation to describe the multiple scattering of n^{th} order is analogous to the problem of the conformation of n monomers in a polymer chain.⁴ A sequence of n scatterings corresponds to a trajectory in real space with broken lines of mean length l : the photon mean free path. These lines are the bond lengths between two monomers in the polymer. The anisotropy of the scattering corresponds to a rigidity of the polymer described by the persistence length and the diffusion constant of the photons is proportional to the gyration radius. However, the fact that the multiple scattering sequences are only the partial scattered waves, which must be recomposed to build up the scattered wave, provides an important difference between these two fields.

Moreover, for the case of light, the vectorial nature of the field must be taken into account, as well as the size of the scatterers. The combination of the polarization of light and the finite size of the scatterers, which are supposed to be spherical, leads to the anisotropic Mie scattering.⁵ This is a difficult problem for the following reason: during the successive multiple scatterings, the transverse electric field is changed by the scattering amplitudes and in each step it is given in a local basis. The difficulty occurs when the electric field is projected into the laboratory frame, in order to compare the different polarization states and to take into account the boundary conditions. The simplest experimental configuration for measuring the intensity correlation is a slab confining the scatterers where the incident and emergent wavevectors are perpendicular to its planes.

The weak localization of light is observed through the enhancement factor 2 in the reflection experiment. The presence of a magnetic field $\mathbf{B}$ in a magneto-optically active medium produces a Faraday rotation of the polarization vectors between successive scatterings. This effect is proportional to $V\hat{\mathbf{k}}\cdot\mathbf{B}$, where V is the Verdet constant and $\hat{\mathbf{k}}$ the unitary wavevector. It breaks down the time reversal symmetry⁶ and destroys the weak localization effect by decreasing the enhancement factor of the coherent back scattering cone.⁷ This was recently observed experimentally as well as the intensity correlation under magnetic field.⁸⁻¹⁰

Several problems occur in the context of the multiple scattering of electromagnetic field and call for a deepening of the analysis. For a very large number of scatterings, corresponding to thick slabs, the general frame of the theory is the diffusion equation. This "pure" diffusion regime corresponds to complete depolarization of the light. But the approach to the diffusion regime, or still, the cross-over between the single scattering and the "pure"

diffusion regime, that we call intermediate regime, raises important problems concerning the characteristic lengths of the system. It has been shown^{11,12} that the polarization decays for the two basic incident polarized light - linear and circular - are exponential but with different characteristic lengths which depend on the particle size. The five characteristic lengths (slab thickness, wavelength, particle size, mean free path and transport mean free path) of the problem are not enough to describe the vectorial properties of the medium.

In this paper we will consider the approach towards a pure diffusive regime when incident linear polarized light is multiply scattered by a magneto-optically active random medium. Motivated by recent experiments⁸⁻¹⁰ we are interested in the intensity along the x -axis: $i_x = |E_x|^2$, where E is the electric field as a function of the magnetic field B . The correlation function for the transmitted light through an infinite slab parallel to the x - y plane and of thickness L along the z -axis, in the approximation of independent paths, is given by:

$$G_{xx}^{(2)}(B) = \frac{\langle i_x(0)i_x(B) \rangle}{\langle i_x(0) \rangle \langle i_x(B) \rangle} - 1 = \frac{|\langle E_x(0)E_x^*(B) \rangle|^2}{\langle i_x(0) \rangle \langle i_x(B) \rangle}, \quad (1)$$

where the symbol $\langle \dots \rangle$ stands for the ensemble average. Notice that $G_{xx}^{(2)}(B) = 1$ for a homogeneous medium.

Let us recall the simple stochastic⁷ model which can be considered as a first approach to the law of variation of $G_{xx}^{(2)}(B)$. Consider the isotropic (Rayleigh) scattering regime: the wavevector $\hat{k}$ is randomized in the length scale of the mean free path l . It is assumed that in the same length scale, the polarization is randomized by a simple random process of helicity flip (of "Ising" type) in the circular wave representation. This is described by an external second random variable $\eta_\kappa = \pm 1$ with equal probability, the index κ being the scattering label. The phase difference between right- and left-handed helicity $\delta\phi_\kappa = \eta_\kappa \alpha_\kappa$ with $\alpha_\kappa = VB l \cos\Omega_\kappa$, where Ω_κ , the angle between B and $\hat{k}_\kappa$, is uniformly distributed in the interval $[0, \pi]$. The phase difference is a random variable with zero mean value. For a given sequence, the total phase difference Φ between the circular states is $e^{j\Phi} = \exp(j \sum_{\kappa=1}^n \delta\phi_\kappa)$ since $\delta\phi_\kappa$ are independent random variables of zero average. By virtue of the central limit theorem $\langle e^{j\Phi} \rangle = \exp(-n\langle \delta\phi^2 \rangle) = \exp(-n\langle \alpha^2 \rangle)$. Confining the scatterers in a slab of thickness L , from the diffusion theory ($L/l \gg 1$), we use the path length (s) distribution function $P(s)$. The transmitted light is completely depolarized $\langle i_x(0) \rangle = \langle i_x(B) \rangle = 1/2$ and from Eq. 1, one gets for $\langle \alpha^2 \rangle < 1$:

$$G_{xx}^{(2)}(\xi) = \left[\int_L^\infty ds P(s) \exp\left(-\frac{s\langle \alpha^2 \rangle}{l}\right) \right]^2 \equiv \left[\frac{\xi}{sh(\xi)} \right]^2 \approx 1 - \frac{\xi^2}{3}, \quad (2)$$

where $\xi = L\sqrt{\langle\alpha^2\rangle}/l = VBL$. The variable ξ couples exactly B and L through the factor BL . It is believed that this theory can be applied for anisotropic scatterings by changing the mean free path into the transport one l^* .^{8,9}

By the rotation of the polarization states between the scatterings events, the Faraday effect is taken into account in the Monte Carlo simulation that we have described in reference 12. The effect of the magnetic field inside the scatterers is ignored. We have considered incident linear polarized light along the x axis with a wavelength in the vacuum $\lambda_{vac} = 0.4579 \mu m$. The Verdet constant of the medium is $V = 157.1 \text{ rad/(mT)}$ and its refraction index $n_m = 1.69$. The spheres have a radius $a = 0.1 \mu m$, refraction index $n_s = 1.45$ and are diluted, representing $\Phi = 1\%$ of the volume. The magnetic field is applied along the z axis and we have considered 10000 sequences for each slab thickness. From the Mie theory ($ka = 2\pi n_m a / \lambda_{vac} = 2.32$ and $n_s/n_m = 0.858$) we obtain a total scattering cross section $\sigma_t = 0.00441 \mu m^2$, $l = 1/(\sigma_t \Phi) = 0.0951 \text{ mm}$, the mean value of the cosines of the scattering angle is $\langle\cos\theta\rangle = 0.669$ leading to a Boltzmann transport mean free path $l^*/l = 1/(1 - \langle\cos\theta\rangle) = 3.02$.

For transmission, the intensity correlation functions are shown in figure 1. In the diffusion limit (inset of figure 1) $L/l^* = 7, 8, 9, 10$ and 11 , VBL , is the good reduced variable, according to the stochastic theory for small values of VBL . For larger values of VBL , $G^{(2)}_{xx}(B)$ cannot be written only in terms of VBL . This is apparent from figure 1 where oscillations are observable above the noise. For the intermediate regime, we have plotted $G^{(2)}_{xx}$ as a function of VB for $L/l^* = 1, 2, 3, 4, 5$ and 10 . It is striking that for small values of L/l^* the correlation function displays very net oscillations (Fig. 1) which do not exist in a homogeneous slab (no scatterings) where $G^{(2)}_{xx} = 1$. Still more striking are the amplitudes of these oscillations, which are no more damped for larger VB (see curves for $L/l^* = 3$ and 4).

For thinner slabs, because of anisotropy, the scattering paths are almost straight lines. This is relevant of the Faraday effect in a chain, where the photon executes a one dimensional random walk. In this model, the polarization states rotate in the same sense between the successive scatterings, which can be either forwards or backwards, leading to an accumulation of the rotation angle proportional to the total length of the path. This simple idea gives for an incident linear polarization $G^{(2)}_{xx}(B) = \langle\cos(VBs)\rangle^2 / \langle\cos^2(VBs)\rangle$ where the average is performed over the path length distribution $P(s)$. In transmission, $P(s)$ is characterized by a dispersion, which can be pictured as a window along the s axis. Hence, for narrow distributions corresponding to thin slabs, oscillations arise from the average values of $\cos(VBs)$ and $\cos^2(VBs)$ inside this window. The oscillations attenuation occurs for strong magnetic field and for thicker slabs. Actually the curves in figure 1 can be understood in a simplified theory of Rayleigh scattering in three dimensions.

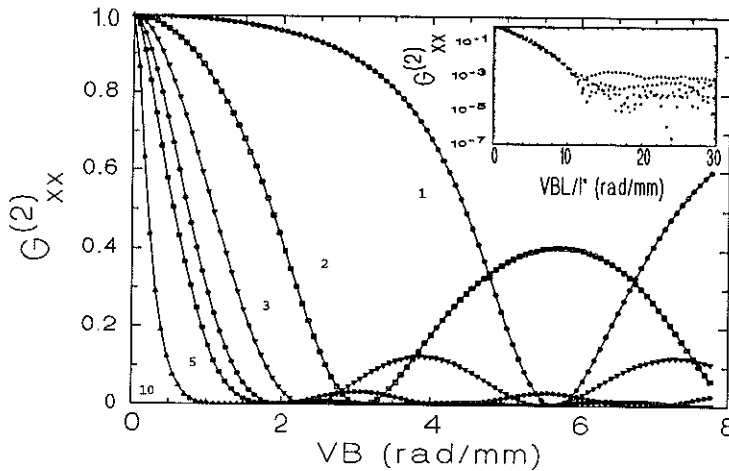


Figure 1. Intensity correlation (Eq. 1) as function of VB for a slab of thickness $L/l^* = 1, 2, 3, 4, 5$ and 10 . Inset: Intensity correlation (in log scale), for $L/l^* = 7, 8, 9, 10$ and 11 , as a function of VBL/l^* , i.e. ξ since l^* is a constant. The lines are only a guide to the eyes.

In conclusion, we have developed a Monte Carlo simulation in order to obtain the intensity correlation function in the multiple scattering regime in a magneto-optically active medium. For the diffusion regime, the results predicted by the simple stochastic theory are qualitatively verified. In the intermediate regime, the correlation function can be described by the one-dimensional random walk model, which explains the origin of the unexpected oscillations of the correlation function.

We thank F. Erbacher, R. Lenke and G. Maret for very stimulating discussions. One of us (A.S.M.) also wish to thank CAPES for financial support.

REFERENCES

1. Y. Kuga and A. Ishimaru, J. Opt. Soc. Am. **A8**, 831 (1984).
M.P. van Albada and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. **55**, 2692 (1985).
P.E. Wolf and G. Maret, Phys. Rev. Lett. **55**, 2696 (1985).
E. Akkermans, P.E. Wolf and R. Maynard, Phys. Rev. Lett. **56**, 1471 (1986).
2. "Mesoscopic Phenomena in Solids," ed. B.L. Altshuler, P.A. Lee and R.A. Webb, North Holland, Amsterdam, (1991).
3. "Classical Wave Localization," ed. P. Sheng, World Scientific, Singapore, (1990).
4. P.J. Flory, "Statistical Mechanics of Chain Molecules," John Wiley & Sons, New York, (1969).

5. H.C. van de Hulst, *"Light Scattering by Small Particles,"* Dover Publications, New York (1981).
6. A.A. Golubenstein, JETP **59**, 26 (1984).
7. F.C. MacKintosh and S. John, Phys. Rev. **B37**, 1884 (1988).
8. F. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, Europhys. Lett. **21**, 551 (1993).
9. F. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, in: *"Localization and Propagation of Waves in Random and Periodic Structures,"* ed. C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Corporation (to appear).
10. R. Lenke and G. Maret, *"Affecting Weak Light Localization by Strong Magnetic Fields,"* pre-print.
11. F.C. MacKintosh, J.X. Zhu, D.J. Pine and D.A. Weitz, Phys. Rev. **B40**, 9342 (1989).
12. A.S. Martinez and R. Maynard, in: *"Localization and Propagation of Waves in Random and Periodic Structures,"* ed. C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Corporation (to appear).

FARADAY EFFECT AND MULTIPLE SCATTERING OF LIGHT

A.S. Martinez and R. Maynard

Laboratoire d'Expérimentation Numérique and
Centre de Recherche sur les Très Basses Températures
Maison des Magistères CNRS
BP 166
38042 Grenoble Cedex 9 France

ABSTRACT

The presence of a magnetic field in an optically active medium produces a rotation of the polarization of light: it is the well known Faraday effect. This rotation depends on the intensity of the magnetic field projected along the wavevector and it breaks the time-reversal symmetry. In the multiple scattering of light, the Faraday effect turns the polarization states between successive scatterings. In a reflection geometry, the interference of the waves between the direct and reverse paths leads to an enhancement of the intensity, the backscattering cone. The Faraday effect affects the direct and the reverse paths differently and it may produce an attenuation of the peak of the backscattering cone. To understand how the wave interferences can be changed by the magnetic field we have studied this problem at several levels. At the basic level, we have considered the very general situation of vectorial fields scattered by spherical particles. Since the scatterers are finite size spheres, the Mie scattering is considered. The multiple scattering is then represented by an effective Jones matrix which corresponds mathematically to a 2×2 matrix product. We have shown that the effective Jones matrix of the reversed paths can be obtained from the direct one by a simple matricial operation. In systems of reduced dimensionality (1 and 2), we have shown that for the same polarization channel, the peak of the backscattering cone is not affected by the Faraday effect even though the time-reversal symmetry is broken. At a second level, we have considered the ensemble averaged intensities. We have then been able to find the known result that the opposite helicity channel (circular basis) is not affected by the magnetic field. The third level consists in studying analytical trackable models. For the one-dimensional situation we have obtained the intensity correlation function. This simple model furnishes two interesting results: *i*) even though the wavevector is randomized by the random walk process of the multiple scattering, there is no decorrelation of the polarization for paths of the same length and *ii*) the correlation function has an oscillatory behavior as a function of the magnetic field. This full correlation cannot be explained by a simple stochastic model and the partial correlation only appears because of the dispersion of the paths length distribution in the slab geometry. In three dimensions, we have calculated analytically the attenuation of the backscattering cone as well as the decorrelation length for the multiple Rayleigh scattering. At the last level, we have considered more realistic situations, where the boundary effects and the general anisotropic Mie scattering are taken into account. For this we have used a Monte Carlo simulation of the multiple scattering sequences. In the diffusion regime (thick slabs) our results are in accord with previous results and with experiments, nevertheless for the intermediate regime in transmission, we have found very net oscillations of the intensity correlation as a function of the magnetic field. These oscillations are accounted as an one-dimensional reminiscence of the anisotropic scatterings even though they appear explicitly in the 3D Rayleigh calculation. For reflection and strong magnetic field, we have observed a convergence of the enhancement factor to non-trivial asymptotic values, these asymptotic values depend on the scatterer size and are explained as a contribution of short paths which is not taken into account by a diffusion regime analysis. The results of this theory and numerical simulation are compared to the recent experiments of Lenke and Maret.

INTRODUCTION

The multiple scattering of waves is a phenomenon which appears in very distinct physical systems¹ such as the propagation of sound waves or light through a suspension of scattering particles, emulsions, clouds, but it also appears in the propagation of electron wavefunctions in impure metals or semiconductors.² Several recent progresses have been made in the description of the multiple scattering of waves, as for example, the existence of the reverse scattering sequence accompanying the direct one in the reflection geometry.³ The presence of these two sequences, which interfere one with the other, leads to the backscattering cone which is an enhancement of the intensity of light by a factor 2 in the backscattering direction. Also the long-range frequency or angular correlations of the speckle patterns in confined scattering systems have been predicted and discovered.⁴⁻⁶

The multiple scattering of waves can be analyzed at several levels. The simplest one is to consider the approximation of *scalar* waves which are elastically scattered by *point-like* inhomogeneities. Although these approximations can take into account the weak localization phenomenon (the backscattering cone, for example), the assumption of scalar wave and point-like scatterers is not realistic for light. Most experiments are indeed performed with polarized light (vectorial nature of the electromagnetic field) which are scattered by *finite-size* spheres. A deeper level of analysis is then necessary. Actually, the study of polarized light scattered by spherical particles is possible. The scattering amplitudes are given by the Mie expression, they are rather complex mathematical functions which express this anisotropic scattering.⁷ Nevertheless, a pure analytical treatment of the multiple Mie scattering cannot be carried very far, numerical simulations (of the Monte Carlo type for instance) furnish an efficient way to tackle this difficult problem.⁸

Although the strong localization of light has not been observed (by any means) in three dimensions, the destruction of the wave interference phenomenon by the application of a magnetic field in the context of the weak localization has already been proposed and very recently measured.⁹⁻¹¹ Hence, the magnetic field in gyromagnetic media leads to the Faraday effect. The understanding of this essentially vectorial phenomenon may constitute an important step in the comprehension of the multiple scattering of light.

Let us briefly recall that the Faraday effect comes from the tensorial nature of the magnetic permeability of the gyromagnetic medium.¹² As a consequence, the effective refractive index will differ for the right- and left-handed circular polarization states. This difference provides a dephasing between these two polarization states. For a length s , this phase shift is given by $\pm V B \cdot \hat{k} s$ where V is the Verdet constant, B the magnetic field and $\hat{k}$ the direction of the wavevector. This phase shift can be alternatively described by a rotation of the polarization of a linearly polarized beam. The Faraday rotation introduces new

ingredients in the context of the multiple scattering of light which refer to the complex, but rich, polarization problem. Moreover, an important feature of the Faraday effect is the failure of the reciprocity theorem due to the non-symmetric permeability tensor of a gyromagnetic medium. The non-symmetrical situation, under the permutation of source and detector, can be exploited in order to break the symmetry between direct and reverse sequence of the multiple scattering. This broken symmetry, of the type "time-reversal", affects the intensity of the peak of the backscattering cone in the same polarization channel as the incident one. Actually, this is the only physical effect which affects the intensity of the backscattering peak since absorption, or still reduced geometry, lead to a rounding of this peak rather than an attenuation.

This paper is organized in the following way. In section I, general results of the Faraday effect in the multiple scattering are discussed. The purpose of this discussion is to define carefully the nature of the symmetry breaking between the direct and the reverse multiple scattering sequences under a magnetic field. The general expression of the scattering amplitudes for the multiple scattering is given by 2×2 non-diagonal matrices, defined in local basis, which are related to the direction of the wavevectors. The failure of the reciprocal theorem is obtained for the reverse field as a simple antitransposition in the linear polarization basis (or transposition in the circular basis) of the direct field in the opposite magnetic field ($-B$). A comparison of the time-reversal breaking and the attenuation of the backscattering cone is presented. This comparison shows that the type of symmetry breaking is more complex than the simple quoted "time-reversal" breaking. For instance, in an optically two-dimensional medium the backscattering cone is preserved under a magnetic field while the time-symmetry is broken. At the level of the averaged intensities, the homogeneity of the *averaged* disordered scattering medium leads to the invariance of the opposite helicity channel as proposed previously by MacKintosh and John.¹⁰ In section II, the problem of the one-dimensional multiple scattering is treated by considering Mie scatterers along a chain. Due to the simplicity of the model, an exact solution can be obtained which shows that a strong correlation subsists on the length of the multiple scattering paths. Actually for a given length, a complete correlation subsists despite the random walk nature of the multiple scattering paths. The attenuation originates only from the dispersion of the path lengths. In section III, we consider this problem in three dimensions. We start by recalling the previous theory which assumes that the helicity states of polarization are random variables independent of the direction of the wavevector. These helicity states jumps randomly from one state (say, $+1$) to the other (-1). The origin of this stochasticity is introduced on the purpose to provide a global damping of correlation functions in a quite phenomenological way. Since the polarization states are not random variables, but follow the random changes of the wavevector through the scattering amplitudes matrix, we have considered a better physically founded model. This model is based on the Rayleigh scattering described by a dipolar 3×3 matrix. By

using recursion relations, it is possible to obtain the solutions for Stokes intensities as well as the different correlation functions in transmission and reflection as a function of the magnetic field. Although the boundary conditions are poorly treated, all the qualitative features of this phenomenon are suitably accounted in this model. For reflection, we find an exponential damping varying as $n(B\ell)^2$ (n is the number of scatterings and ℓ the mean free path) and asymptotic finite values for large values of B . For transmission, we find that the correlation function decays exponentially as $n(B\ell)^2$ which is an envelope for the oscillations. These oscillations show a strong correlation regime similar to the one-dimensional model. In section IV, we consider the anisotropic multiple Mie scattering by a Monte Carlo algorithm. The comparison with the experiments are made. For the transmission geometry we have observed numerically oscillations of the correlation function.¹³ These oscillations can be qualitatively explained by the one-dimensional and three-dimensional Rayleigh models considered.

I. GENERAL RESULTS ON THE FARADAY EFFECT IN MULTIPLE SCATTERING

We consider a photon which wanders in a slab of thickness L along the z -axis with infinite planes parallel to the $(x-y)$ plane. This slab contains randomly distributed spheres and a magnetic field B is applied along the z -direction. A photon is injected along the z -axis and then multiply scattered by the spheres with mean free path ℓ . The detection of the emergent beam after the multiple scattering is also along the z -axis, either in transmission or in reflection.

The magnetic field in an optically active material produces different refractive indexes for right- and left-handed circular polarization. Hence right- and left-handed circular polarizations propagate with different velocities. Since linear polarization is the combination of these two circular states, the effect of a magnetic field can be described alternatively by a rotation of the linear polarization (Faraday rotation) by an angle $\alpha = V B \cdot \hat{k} r$ where V is Verdet constant, B the magnetic field, $\hat{k}$ the unitary wavevector and r the distance.¹² The helicity states are conjugated by the time-reversal symmetry and their different behavior under magnetic field corresponds to a time-reversal symmetry breaking.

In the limit of weak disorder, we can assume independent multiple scattering sequences and for each sequence we can assume that the scatterings happen in the far-field limit, so that the longitudinal component of the electric field is ignored. In this case the electric field after n scatterings is given in the "scattering plane" representation by:

$$\begin{bmatrix} E_{nx} \\ E_{ny} \end{bmatrix} = R(\alpha_n) \prod_{\kappa=1}^n \frac{\exp(-jkr_{\kappa})}{kr_{\kappa}} J(\cos\theta_{\kappa}) R(\alpha_{\kappa-1} - \phi_{\kappa}) \begin{bmatrix} E_{ox} \\ E_{oy} \end{bmatrix}, \quad (I.1.a)$$

where the order of the product is important. It starts with the first term in the right-hand side. Here $j = \sqrt{-1}$,

$$R(\alpha) = \begin{bmatrix} \cos\alpha & -\sin\alpha \\ \sin\alpha & \cos\alpha \end{bmatrix} \quad (I.1.b)$$

and

$$J(\cos\theta) = \begin{bmatrix} S_{//}(\cos\theta) & 0 \\ 0 & S_{\perp}(\cos\theta) \end{bmatrix}, \quad (I.1.c)$$

where two consecutive wavevectors $\hat{k}_{\kappa-1}$ and $\hat{k}_{\kappa}$ define the κ -th scattering plane. The scattering angles $\cos\theta_{\kappa} = \hat{k}_{\kappa-1} \cdot \hat{k}_{\kappa}$ can take continuous values in the interval $[0, \pi]$. The azimuthal angles ϕ_{κ} take continuous values in the interval $[0, 2\pi]$ and project the electric field in the perpendicular and parallel direction of the κ -th scattering plane. These components are then scattered with amplitudes $S_{\perp}(\cos\theta)$ and $S_{//}(\cos\theta)$, respectively, given by the Mie theory of scattering.¹⁴ Notice that the last scattering angles θ_n and ϕ_n are not random since the detection is perpendicular to the slab. The matrix J is diagonal because of the spherical symmetry of the scatterers but it does not commute with the rotation matrix, so that we cannot simply compose the rotations. Furthermore, the intermediate electric fields are given in their local basis, the basis $(\hat{\theta}_{\kappa}, \hat{\phi}_{\kappa}, \hat{k}_{\kappa})$.

The "scattering plane" frame representation of the multiple scattering is the simplest basis to write the Jones matrix. But in the multiple scattering regime, this simplification is only apparent since after each scattering we must keep track of the transformation of the local frame to the laboratory one (x, y, z) in order to impose that the photon quits the slab with a wavevector normal to the slab plane. It is better suited for the present problem to use the Chandrasekhar-Sekera representation.¹⁵⁻¹⁶ Although algebraically more complicated, the wavevectors $\hat{k}_{\kappa}$ are always given in the laboratory basis by the spherical angles Θ_{κ} and Φ_{κ} and the fields are given in the direction $(\hat{\Theta}_{\kappa}, \hat{\Phi}_{\kappa})$.

1. Single Scattering

Let us first consider $B = 0$ and a single scattering from the incident wavevector $\hat{k}_0$ to $\hat{k}_I$. The scattered field E_I is obtained from the incident one E_0 through the Jones matrix:

$$J(\hat{k}_I, \hat{k}_0) = \begin{bmatrix} j_{11} & j_{12} \\ j_{21} & j_{22} \end{bmatrix}. \quad (I.2.a)$$

Its elements can be obtained from the Eq. (I.1) in the Chandrasekhar-Sekera representation:¹⁶

$$\begin{aligned} j_{11} &= (l, l) X_1 + (r, r) X_2, & j_{12} &= -(r, l) X_1 + (l, r) X_2 \\ j_{21} &= -(l, r) X_1 + (r, l) X_2, & j_{22} &= (r, r) X_1 + (l, l) X_2, \end{aligned} \quad (I.2.b)$$

with

$$\begin{aligned} (l, l) &= \sqrt{(1 - \mu_0^2)(1 - \mu_1^2)} + \mu_0 \mu_1 \cos(\Delta\Phi), & (l, r) &= -\mu_0 \sin(\Delta\Phi), \\ (r, l) &= \mu_1 \sin(\Delta\Phi), & (r, r) &= \cos(\Delta\Phi), \end{aligned} \quad (I.2.c)$$

$$X_1 = -j \frac{S_{\perp}(\cos\theta) - \cos\theta S_{\parallel}(\cos\theta)}{\sin^2\theta}, \quad X_2 = -j \frac{S_{\parallel}(\cos\theta) - \cos\theta S_{\perp}(\cos\theta)}{\sin^2\theta}, \quad (I.2.d)$$

and

$$\cos\theta = \sqrt{(1 - \mu_0^2)(1 - \mu_1^2)} \cos(\Delta\Phi) + \mu_0 \mu_1, \quad (I.2.e)$$

and with $\mu_I = \cos\Theta_I$, $\mu_0 = \cos\Theta_0$ et $\Delta\Phi = \Phi_0 - \Phi_I$ where Θ_0 , Φ_0 and Θ_I , Φ_I are the polar angles of the incident wavevector $\hat{k}_0$ and the scattered wavevector $\hat{k}_I$ in the laboratory frame, respectively. The electric field is now given in the basis of the wavevectors, i.e., along the directions $\hat{\Theta}_I$ et $\hat{\Phi}_I$. The reversed scattering is obtained by changing $\hat{k}_I' = -\hat{k}_0$ and $\hat{k}_0' = -\hat{k}_I$, implying that, $\Theta_I' = \pi - \Theta_0$, $\Theta_0' = \pi - \Theta_I$, $\Phi_0' = \pi + \Phi_I$ and $\Phi_I' = \pi + \Phi_0$; consequently, $\mu_1' = -\mu_0$, $\mu_0' = -\mu_1$ and $\Delta\Phi' = -\Delta\Phi$ leading to $(l, r)' = -(r, l)$ and $(r, l)' = -(l, r)$ and finally $j_{12}' = -j_{21}$ and $j_{21}' = -j_{12}$.

Let us define the "anti-transposition" of a matrix A by the relation:

$$A^{(at)} = \text{Anti-Transposition} \left[\begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & a_{22} \end{bmatrix} \right] \equiv \begin{bmatrix} a_{11} & -a_{21} \\ -a_{12} & a_{22} \end{bmatrix}. \quad (I.3.a)$$

This operation has the following property:

$$(AB)^{(at)} = B^{(at)}A^{(at)} . \quad (I.3.b)$$

The Jones matrix of the reversed scattering is nothing else than the "anti-transposed" matrix of the Jones matrix of the direct scattering:

$$J(-\hat{k}_0, -\hat{k}_I) = J^{(at)}(\hat{k}_I, \hat{k}_0) = \begin{bmatrix} j_{11} & -j_{21} \\ -j_{12} & j_{22} \end{bmatrix} . \quad (I.4)$$

Let us now consider the situation where the medium is magneto-optically active while the scatterers are insensitive to the magnetic field. The magnetic field is applied along the incident direction. The Faraday effect rotates the polarization in the plane perpendicular to the wavevector Eq. (I.1.b). For the direct scattering we have $R(\alpha_I)J(\hat{k}_I, \hat{k}_0)R(\alpha_0)$. Let us consider two particular situations, the forward and the backward scattering. The Mie theory for the forward scattering ($\hat{k}_I = \hat{k}_0$) states that $S_{II}(I) = S_{\perp}(I) = S(I)$ so that $J(\hat{k}_0, \hat{k}_0) = S(I)I$ with $I = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$. For this situation, $R(\alpha_0)$ commutes with J which leads to an effective Jones matrix proportional to $R(\alpha_0 + \alpha_I)$, describing a rotation of $\alpha_0 + \alpha_I$. For the backward scattering ($\hat{k}_I = -\hat{k}_0$) the Mie theory states that $S(-I) = S_{II}(-I) = -S_{\perp}(-I)$ so that $J(-\hat{k}_0, \hat{k}_0) = S(-I)\sigma_z$, where $\sigma_z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}$ is the Pauli matrix. The effective Jones matrix is then proportional to $R(-\alpha_I)\sigma_z R(\alpha_0) = \sigma_z R(\alpha_0 + \alpha_I)$. We stress that we have written $-\alpha_I$ because now the wavevector is anti-parallel to the magnetic field and that the detection is not given in the laboratory frame but in the frame which is obtained by an improper rotation of the laboratory frame. The presence of σ_z is a signature of this improper rotation of the laboratory frame. Hence in the forward and in the backward scattering case, the Faraday rotation is always $\alpha_0 + \alpha_I$.

For a more general case, where $\hat{k}_0$ and $\hat{k}_I$ are not aligned, the reversed scattering is described by an effective Jones matrix: $R(-\alpha_0)J(-\hat{k}_0, -\hat{k}_I)R(-\alpha_I) = R^{(t)}(\alpha_0)J^{(at)}(\hat{k}_I, \hat{k}_0)R^{(t)}(\alpha_I) = [R(\alpha_I)J^{(a)}(\hat{k}_I, \hat{k}_0)R(\alpha_0)]^{(t)}$, where (t) means a transposition and (a) means to take the opposite sign of the non-diagonal elements. In general, in presence of magnetic field there is no simple relation between the scattered field of the direct and reversed scatterings unless for forward-backward scatterings or when ϕ_0 and $\phi_I = 0$ or π which leads to a pure diagonal Jones matrix since $\Delta\Phi = 0$ or π consequently the off-diagonal (r, l) and (l, r) coefficients vanish in Eq (I.2.b).

We can summarize the results for a single scattering in two statements:

- i) if there is *no* magnetic field, the Jones matrix of the reversed scattering is obtained simply by *anti-transposing* the effective Jones matrix of the direct scattering.
- ii) if there is a magnetic field and a diagonal Jones matrix, the Jones matrix of the reversed scattering is obtained simply by *transposing* the effective Jones matrix of the direct scattering.

These two results will be generalized to the multiple scattering sequences in the next item.

2. Multiple Scattering

Consider now a scattering sequence characterized by the wavevectors $\{\hat{k}_0 \rightarrow \hat{k}_1 \rightarrow \hat{k}_2 \rightarrow \dots \rightarrow \hat{k}_n \rightarrow \hat{k}_{n+1} = \pm \hat{k}_0\}$, where the sign $\pm$ corresponds respectively to the transmission or reflection through a slab of length L where the magnetic field is aligned along the z -axis. The emerging electric field in *transmission* is obtained by the application of product:

$$TRANS = R(\alpha_n) J(\hat{k}_0, \hat{k}_{n-1}) \dots R(\alpha_2) J(\hat{k}_2, \hat{k}_1) R(\alpha_1) J(\hat{k}_1, \hat{k}_0) R(\alpha_0) . \quad (1.5)$$

to the incident field.

In reflection, two complications arise: first, the reference frame is not the laboratory frame but the frame obtained by an improper rotation of it. The contribution of the "direct" sequence is:

$$DIRECT = R(\alpha_n) J(-\hat{k}_0, \hat{k}_{n-1}) \dots R(\alpha_2) J(\hat{k}_2, \hat{k}_1) R(\alpha_1) J(\hat{k}_1, \hat{k}_0) R(\alpha_0) . \quad (1.6.a)$$

The second feature is the existence of the "reverse" sequence of scatterings $\{\hat{k}_0 \rightarrow -\hat{k}_{n-1} \rightarrow -\hat{k}_{n-2} \rightarrow \dots \rightarrow -\hat{k}_1 \rightarrow -\hat{k}_0\}$ which subsists with the same weight as the direct one when the ensemble average is performed. This analysis comes from the partition of the contribution to the intensity in terms of the ladder (direct sequence) and crossed diagrams (reverse sequences) in the Bethe-Salpeter equation.¹⁷ The emerging field of the reverse sequence is:

$$REV = R(-\alpha_0) J(-\hat{k}_0, -\hat{k}_1) \dots R(-\alpha_{n-2}) J(-\hat{k}_{n-2}, -\hat{k}_{n-1}) R(-\alpha_{n-1}) J(-\hat{k}_{n-1}, -\hat{k}_n) R(-\alpha_n) . \quad (I.6.b)$$

Using the property Eq. (I.3.b) which leads to: $(A_1 A_2 \dots A_n)^{(at)} = A_n^{(at)} \dots A_2^{(at)} A_1^{(at)}$ one can write:

$$REV = [R(-\alpha_n) J(-\hat{k}_0, \hat{k}_{n-1}) \dots R(-\alpha_2) J(\hat{k}_2, \hat{k}_1) R(-\alpha_1) J(\hat{k}_1, \hat{k}_0) R(-\alpha_0)]^{(at)} , \quad (I.6.c)$$

since $R(\alpha) = R^{(at)}(\alpha)$ where (at) means the anti-transposition. This expression can be written as:

$$REV(B) = [DIRECT(-B)]^{(at)} . \quad (I.6.d)$$

The previous expression shows clearly the effect of the magnetic field when compared to the direct sequence: the rotation angles are the opposite while the matrix product has to be anti-transposed. This leads to $REV \neq DIRECT$. It is the effect of the time-reversal symmetry breaking. Indeed in absence of magnetic field ($\alpha_K = 0$), the effective Jones matrix of the reverse sequence is simply given by the anti-transposition of the effective Jones matrix of the direct sequence:

$$\text{3 dimensions} \quad REV = (DIRECT)^{(at)} \quad \text{for } B = 0 . \quad (I.7)$$

Since $REF = DIRECT + REV$, the diagonal elements are not altered, and we find again the enhancement factor 2 for the same channel of the incident polarization in the backscattering direction.

Consider the situation where the electric field is propagating in three dimensions but the scatterers are located in a lower dimensional space (along the z-axis in one dimension or on the (x-z) plane in two dimensions). In one dimension, only forward and backward scatterings may occur so that the Jones matrices are diagonal. On the other hand, in two dimensions the angles ϕ_K can take only two values: either 0 or π , while the scattering angles θ_K are still within the interval $[0, \pi]$. As we have seen for a single scattering, this configuration leads to diagonal Jones matrices. In one and two dimensions, because the Jones matrices are diagonal one can write $J(-\hat{k}_{K-1}, -\hat{k}_K) = J(\hat{k}_K, \hat{k}_{K-1})$ and using that $R^{(i)}(-\alpha) = R(\alpha)$ one obtains:

$$1 \text{ dimension} \quad REV = DIRECT \quad \text{for } B \neq 0, \quad (1.8.a)$$

and

$$2 \text{ dimensions} \quad REV = (DIRECT)^{(t)} \quad \text{for } B \neq 0. \quad (1.8.b)$$

This relation is unexpected: it implies that the diagonal elements of these complex matrices are equal which leads to the enhancement factor 2 in the channel of the same polarization in the backscattering cone *even in presence of magnetic field*.

We point out that in the scalar approximation of the reverse sequence only the phases are important, and the reverse sequence is obtained by changing both the order and $\hat{k}_K \rightarrow -\hat{k}_K$. In this case the reverse sequence is equivalent to the time-reversed one. For vectorial waves the time-reversed sequence is different from the reversed sequence. The breaking of the time-reversal symmetry calls for some comments. Two experimental situations must be distinguished: i) *the backscattering configuration*, where the initial polarization state of the direct and reverse sequence is the same and ii) *the reciprocal configuration*, where the initial polarization state of the reverse sequence is the outgoing polarization of the direct sequence (this can be achieved by mirroring the end of the direct sequence, as the ultra-sound experiment of time reversal mirror¹⁸). The Faraday effect *does* break the time-reversal symmetry but it *does not necessarily* round off the coherent backscattering cone as we will show for one and two dimensions in the next section.

We stress that the above results are not dependent on the size of the spheres, they are worth for the general Mie scattering. The statement i) can be generalized to the multiple scattering case and it is written as:

iii) if there is *no* magnetic field, the effective Jones matrix of the reverse scattering sequence is obtained simply by *anti-transposing* the effective Jones matrix of the direct scattering sequence.

This statement means that the multiply scattered intensity in the same polarization channel (VV) is multiplied by 2 and that the intensity enhancement is smaller in the opposite polarization channel (VH), as it will become clear in the next section. These are the well known patterns of the backscattering cone.

Motivated by the recent experiment of Erbacher, Lenke and Maret,^{11,19} we are interested in the enhancement factor of the backscattering cone for the reflection experiment and for the transmission one, in the intensity correlation function.

3. Enhancement Factor

The enhancement factor is defined as:

$$\Xi_{out,in}(B) = \frac{I_{out}(B)}{I_{out}^{(d)}(B)}, \quad (I.9.a)$$

where $I_{out}(B) = \langle \frac{1}{\sqrt{2}} [E_{out}^{(d)}(B) + E_{out}^{(r)}(B)]^2 \rangle_e$ is the total intensity in reflection in the channel *out* with $I_{out}^{(d)}(B) = \langle |E_{out}^{(d)}(B)|^2 \rangle_e$ and $I_{out}^{(r)}(B) = \langle |E_{out}^{(r)}(B)|^2 \rangle_e$ being the intensity of the direct and reversed sequence respectively, intensity on this channel for an incidence in the channel *in*. Since $I_{out}^{(d)}(B) = I_{out}^{(r)}(B)$, we can write:

$$\Xi_{out,in}(B) = 1 + \frac{Re[\langle E_{out}^{(d)}(B) E_{out}^{(r)}(B)^* \rangle_e]}{I_{out}^{(d)}(B)}. \quad (I.9.b)$$

Let us consider incident light polarized linearly along the *x* direction ($E_{ox} = E_o$ and $E_{oy} = 0$) and the detection is performed in the polarization channel ($in = out = x$). This is a typical VV configuration. Hence $\Xi_{x,x}(B)$ varies between 2 and 1: for instance consider the situation without magnetic field ($B = 0$), using the statement *iii*) the diagonal elements of the direct and reversed sequence are the same and consequently $E_x^{(d)}(0) = E_x^{(r)}(0)$ which gives $\Xi_{x,x}(0) = 2$. Still with $B = 0$ let us consider the detection on the *y* channel, a VH configuration. The elements of the effective Jones matrix connecting $E_y^{(d)}(0)$ and $E_y^{(r)}(0)$ to $E_{o,x}$ are $j^{(n)}_{12}$ and $-j^{(n)}_{21}$, respectively (by virtue of the statement *iii*). In this case $E_y^{(d)}(0) \neq E_y^{(r)}(0)$ and $\Xi_{x,x}(0) < 2$. For $E^{(d)}$ and $E^{(r)}$ completely incoherent we have: $\Xi = 1$.

For one dimension, the reverse sequence has the same effective Jones matrix as the direct one (Eq. I.8.a). The waves emerging from these sequences have the same polarization states in the presence or not of the magnetic field. The enhancement backscattering factor is always 2. Obviously the time-reversal symmetry is broken. For two dimensions, the reverse sequence has an effective Jones matrix which is the transposed one with magnetic field (Eq. I.8.b). Hence the factor 2 does subsist under a magnetic field only for the diagonal elements. Notice that the two-dimensional system in the presence of a magnetic field has the same characteristics as the three-dimensional system without magnetic field. We stress that the reverse sequence of the latter is not strictly the time-reversed sequence because these sequences have different polarization states as input. In these two situations and for the same polarization channel, the transposition or anti-transposition operation does not modify the diagonal elements of the effective Jones matrix of the direct sequence which gives rise to the

factor 2. On the other hand, for the opposite channel, the factor 2 can be lowered down since in both cases the off-diagonal elements of the transposed or anti-transposed effective Jones matrix are not the same. In three dimensions, in the presence of a magnetic field one finds that the enhanced backscattering can be affected in the same polarization channel. Our results are summarized in Table 1.

Table 1. On the time-reversal symmetry and the enhancement factor of the backscattering configuration.

		Enhancement Factor 2		Time-Reversal Symmetry Breaking
Dimensionality	Faraday Effect due to a Magnetic Field	Same Linear Polarization Channel (xx)	Opposite Linear Polarization Channel (yx)	
1	Off	Yes	Yes	No
	On	Yes	Yes	Yes
2	Off	Yes	Yes	No
	On	Yes	No	Yes
3	Off	Yes	No	No
	On	No	No	Yes

For one and two dimensions, in the presence of a magnetic field, in the same polarization channel, these backscattering peaks will not be attenuated since in these situations the Jones matrices are diagonal. In three dimensions, the phase coherence that gives rise to the backscattering cone is partially destroyed by the action of the magnetic field as it was firstly noticed by Golubentsev⁹ and MacKintosh and John.¹⁰

4. The Invariance of the Opposite Helicity Channel

So far, the general consideration of symmetry properties has not made reference to the ensemble average of the multiple scattered light. Let us now consider the same problem of the polarization transformation in the circular basis or left-right helicity basis: $E_{\pm} = E_x \pm j E_y$. In this basis the Jones matrix $J(\hat{k}_I, \hat{k}_O)$ can be written as: $\begin{bmatrix} E_{n,+} \\ E_{n,-} \end{bmatrix} = K(\hat{k}_I, \hat{k}_O) \begin{bmatrix} E_{n-I,+} \\ E_{n-I,-} \end{bmatrix}$ where

$$K(\hat{k}_I, \hat{k}_O) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} j_{11} + j_{22} - j(j_{12} - j_{21}) & j_{11} - j_{22} + j(j_{12} + j_{21}) \\ j_{11} - j_{22} - j(j_{12} + j_{21}) & j_{11} + j_{22} + j(j_{12} - j_{21}) \end{bmatrix}, \quad (1.10)$$

where the j_{ij} are the matrix elements of the Jones matrix given by expressions (I.2). From the symmetry properties given previously in Eq. (I.4), it can be shown that: $K(-\hat{k}_0, -\hat{k}_1) = K^{(t)}(\hat{k}_1, \hat{k}_0)$ ((t) stands for the transposition operation). On the other hand the advantage of the circular basis is that the Faraday rotation matrix is diagonal: $\mathcal{R}(\alpha) = \begin{bmatrix} e^{j\alpha} & 0 \\ 0 & e^{-j\alpha} \end{bmatrix}$. Consider a direct sequence of n scatterings in this basis, in the presence of a magnetic field:

$$DIRECT(B) = \mathcal{R}(\alpha_n) K(\hat{k}_n, \hat{k}_{n-1}) \dots \mathcal{R}(\alpha_1) K(\hat{k}_1, \hat{k}_0) \mathcal{R}(\alpha_0) . \quad (I.11.a)$$

By definition, the reverse sequence of scatterings is given by:

$$REV(B) = \mathcal{R}(\alpha_0) K(-\hat{k}_0, -\hat{k}_1) \dots \mathcal{R}(-\alpha_1) K(-\hat{k}_{n-1}, -\hat{k}_n) \mathcal{R}(\alpha_n) , \quad (I.11.b)$$

or more simply:

$$REV(B) = [DIRECT(-B)]^{(t)} . \quad (I.11.c)$$

For the evaluation of the enhancement factor defined in (I.9.b) we must consider the interference term:

$$\begin{aligned} \langle \sigma_n | REV(B) | \sigma_0 \rangle \langle \sigma_n | DIR^*(B) | \sigma_0 \rangle &= \langle \sigma_n | [DIR(-B)]^{(t)} | \sigma_0 \rangle \langle \sigma_n | DIR^*(B) | \sigma_0 \rangle = \\ &= \langle \sigma_0 | DIR(-B) | \sigma_n \rangle \langle \sigma_n | DIR^*(B) | \sigma_0 \rangle , \end{aligned} \quad (I.12)$$

where $|\sigma_0\rangle$ and $|\sigma_n\rangle$ stand for the circular polarization eigenvectors for incident and emergent polarization. A selection rule can be established by considering the spectral representation of the matrix products:

$$\begin{aligned} \langle \sigma_n | DIR(B) | \sigma_0 \rangle &= \\ &= \sum_{\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_{n-1} = \pm I} \langle \sigma_n | K(n, n-1) | \sigma_{n-1} \rangle \dots \langle \sigma_1 | K(1, 0) | \sigma_0 \rangle \exp(j \sum_{i=0}^n \alpha_i \sigma_i) , \end{aligned} \quad (I.13)$$

where the Faraday phase changes $\alpha_i \sigma_i$ are explicit. Now the interference term can be written as:

$$\begin{aligned}
\langle \sigma_n | REV | \sigma_o \rangle \langle \sigma_n | DIR^* | \sigma_o \rangle &= \\
&= \sum_{\sigma_1, \dots, \sigma_n = \pm 1} \sum_{\sigma'_1, \dots, \sigma'_n = \pm 1} \langle \sigma'_o | K(n, n-1) | \sigma'_{n-1} \rangle \langle \sigma_n | K^*(n, n-1) | \sigma_{n-1} \rangle \dots \\
&\dots \langle \sigma'_1 | K(1, 0) | \sigma'_n \rangle \langle \sigma_1 | K^*(1, 0) | \sigma_o \rangle \exp[-j \sum_{i=0}^n \alpha_i (\sigma'_i + \sigma_i)] \quad (I.14)
\end{aligned}$$

The selection rule originates from the double matrix element products. The angular average makes the non-identical matrix elements to vanish:

$$\begin{aligned}
\langle \sigma'_1 | K(1, 0) | \sigma_n \rangle \langle \sigma_1 | K^*(1, 0) | \sigma_{n-1} \rangle &\approx \\
&\approx \delta(\sigma_o - \sigma_n) \delta(\sigma'_1 - \sigma_1) + \delta(\sigma_o + \sigma_n) \delta(\sigma'_1 + \sigma_1) \quad (I.15)
\end{aligned}$$

which leads to the helicity preserving channel $\delta(\sigma'_i - \sigma_i)$ and the opposite helicity channel $\delta(\sigma'_i + \sigma_i)$. From this selection rule one readily finds that in the helicity preserving channel, for instance $++$, the phase variation is: $\exp[-j \sum_{i=0}^n 2 \alpha_i \sigma_i]$ which leads to a damping of the enhancement factor as a function of B after averaging. For the opposite channel $+-$, the Faraday rotations disappear by the rule: $\delta(\sigma' + \sigma)$. This damping in the same polarization channel and the conservation in the opposite one were first proposed by MacKintosh and John.¹⁰

It must be noticed that the ensemble average over the directions of the wavevectors $\hat{k}$ couples the orbital factors $K(n, n-1)$ with the Faraday rotations α_{n-1} and α_n . The decoupling assumption of the stochastic model, which will be discussed in section III, is not justified since α_n and $K(n, n-1)$ are related as shown by the spectral representation (I.13) of the fields.

5. Rotatory Power

In optically active media such as sugar for instance, the two helicity states have different refractive indices: the rotation of the linear polarization state, in contrast to the Faraday rotation, is independent of the direction of propagation of the wave. In our notation, this is expressed by taking a rotation matrix $R(\alpha)$ independent of $\hat{k}$, therefore invariant in the reciprocal situation where $-\hat{k}$ is considered. It is then established in a straightforward way that the fields of the reversed sequences are given by the same relation as for $B = 0$. So that $REV(B) = [DIR(B)]^{(at)}$ in the linear basis or $REV(B) = [DIR(B)]^{(t)}$ in the circular basis.

In reflection, the backscattering cone is preserved in the same polarization channel (VV or + +), while for the opposite channels (VH or + -) the rotation power of these optically active media decreases the enhancement factor as noticed by MacKintosh and John.¹⁰ This effect is indeed less spectacular than the Faraday effect, since in the opposite channels the cone is already attenuated for $B = 0$.

6. Intensity Correlation Function

This correlation function is given by:

$$G_{xx}^{(2)}(B) = \frac{\langle i_x(0)i_x(B) \rangle_e}{\langle i_x(0) \rangle_e \langle i_x(B) \rangle_e} - 1, \quad (I.16)$$

where $i_x = |E_x|^2$ and $\langle \dots \rangle_e$ stands for the ensemble average. In the approximation of independent paths, the x -component of the electric field coming out of a sample μ is: $E_x^{(\mu)} = \sum_{v=1}^N E^{(\mu)}_{x,v} \sqrt{N}$, where $E^{(\mu)}_{x,v}$ is the field of the v -th sequence. The modulus $|E^{(\mu)}_{x,v}|$ is distributed according to the Rayleigh distribution and the phases $\phi^{(\mu)}_v$ are distributed uniformly in the interval $[0, 2\pi]$. Let us consider the ensemble average of the term:

$$\langle i_x(0)i_x(B) \rangle_e = \frac{1}{M} \sum_{\mu=1}^M \frac{1}{N^2} \sum_{v,v',\eta,\eta'=1}^N |E^{(\mu)}_{x,v}(0)| |E^{(\mu)}_{x,v'}(B)| |E^{(\mu)}_{x,\eta}(0)|^* * |E^{(\mu)}_{x,\eta'}(B)| \exp\{j[\phi^{(\mu)}_v(0) - \phi^{(\mu)}_{v'}(B) + \phi^{(\mu)}_{\eta}(0) - \phi^{(\mu)}_{\eta'}(B)]\}, \quad (I.17.a)$$

where $M, N \gg 1$. Because of the uniform distribution of the phases, we must consider the two situations where the summations do not vanish: *i*) $v = v'$ and $\lambda = \lambda'$ and *ii*) $v = \lambda'$ and $\lambda = v'$, so that:

$$\langle i_x(0)i_x(B) \rangle_e = \langle i_x(0) \rangle_e \langle i_x(B) \rangle_e + |\langle E_x(0)E_x^*(B) \rangle_e|^2. \quad (I.17.b)$$

where the average can now be interpreted as if we had one sequence per sample but NM samples. This interpretation of the ensemble average is a justification for a Monte Carlo simulation.⁸ Thus, the correlation function can be written as:

$$G_{xx}^{(2)}(B) = \frac{|\langle E_x(0)E_x^*(B) \rangle_e|^2}{\langle i_x(0) \rangle_e \langle i_x(B) \rangle_e}. \quad (I.17.c)$$

II. ONE DIMENSIONAL ANISOTROPIC MULTIPLE MIE SCATTERING

We consider a photon scattered in a chain aligned in the z -direction along which a magnetic field B is applied. This system can be seen as a fiber or multiple layered medium with incident light perpendicular to the planes (scatterers). This scatterers are randomly distributed and their positions obey an exponential distribution characterized by a mean free path l . The electric field after n scatterings is given by Eqs. (I.1) with $\phi_k = 0$ and θ_k is still a random variable but it can have only two values, either 0 in the forward scattering or π in the backward one. The Mie theory gives for the forward scattering: $S_{//}(I) = S_{\perp}(I) = S(I)$, the polarization is not changed and $J(\hat{k}_k, \hat{k}_{k-I}) = S(I) I$. For the backward scattering: $S_{//}(-I) = -S_{\perp}(-I) = S(-I)$, the sign of the helicity of the wave is changed in the improper frame obtained by the transformation $x \rightarrow x$, $y \rightarrow -y$ and $z \rightarrow -z$. As mentioned previously, this reflection is described by the Pauli matrix $\sigma_z : J(-\hat{k}_k, \hat{k}_{k-I}) = S(-I)\sigma_z$. The algebra of the multiple scattering is simply achieved since the rotation $R(\alpha)$ can also be formulated by the Pauli matrix $\sigma_y = \begin{bmatrix} 0 & -j \\ j & 0 \end{bmatrix} : R(\alpha) = \exp[-j\alpha\sigma_y]$ with the well known property: $\sigma_z R(\alpha) = R(-\alpha) \sigma_z$. This simple commutation rule leads to an accumulation of the Faraday angles in a scattering sequence. For instance, the effective Jones matrix of a sequence of n scatterings ending either in transmission or reflection can be written as: $\begin{bmatrix} I \\ \sigma_z \end{bmatrix} R(\alpha_0 + \alpha_1 + \alpha_2 + \dots + \alpha_n)$ where I corresponds to transmission and σ_z to reflection. For the one-dimensional model we have that $\alpha_0 + \alpha_1 + \alpha_2 + \dots + \alpha_n = VBs_n$ where s_n is the total length of the sequence. The electric field after n scatterings is written as:

$$\begin{bmatrix} E_{nx} \\ E_{ny} \end{bmatrix} = \frac{\exp[-jks_n]}{k^n \prod_{k=1}^n r_k} [I \text{ or } \sigma_z] \begin{bmatrix} \cos(VBs_n) & -\sin(VBs_n) \\ \sin(VBs_n) & \cos(VBs_n) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{ox} \\ E_{oy} \end{bmatrix}, \quad (\text{II.1})$$

As discussed previously, for reflection the reversed sequence is identical to the direct one. All the sequences with a given length s have the same Faraday rotation $\alpha = VBs$. The field correlation function is given by:

$$\langle E_{sx}(0)E_{sx}(B)^* \rangle_s \propto \langle \cos(VBs) \rangle_s i_{ox} - \langle \sin(VBs) \rangle_s E_{ox}E_{oy}^*, \quad (\text{II.2})$$

where $i_{ox} = |E_{ox}|^2$. The average is performed by means of the distribution $P(s, \frac{L}{l})$ of the lengths s in a segment of length L .

The Stokes intensities are given by:

$$\begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix} (B) = \begin{bmatrix} i_s \\ q_s \\ u_s \\ v_s \end{bmatrix} (B) \propto \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(2VBs) & \sin(2VBs) & 0 \\ 0 & \sin(2VBs) & \pm \cos(2VBs) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \pm 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_o \\ q_o \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}, \quad (\text{II.3})$$

where $i = i_x + i_y$, $q = i_x - i_y$, $u = 2\text{Re}(E_x E_y^*)$ and $v = 2\text{Im}(E_x E_y^*)$. The Mueller matrix is not diagonal because of the helicoidal symmetry introduced by the magnetic field. If the incident polarization is a pure state the Stokes sum rule ($i_o^2 = q_o^2 + u_o^2 + v_o^2$) can be applied. The polarization degree is given by:

$$P^2 = \frac{Q^2 + U^2 + V^2}{I^2} = v_o'^2 + [\langle \cos(2VBs) \rangle_s^2 + \langle \sin(2VBs) \rangle_s^2] (1 - v_o'^2), \quad (\text{II.4})$$

where $v_o' = v_o/i_o$.

We notice that if $B = 0$, the polarization degree equals 1: there is no depolarization. This is understood because the forward scattering does not change the polarization state and the backwards scattering only changes the helicity. For incident circular polarization ($v_o = \pm i_o$), with a magnetic field on, there is no depolarization since the photon will leave the segment in a pure circular polarization state, with the same helicity as the incident one in transmission or in the opposite helicity in reflection. If the incident polarization is non-circular, because of the Faraday rotation, the out-coming polarization of each sequence can be altered for different path lengths, which produces a depolarization. The strongest one happens for linear incidence ($v_o = 0$) and $P = \sqrt{\langle \cos(2VBs) \rangle_s^2 + \langle \sin(2VBs) \rangle_s^2}$.

For the intensity correlation, we obtain:

$$\begin{bmatrix} G_{xx}^{(I)} \\ G_{yy}^{(I)} \\ G_{xy}^{(I)} \\ G_{yx}^{(I)} \end{bmatrix} (B) = \begin{bmatrix} E_{sx}(0)E_{sx}^*(B) \\ E_{sy}(0)E_{sy}^*(B) \\ E_{sx}(0)E_{sy}^*(B) \\ E_{sy}(0)E_{sx}^*(B) \end{bmatrix} \propto \begin{bmatrix} 2\cos(VBs) & 0 & -\sin(VBs) & -j\sin(2VBs) \\ 0 & 2\cos(VBs) & \sin(VBs) & -j\sin(VBs) \\ 2\sin(VBs) & 0 & \cos(VBs) & j\cos(VBs) \\ 0 & -2\sin(VBs) & \cos(VBs) & -j\cos(VBs) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_{ox} \\ i_{oy} \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}. \quad (\text{II.5})$$

For the x component we obtain:

$$G_{xx}^{(2)}(B) = 2 \frac{\langle \cos(VBs) \rangle_s^2 i_{ox} + \langle \sin(VBs) \rangle_s^2 i_{oy} - \langle \cos(VBs) \rangle_s \langle \sin(VBs) \rangle_s u_o}{i_o + \langle \cos(2VBs) \rangle_s q_o - \langle \sin(2VBs) \rangle_s u_o} \quad (II.6)$$

For linear incidence in the direction x ($i_{ox} = i_o = q_o$ and $u_o = 0$) and for circular polarization ($i_{ox} = i_{oy} = i_o/2$ and $u_o = q_o = 0$) one gets, respectively:

$$G_{xx}^{(2)}(B) = \frac{\langle \cos(VBs) \rangle_s^2}{\langle \cos^2(VBs) \rangle_s} \quad \text{for incident linear polarization} \quad (II.7.a)$$

and

$$G_{xx}^{(2)}(B) = \langle \cos(VBs) \rangle_s^2 + \langle \sin(VBs) \rangle_s^2 \quad \text{for incident circular polarization} \quad (II.7.b)$$

The main result of this section is the *complete* correlation of the polarization despite the *random walk* of photons in the chain for given s . The numerator has an oscillatory behavior when B is varying. These oscillations are parametrized by the total length of the diffusion paths. They are damped only through the distribution $P(s)$ of the total length of these paths in one-dimensional systems.

These expressions will be considered in the section concerning the Monte Carlo simulation where the intensity correlation functions will be obtained as a function of the slab thickness.

III. THREE-DIMENSIONAL RAYLEIGH MULTIPLE SCATTERING

1. The Simple Stochastic Model

a. Transmission

Let us recall the theoretical approach of MacKintosh and John as a first approach to the law of variation of $G_{xx}^{(2)}(B)$. Consider the isotropic scattering regime (Rayleigh regime): the wavevector $\hat{k}$ is randomized at the length scale l . It is assumed that at the same length scale the polarization is randomized by a simple random process of helicity flip (of "Ising" type) in the circular wave representation. This is described by an external second random variable $\eta_K = \pm 1$ with equal probability, the index K being the scattering label. The phase

difference between right- and left-handed helicity is given by $\delta\phi_K = \eta_K \alpha_K = \eta_K VB \ell \cos \Omega_K$, where Ω_K , the angle between B and $\hat{k}_K$, is uniformly distributed in the interval $[0, \pi]$. The phase difference is a random variable with zero mean value. For a given sequence, the total phase difference Φ between the circular states is $e^{j\Phi} = \prod_{K=1}^n \exp(j\delta\phi_K) = \exp(j \sum_{K=1}^n \delta\phi_K)$. Since the $\delta\phi_K$ are assumed to be independent random variables of zero average, by virtue of the central limit theorem $\langle \exp(j\Phi) \rangle_e = \exp(-n \langle \delta\phi^2 \rangle_e) = \exp(-n \langle \alpha^2 \rangle_e)$. Confining the scatterers in a slab of thickness L , we use the path length distribution $P(s)$ from the diffusion theory ($L\ell \gg 1$). In transmission, for normalized total transmitted intensity, we notice that for $L\ell \gg 1$ the transmitted light is completely depolarized: $\langle i_x(0) \rangle_e = \langle i_x(B) \rangle_e = 1/2$. From Eqs. (I.8) and (I.9) one gets:

$$G_{xx}^{(2)}(\xi) \propto \left[\int_L^\infty ds P(s) \exp\left(-\frac{s \langle \alpha^2 \rangle_e}{\ell}\right) \right]^2 \propto \left[\frac{\xi}{sh(\xi)} \right]^2, \quad (\text{III.1.a})$$

where $\xi \propto L \sqrt{\langle \alpha^2 \rangle_e} \ell = VBL$ for $\langle \alpha^2 \rangle_e \ll 1$. As usual, the variable ℓ disappeared in the last expression. The reduced variable ξ couples exactly B and L through the factor BL . Consequently, this simple theory predicts a dependence of $G_{xx}^{(2)}$ on BL as well as a Faraday correlation length proportional to B^{-1} .

b. Reflection

For reflection we are interested in the enhancement factor, so that we have to take into account the phase interference between the direct and reversed sequences. The phase difference induced by the Faraday rotation for the direct sequence is: $E^{(d)} = e^{j\Phi} = \exp(j \sum_{K=1}^n \delta\phi_K)$. By using the result for the opposite field (section I.1), the total phase change induced by the Faraday rotation in the reverse sequence is: $E^{(r)} = e^{-j\Phi} = \exp(-j \sum_{K=1}^n \delta\phi_K)$. The enhancement factor is given by $\Xi(n) = 1 + \text{Re}[\langle E^{(d)} E^{(r)*} \rangle_e] = 1 + \exp(-2n \langle \alpha^2 \rangle_e)$. Confining the scatterers in a slab of thickness L and using the path length distribution from diffusion theory, we obtain:

$$\Xi(B) - 1 \propto \int_L^\infty ds P(s) \exp\left(-\frac{2s \langle \alpha^2 \rangle_e}{\ell}\right) \propto \exp(-\sqrt{2} VBL), \quad (\text{III.1.b})$$

where we have made use of $\langle \alpha^2 \rangle_e \ll 1$. The analogy of the Faraday enhancement factor as a function of VB with the enhancement factor of the coherent backscattering cone (as a function of the scattering angle) has been established by Lenke and Maret,²⁰ where they notice the difference of the triangular shape of these cones by a factor $\sqrt{2}$.

To conclude this brief summary, we emphasize that this simple stochastic approach is not able to describe the persistence of the backscattering cone in the reduced dimensionality systems. The anisotropy can be included in this simple model by changing the mean free path to the transport mean free path l^* , as discussed in reference 19.

However this simple analysis assumes a randomization process for the polarization states in addition to the randomization of the wavevector $\hat{k}$. This is certainly a considerable approximation of the polarization problem which must be discussed carefully. For instance, in the one- and two-dimensional problems, the wavevector is randomized without any separated randomization of polarization (see section II for onedimension and reference 20 for two dimensions).

2. Rayleigh Scatterers

For the three-dimensional problem, we are not able to obtain general analytical result beyond the simple theorems of section I. In this section, we will develop a calculation in the Rayleigh regime while in the next section we will report numerical results of a Monte Carlo simulation for the more complicated Mie regime.

For Rayleigh scatterers $S_{\perp}(\cos\theta) \propto 1$ and $S_{\parallel}(\cos\theta) \propto \cos\theta$, and all the intermediate fields during the multiple scattering can be written in the laboratory frame (x,y,z) through the dipolar matrix ("Jones" matrix in the (x,y,z) frame). For a sequence starting with $\hat{k}_0$ and ending with $\hat{k}_n$, the electric field is obtained from Eq. (I.1). For point-like scatterers it can be written as:

$$\begin{bmatrix} E_{nx} \\ E_{ny} \\ 0 \end{bmatrix} \propto R(\alpha_n) \left\{ \prod_{\kappa=1}^{n-1} T^{-1}(\hat{k}_{\kappa}) R(\alpha_{\kappa}) T(\hat{k}_{\kappa}) M(\hat{k}_{\kappa}) \right\} R(\alpha_0) \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{III.2.a})$$

where the order in the product starts with the first term in the right-hand side and comes to the left one,

$$R(\alpha) = \begin{bmatrix} \cos\alpha & -\sin\alpha & 0 \\ \sin\alpha & \cos\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \quad M(\hat{k}) = \begin{bmatrix} 1 - k_x^2 & -k_x k_y & -k_x k_z \\ -k_x k_y & 1 - k_y^2 & -k_y k_z \\ -k_x k_z & -k_y k_z & 1 - k_z^2 \end{bmatrix} \quad \text{and}$$

$$T(\hat{k}) = \begin{bmatrix} \cos\theta \cos\phi & \cos\theta \sin\phi & -\sin\theta \\ -\sin\phi & \cos\phi & 0 \\ \sin\theta \cos\phi & \sin\theta \sin\phi & \cos\theta \end{bmatrix}, \quad (\text{III.2.b})$$

where $\alpha = \epsilon k_z$ with $\epsilon = VB l$ (we assumed that successive scatterers are separated by l), $k_x = \sin\theta \cos\phi$, $k_y = \sin\theta \sin\phi$ and $k_z = \cos\theta$. We impose that the Faraday rotation, described by the matrix $R(\alpha)$, occurs in the local frame throughout the action of the matrix T , which describes the change of frames. Using: $T^{-1} = T(t)$, $M^2 = M$ and $NM = MN = N$, one can write:

$$M' = T^{-1}RTM = M \cos\alpha + N \sin\alpha \quad \text{with} \quad N = \begin{bmatrix} 0 & -k_z & k_y \\ k_z & 0 & -k_x \\ -k_y & k_x & 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{III.2.c})$$

where N , contrary to M , is an antisymmetric matrix. The obvious properties are: $N^2 = -M$ and $M'M = M'^t$. This matrix representation is equivalent to the recursive vectorial form:

$$E_{\mathbf{K}} = M'_{\mathbf{K}} E_{\mathbf{K}-1} = (\cos\alpha_{\mathbf{K}} \hat{k}_{\mathbf{K}} \wedge + \sin\alpha_{\mathbf{K}}) (\hat{k}_{\mathbf{K}} \wedge E_{\mathbf{K}-1}), \quad (\text{III.2.d})$$

describing the Rayleigh scattering followed by a Faraday rotation. The matrix $M'_{\mathbf{K}}$ depends only on the random scattering angles $\theta_{\mathbf{K}}$ and $\phi_{\mathbf{K}}$. Thus Eq. (2.1) can be written as:

$$\begin{bmatrix} E_{nx} \\ E_{ny} \\ 0 \end{bmatrix} \propto R(\alpha_n) \prod_{\mathbf{K}=1}^{n-1} M'(\hat{k}_{\mathbf{K}}) R(\alpha_o) \begin{bmatrix} E_{ox} \\ E_{oy} \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{III.2.e})$$

The multiple scattering sequences are obtained by choosing the random variables $\hat{k}_o, \hat{k}_1, \dots, \hat{k}_n$ as uniform and independent. The assumption of independence of $\hat{k}$ does not treat correctly the boundary conditions for a slab since the last scattering may be anywhere in space and not necessarily close to the boundary surface. Nevertheless it is expected that for large n , the correlations in the choice of $\hat{k}$ vanishes. This point will be discussed in the section concerning the Monte Carlo simulation. This recursive method is a generalization, in order to include the Faraday effect, of the method employed by Akkermans *et al.*¹⁷

a. Stokes intensities and polarization degree

First, let us calculate the mean values of the Stokes intensities in the presence of a magnetic field. The nine elements of the coherence matrix are defined by $C_{\mathbf{K}}(\epsilon) = \langle E_{\mathbf{K}}(\epsilon) E_{\mathbf{K}}(\epsilon)^{\dagger} \rangle_e$, where $\langle \dots \rangle_e$ is the ensemble average and $\dagger$ takes the transpose of $E_{\mathbf{K}}(\epsilon)$ and conjugates it. The starting value is: $C_o(\epsilon) = R(\alpha_o) E_o(0) E_o(0)^{\dagger} R(t)(\alpha_o)$, the rotation

before the first scattering is then considered. The scatterings are independent of each other, allowing the recursion relation: $C_K(\epsilon) = \langle M'_K C_{K-1}(\epsilon) M'^{-1}_K \rangle$, where now $\langle \dots \rangle = \frac{1}{4\pi} \int_0^\pi d\theta_K \cos\theta_K d\phi_K \dots$. Writing the elements of C_K as a function of the elements of C_{K-1} , we see that the average in ϕ disconnects the elements in two sets, one with C_{xx} , C_{zz} , C_{xy} , C_{yy} and C_{yx} and the other with C_{xz} , C_{zx} , C_{yx} and C_{zy} . As we are interested in the outgoing field propagating in the z -direction, only the x - and y -components are important, then we only consider the first set. Hence we have to work with a 5×5 matrix. This 5×5 matrix can be diagonalized into two 2×2 block matrices and one single element when transforming the C 's into the Stokes intensities: $I_K = C_{xx,K} + C_{yy,K}$, $Q_K = C_{xx,K} - C_{yy,K}$, $U_K = C_{xy,K} + C_{yx,K}$ and $jV_K = C_{xy,K} - C_{yx,K}$, and we obtain:

$$\begin{bmatrix} I_K \\ C_{zz,K} \end{bmatrix} = \chi_1 \begin{bmatrix} I_{K-1} \\ C_{zz,K-1} \end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix} Q_K \\ U_K \end{bmatrix} = \chi_2 \begin{bmatrix} Q_{K-1} \\ U_{K-1} \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad V_K = (1/3) V_{K-1}, \quad (\text{III.3.a})$$

where

$$\chi_1 = \begin{bmatrix} c_{11} & 2c_{21} \\ c_{21} & c_{22} \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad \chi_2 = \begin{bmatrix} c_{33} & c_{34} \\ -c_{34} & c_{33} \end{bmatrix}, \quad (\text{III.3.b})$$

with

$$\begin{aligned} c_{11} &= \frac{7}{15} + \frac{1}{2\epsilon^2} j_2(2\epsilon), \quad c_{21} = \frac{1}{5} - \frac{1}{2\epsilon^2} j_2(2\epsilon), \quad c_{22} = \frac{4}{15} + \frac{1}{\epsilon^2} j_2(2\epsilon), \\ c_{33} &= \frac{1}{15} + j_0(2\epsilon) - \frac{1}{\epsilon} j_1(2\epsilon) + \frac{1}{4\epsilon^2} j_2(2\epsilon) \quad \text{and} \quad c_{34} = -j_1(2\epsilon) + \frac{1}{2\epsilon} j_2(2\epsilon), \end{aligned} \quad (\text{III.3.c})$$

and $j_K(\epsilon) = \sqrt{\frac{\pi}{2\epsilon}} J_{K+1/2}(\epsilon)$ is the spherical Bessel function and $J_K(\epsilon)$ the cylindrical one.

We are interested in considering $n-1$ scatterings. Thus we obtain for the $(n-1)$ -th power of the 2×2 matrices χ_1 and χ_2 :

$$\chi_1^{n-1} = \frac{1}{3} \frac{1}{2^{n-1}} \begin{bmatrix} 2(\frac{4}{3})^{n-1} + \gamma^{n-1} & 2[(\frac{4}{3})^{n-1} - \gamma^{n-1}] \\ (\frac{4}{3})^{n-1} - \gamma^{n-1} & (\frac{4}{3})^{n-1} + 2\gamma^{n-1} \end{bmatrix}, \quad (\text{III.4.a})$$

and

$$\chi_2^{n-1} = \begin{bmatrix} \text{Re}(\gamma'^{n-1}) & \text{Im}(\gamma'^{n-1}) \\ -\text{Im}(\gamma'^{n-1}) & \text{Re}(\gamma'^{n-1}) \end{bmatrix}, \quad (\text{III.4.b})$$

where $\gamma = \frac{2}{15} + \frac{3}{\epsilon^2} j_2(2\epsilon)$ and $\gamma' = c_{33} + j c_{34} = |\gamma'| e^{j\Phi}$, where $|\gamma'| = \sqrt{c_{33}^2 + c_{34}^2}$ and $\Phi = \arctan(\frac{c_{34}}{c_{33}})$. These complicated expressions can be simplified for the case of : i) weak magnetic field ($\epsilon \ll 1$) $\gamma = \frac{14}{15} - \frac{24}{105} \epsilon^2$ and $\gamma' = \frac{7}{15} - \frac{44}{105} \epsilon^2 - j \frac{8}{15} \epsilon$ and ii) strong magnetic field ($\epsilon \gg 1$) $\gamma = \frac{2}{5}$ and $\gamma' = \frac{1}{15}$. We notice that γ' is a complex variable for weak field but it becomes asymptotically a real variable for a strong magnetic field.

Let us now consider the boundary conditions: normal incidence and emergence in transmission and reflection. For incidence, the first Faraday rotation along the z-axis for a first scattering at a distance l from the plane can be taken into account by the expressions: $I_o = i_o$, $Q_o = \cos(2\epsilon_o)q_o - \sin(2\epsilon_o)u_o$, $U_o = \sin(2\epsilon_o)q_o + \cos(2\epsilon_o)u_o$ and $V_o = v_o$. The last Faraday rotation must be considered from the last scattering to the plane along the z-axis, but k_z can take two values $+1$ in transmission and -1 in reflection, which leads to the relations: $I_n = I_{n-1}$, $Q_n = \cos(2\epsilon_n)Q_{n-1} - \sin(2\epsilon_n)U_{n-1}$, $U_n = \sin(2\epsilon_n)Q_{n-1} + \cos(2\epsilon_n)U_{n-1}$ and $V_n = V_{n-1}$. In this way we obtain without approximation the Mueller matrix with magnetic field:

$$\begin{bmatrix} I_n \\ Q_n \\ U_n \\ V_n \end{bmatrix} (\epsilon) = \frac{1}{3} \left(\frac{1}{2} \right)^{n-1} \left[2 \left(\frac{4}{3} \right)^{n-1} + \gamma^{n-1} \right]$$

$$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & P^{(n)}_L \cos[(n-1)\Phi - 2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & P^{(n)}_L \sin[(n-1)\Phi - 2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & 0 \\ 0 & P^{(n)}_L \sin[(n-1)\Phi - 2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & \pm P^{(n)}_L \cos[(n-1)\Phi - 2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P^{(n)}_C \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_o \\ q_o \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}. \quad (\text{III.5.a})$$

where

$$P^{(n)}_L = \frac{3 \left(2 |\gamma'| \right)^{n-1}}{2 \left(\frac{4}{3} \right)^{n-1} + \gamma^{n-1}} \quad (\text{III.5.b})$$

is the polarization degree ($P^{(n)}(\epsilon) = \sqrt{\frac{q_n^2 + u_n^2 + v_n^2}{i_n^2}}$) for linear incident polarization in x ($q_o = i_o$ and $u_o = v_o = 0$) and

$$P^{(n)}_C = \frac{3 \left(\frac{2}{3}\right)^{n-1}}{2\left(\frac{4}{3}\right)^{n-1} + \gamma^{n-1}} \quad (\text{III.5.c})$$

is the polarization degree for circular incidence ($v_o = \pm i_o$ and $q_o = u_o = 0$). For $B = 0$ we find the values calculated by Akkermans *et al.*:¹⁷

$$\begin{bmatrix} I_n \\ Q_n \\ U_n \\ V_n \end{bmatrix} (0) = \begin{bmatrix} \frac{1}{3} [2 \left(\frac{2}{3}\right)^{n-1} + \left(\frac{7}{15}\right)^{n-1}] & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \left(\frac{7}{15}\right)^{n-1} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \left(\pm \frac{7}{15}\right)^{n-1} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \left(\frac{1}{3}\right)^{n-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_o \\ q_o \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}. \quad (\text{III.5.d})$$

The symmetry of this matrix is discussed in reference 7 and the polarization degree for linear and circular incident polarization is discussed in reference 8.

We see that the Mueller matrix of Eq. (III.5.a) has the same structure as the one-dimension matrix (Eq. II.3). Simpler expressions can be obtained in the diffusion regime ($n \gg 1$) under weak ($\epsilon \ll 1$) and strong ($\epsilon \gg 1$) magnetic field. For weak magnetic field we have that:

$$\begin{bmatrix} I_n \\ Q_n \\ U_n \\ V_n \end{bmatrix} (\epsilon) = \left(\frac{2}{3}\right)^n \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & P^{(n)}_L \cos\left(\frac{8}{7}n\epsilon\right) & -P^{(n)}_L \sin\left(\frac{8}{7}n\epsilon\right) & 0 \\ 0 & -P^{(n)}_L \sin\left(\frac{8}{7}n\epsilon\right) & \pm P^{(n)}_L \cos\left(\frac{8}{7}n\epsilon\right) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P^{(n)}_C \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_o \\ q_o \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}. \quad (\text{III.6.a})$$

where we notice that, despite the small value of ϵ , the product $n\epsilon$ can be much larger than 1. The polarization degrees are given by:

$$P^{(n)}_L(\epsilon) = P^{(n)}_L(0) \exp\left(-\frac{436}{1575} \epsilon^2 n\right) \quad \text{and} \quad P^{(n)}_C(\epsilon) = P^{(n)}_C(0) = \left(\frac{1}{2}\right)^n, \quad (\text{III.6.b})$$

with $P^{(n)}_L(0) = \left(\frac{7}{10}\right)^n$. The magnetic field does not modify the depolarization rate for the incident circular polarization. On the other hand the magnetic field induces a faster decay for incident linear polarization, through the ϵ^2 term. For strong magnetic field:

$$\begin{bmatrix} I_n \\ Q_n \\ U_n \\ V_n \end{bmatrix}(\epsilon) = \left(\frac{2}{3}\right)^n \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & P^{(n)}_L \cos[2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & -P^{(n)}_L \sin[2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & 0 \\ 0 & -P^{(n)}_L \sin[2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & \pm P^{(n)}_L \cos[2(\epsilon_o + \epsilon_n)] & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P^{(n)}_C \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_o \\ q_o \\ u_o \\ v_o \end{bmatrix}. \quad (\text{III.6.c})$$

where the angle $2(\epsilon_o + \epsilon_n)$ corresponds to the Faraday rotations before the first scattering and after the last one. The polarization degrees are given by:

$$P^{(n)}_L = \frac{3}{4} \left(\frac{1}{10}\right)^n \quad \text{and} \quad P^{(n)}_C = \frac{3}{2} \left(\frac{1}{2}\right)^n. \quad (\text{III.6.d})$$

In this case the depolarization rate is faster for the incident linear polarization state than for the circular one, in contrast to the zero field situation.

b. Destruction of the backscattering enhancement

For reflection, we must consider the reversed sequences. These sequences are obtained by taking $\hat{k} \rightarrow -\hat{k}$, $\alpha \rightarrow -\alpha$ and reversing the order of the sequence. The electric field is given by:

$$(\text{REV}) \quad \begin{bmatrix} E_{nx} \\ E_{ny} \\ 0 \end{bmatrix} \propto R(-\alpha_o) \prod_{\kappa=n-1}^1 M'(-\hat{k}_\kappa) R(-\alpha_n) \begin{bmatrix} E_{ox} \\ E_{oy} \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{III.7.a})$$

where the order of the product is reversed, in order to follow the prescription of Eq. (III.2.a). On the other hand, the field of the direct sequence is given by:

$$(\text{DIR}) \quad \begin{bmatrix} E_{nx} \\ E_{ny} \\ 0 \end{bmatrix} \propto R(\alpha_n) \prod_{\kappa=1}^{n-1} M'(\hat{k}_\kappa) R(\alpha_o) \begin{bmatrix} E_{ox} \\ E_{oy} \\ 0 \end{bmatrix}. \quad (\text{III.7.b})$$

The field emerging from the slab in reflection is the sum of the direct and the reversed one.

We will consider the (VV) configuration, *i.e.*, only the x -component of the electric field for the sequences with n scatterings. The enhancement factor is given by Eq. I.11.a:

$$\Xi_{xx}(\epsilon) = \frac{I_x(\epsilon)}{I_x^{(d)}(\epsilon)} = 1 + \frac{\text{Re}[\Gamma_{xx}(\epsilon)]}{I_x^{(d)}(\epsilon)}. \quad (\text{III.8.c})$$

with $I_x^{(d)}(\epsilon) = I_x^{(r)}(\epsilon) = \frac{I+Q}{2}$ and

$$\Gamma_{xx}^{(n)}(\epsilon) = \langle E_x^{(d)}(\epsilon) E_x^{(r)*}(\epsilon) \rangle = [\begin{smallmatrix} 1 & 0 & 0 \end{smallmatrix}] \langle X_n(\epsilon) \rangle \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} = \langle X_{xx,n}(\epsilon) \rangle i_o. \quad (\text{III.8.d})$$

We also ignore the first and last Faraday rotation: $\alpha_o = \alpha_n = 0$. In this case, we can write:

$$\begin{aligned} \langle X_{n-1}(\epsilon) \rangle &= M_1' M_2' \dots M_{n-1}'(\epsilon) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} [\begin{smallmatrix} 1 & 0 & 0 \end{smallmatrix}] M_1'^{(t)} M_2'^{(t)} \dots M_{n-1}'^{(t)} = \\ &= [M_{n-1}'^{(t)} \dots M_2'^{(t)} M_1'^{(t)}]^{(t)} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} [\begin{smallmatrix} 1 & 0 & 0 \end{smallmatrix}] M_1'^{(t)} M_2'^{(t)} \dots M_{n-1}'^{(t)} = \\ &= \langle M_{n-1}'^{(t)}(\epsilon) \langle X_{n-2}(\epsilon) \rangle M_{n-1}'^{(t)}(\epsilon) \rangle. \end{aligned} \quad (\text{III.8.e})$$

Writing the elements of X_n as a function of the elements of X_{n-1} , we see that the average in ϕ disconnects these elements in two sets, one with: X_{xx} , X_{yy} , X_{zz} , X_{xy} and X_{yx} and the other: X_{xz} , X_{zx} , X_{yz} and X_{zy} . As we are interested in the x component propagating along the z axis, we will consider only the first set. This 5x5 matrix can be diagonalized in a block with a 3x3 matrix and two degenerate eigenvalues by performing the transformation: $X_i = X_{xx} + X_{yy}$, $X_q = X_{xx} - X_{yy}$, $X_u = X_{xy} + X_{yx}$ and $X_v = X_{xy} - X_{yx}$:

$$\begin{bmatrix} X_{i,n-1} \\ X_{v,n-1} \\ X_{zz,n-1} \end{bmatrix}(\epsilon) = \chi_3^{n-1}(\epsilon) \begin{bmatrix} X_{i,o} \\ X_{v,o} \\ X_{zz,o} \end{bmatrix},$$

$$X_{q,n-1}(\epsilon) = \tilde{a}_2^{n-1}(\epsilon) X_{q,o} \quad \text{and} \quad X_{u,n-1}(\epsilon) = \tilde{a}_2^{n-1}(\epsilon) X_{u,o}; \quad (\text{III.9.a})$$

where

$$\chi_3(\epsilon) = \begin{bmatrix} x_{11} & x_{12} & 2x_{13} \\ -x_{12} & x_{22} & -2x_{23} \\ x_{13} & x_{23} & x_{33} \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad \tilde{a}_2(\epsilon) = \frac{2}{5} + \frac{1}{4\epsilon^2} j_2(2\epsilon) . \quad (\text{III.9.b})$$

with

$$\begin{aligned} x_{11} &= \frac{2}{15} + j_0(2\epsilon) - \frac{1}{\epsilon} j_1(2\epsilon) + \frac{1}{2\epsilon^2} j_2(2\epsilon) , & x_{12} &= -j_1(2\epsilon) + \frac{1}{2\epsilon} j_2(2\epsilon) \\ x_{13} &= -\frac{2}{15} + \frac{1}{2\epsilon} j_1(2\epsilon) - \frac{1}{2\epsilon^2} j_2(2\epsilon) , & x_{22} &= j_0(2\epsilon) - \frac{1}{\epsilon} j_1(2\epsilon) \\ x_{23} &= -\frac{1}{2\epsilon} j_2(2\epsilon) & \text{and} & \quad x_{33} = \frac{4}{15} + \frac{1}{\epsilon^2} j_2(2\epsilon) . \end{aligned} \quad (\text{III.9.c})$$

Let us now consider the eigenvalues of χ_3 . For small values of ϵ we have: $\lambda_1(\epsilon) \cong \frac{2}{3} (1 - 2\epsilon^2)$, $\lambda_2(\epsilon) \cong \frac{1}{3} (1 + 2\epsilon^2)$ and $\lambda_3(\epsilon) \cong \frac{7}{15} (1 - \frac{8}{15}\epsilon^2)$. For large values of ϵ , the Bessel functions are very small, so that: $\lambda_1(\epsilon) \cong \frac{2}{5}$, $\lambda_2(\epsilon) = \lambda_3(\epsilon) \cong 0$. Since in both limiting cases $\lambda_1(\epsilon)$ is much greater than $\lambda_2(\epsilon)$ and $\lambda_3(\epsilon)$ in the diffusion regime ($n \gg 1$) we can write:

$$X_{i,n}(\epsilon) \cong \lambda_1^n(\epsilon) X_{i,o} . \quad (\text{III.10})$$

Similarly, for small values of ϵ , $\tilde{a}_2(\epsilon) \cong \frac{7}{15} (1 - \frac{2}{49}\epsilon^2)$ and for large values of ϵ , $\tilde{a}_2(\epsilon) = \frac{2}{5}$.

Thus one gets:

$$X_{xx,n} = \frac{X_{i,n} + X_{q,n}}{2} = \frac{\lambda_1^n + \tilde{a}_2^n}{2} i_o . \quad (\text{III.11.a})$$

The enhancement factor is obtained from Eqs. (III.8.c) and (III.8.d):

$$\Xi_{xx,n}(\epsilon) = 1 + \frac{X_{xx,n}(\epsilon)}{I_{x,n}^{(d)}(\epsilon)} = 1 + \frac{2 X_{xx,n}(\epsilon)}{I_n(\epsilon) + Q_n(\epsilon)} \quad (\text{III.11.b})$$

where $I_n(\epsilon)$ and $Q_n(\epsilon)$ are the Stokes intensities given by Eq. III.6.a in the limit of small values of ϵ and by Eq. III.6.c in the limit of large values of ϵ . For incident linear polarized light along the x -axis, the incident Stokes intensities are $q_o = i_o$ and $u_o = v_o = 0$. For

$\epsilon \ll 1$, $\lambda_j(\epsilon) > \tilde{a}_2$, so that for $n \gg 1$ the leading term is $\lambda_1(\epsilon)$. The enhancement factor is then given by:

$$\Xi_{xx,n} \equiv 1 + \exp(-2\epsilon^2 n), \quad (\text{III.12.a})$$

which shows an exponential decrease as a function of $2\epsilon^2 n$. In this way, we find the same result predicted by the simple stochastic model. For $\epsilon \gg 1$, the enhancement factor goes to 1 as:

$$\Xi_{xx,n}(\epsilon) - 1 \equiv 2 \left(\frac{3}{5}\right)^n. \quad (\text{III.12.b})$$

For strong magnetic fields the enhancement factor does not go to 1, but rather to a finite asymptotic value which depends on the number of scattering n . It is clear now that the Faraday cone has different behaviors depending on the value of ϵ . The cone is initially destroyed exponentially as a function of the scattering number n with a characteristic decay $\frac{1}{2\epsilon^2}$. For large values of ϵ the characteristic decay change to $\ln(\frac{3}{5})$.

c. Correlation function

Let us now turn our attention to the product $G_K(\epsilon) = \langle E_K(0)E_K(\epsilon)^\dagger \rangle_e$ which gives the field correlations. The generalized coherence matrix $G(\epsilon)$ is obtained by the product: $G_K(\epsilon) = \langle M_k M_{k-1} \dots M_1 G_0(\epsilon) M_1^{(t)} M_2^{(t)} \dots M_k^{(t)} \rangle$. The initial value is defined as: $G_0(\epsilon) = E_0(0)E_0(0)^\dagger R^{(t)}(\alpha_0)$. As previously, we will ignore the first and the last Faraday rotation of the sequence. Assuming that the scatterings are independent of each other, one can use the recursion method:

$$G_K(\epsilon) = \langle M_K G_{K-1}(\epsilon) M_K^{(t)} \rangle. \quad (\text{III.13})$$

Writing the elements of G_K as a function of the elements of G_{K-1} , we see that after averaging in ϕ G_{xx} , G_{zz} , G_{xy} , G_{yy} and G_{yx} are independent of the elements G_{xz} , G_{zx} , G_{yx} and G_{zy} . As we are interested in the outgoing field, only the x - and y -components are important, we will consider only the first set. We observe that G_{xy} is not the complex conjugate of G_{yx} . Changing the variables, $G_i = G_{xx} + G_{yy}$, $G_q = G_{xx} - G_{yy}$, $G_u = G_{xy} + G_{yx}$ and $G_v = G_{xy} - G_{yx}$, we obtain a reduction of the 5x5 matrix in terms of a 2x2 matrix Γ_1 and a 3x3 matrix Γ_2 :

$$\begin{bmatrix} G_{q,n-1} \\ G_{u,n-1} \end{bmatrix} = \Gamma_1^{n-1}(\epsilon) \begin{bmatrix} G_{q,0} \\ G_{u,0} \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad \begin{bmatrix} G_{i,n-1} \\ G_{v,n-1} \\ G_{zz,n-1} \end{bmatrix} = \Gamma_2^{n-1}(\epsilon) \begin{bmatrix} G_{i,0} \\ G_{v,0} \\ G_{zz,0} \end{bmatrix}, \quad (\text{III.14.a})$$

with

$$\Gamma_1(\epsilon) = \begin{bmatrix} g_{11} & g_{12} \\ -g_{12} & g_{11} \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad \Gamma_2(\epsilon) = \begin{bmatrix} g_{33} & g_{12} & 2g_{53} \\ -g_{12} & g_{44} & -2g_{54} \\ g_{53} & g_{54} & g_{55} \end{bmatrix}, \quad (\text{III.14.b})$$

and

$$\begin{aligned} g_{11} &= j_0(\epsilon) - \frac{2}{\epsilon} j_1(\epsilon) + \frac{2}{\epsilon^2} j_2(\epsilon), \quad g_{12} = -j_1(\epsilon) + \frac{1}{\epsilon} j_2(\epsilon), \\ g_{33} &= j_0(\epsilon) - \frac{2}{\epsilon} j_1(\epsilon) + \frac{4}{\epsilon^2} j_2(\epsilon), \quad g_{44} = j_0(\epsilon) - \frac{2}{\epsilon} j_1(\epsilon), \\ g_{53} &= j_1(\epsilon) - \frac{4}{\epsilon^2} j_2(\epsilon), \quad g_{54} = -\frac{1}{\epsilon} j_2(\epsilon), \quad g_{55} = \frac{8}{\epsilon^2} j_2(\epsilon). \end{aligned} \quad (\text{III.14.c})$$

We are interested in considering $n-1$ scatterings. Thus we have:

$$\Gamma_1^{n-1} = \begin{bmatrix} \text{Re}(\gamma'') & \text{Im}(\gamma'') \\ -\text{Im}(\gamma'') & \text{Re}(\gamma'') \end{bmatrix} \quad \text{with} \quad \gamma'' = (g_{11} + jg_{12})^{n-1}. \quad (\text{III.15.a})$$

For small values of ϵ and for $n \gg 1$, we can write: $\gamma'' = \left(\frac{7}{15}\right)^n \exp(-j\frac{4}{7}\epsilon n)$ and Γ_1^{n-1} becomes a rotation matrix damped with a factor $\left(\frac{7}{15}\right)^n$:

$$\Gamma_1^{n-1} \equiv \left(\frac{7}{15}\right)^n \begin{bmatrix} \cos(\frac{4}{7}\epsilon n) & -\sin(\frac{4}{7}\epsilon n) \\ \sin(\frac{4}{7}\epsilon n) & \cos(\frac{4}{7}\epsilon n) \end{bmatrix}. \quad (\text{III.15.b})$$

Now consider the 3×3 matrix Γ_2 . For small values of ϵ , the eigenvalues of Γ_2 are $\lambda_1(\epsilon) = \frac{2}{3} (1 - \frac{1}{2}\epsilon^2)$, $\lambda_2(\epsilon) = \frac{1}{3} (1 + \frac{1}{2}\epsilon^2)$ and $\lambda_3(\epsilon) = \frac{7}{15} (1 - \frac{19}{98}\epsilon^2)$. In the diffusion regime $n \gg 1$, the leading term is given by the largest eigenvalue, which is $\lambda_1(\epsilon)$, so that $G_{i,n}(\epsilon) \equiv \lambda_1^n(\epsilon) G_{i,0}$. In order to calculate the intensity correlation function we are interested in $G_{xx}(\epsilon)$ for incident light polarized linearly along the x -direction and circularly. In both cases, $G_{u,0} = 0$ which leads to:

$$\begin{aligned}
 G_{xx}(\epsilon) &= \langle E_x(0) E_x(\epsilon)^* \rangle_e = \frac{G_i(\epsilon) + G_q(\epsilon)}{2} = \\
 &\equiv \frac{1}{2} \left[\lambda_I^n(\epsilon) G_{i,o} + \left(\frac{7}{15} \right)^n \cos\left(\frac{4}{7} \epsilon n\right) G_{q,o} \right] . \quad (\text{III.16.a})
 \end{aligned}$$

Now let us consider an incident circular polarization. In this case $G_{q,o} = 0$ so that:

$$|G_{xx}(\epsilon)|^2 = \frac{1}{4} \lambda_I^n(\epsilon) i_o^2 = \frac{1}{4} \left(\frac{2}{3} \right)^{2n} \exp(-\epsilon^2 n) i_o^2 . \quad (\text{III.16.b})$$

The Stokes intensity along the x direction is given by Eq. III.6.a and it reads $I_x(\epsilon) \equiv \frac{1}{2} \left(\frac{2}{3} \right)^n i_o$, so that the intensity correlation function is given by:

$$G_{xx}^{(2)}(\epsilon) = \frac{|G_{xx}(\epsilon)|^2}{I_x(0) I_x(\epsilon)} \equiv \exp(-\epsilon^2 n) . \quad (\text{III.16.c})$$

Now let us consider incident linear light polarized along the x direction. In this case $G_{q,o} = G_{i,o} = i_o$, so that:

$$\begin{aligned}
 |G_{xx}(\epsilon)|^2 &\equiv \frac{1}{4} \left[\lambda_I^n(\epsilon) + \left(\frac{7}{15} \right)^n \cos\left(\frac{4}{7} \epsilon n\right) \right] i_o^2 \equiv \\
 &\frac{1}{4} \left(\frac{2}{3} \right)^{2n} \left[\left(1 - \frac{\epsilon^2}{2} \right)^{2n} + 2 \left(\frac{7}{10} \right)^n \cos\left(\frac{4}{7} \epsilon n\right) \right] i_o^2 . \quad (\text{III.16.d})
 \end{aligned}$$

and the intensity correlation function is given by:

$$G_{xx}^{(2)}(\epsilon) = \frac{|G_{xx}(\epsilon)|^2}{I_x(0) I_x(\epsilon)} \equiv \exp(-\epsilon^2 n) \left[1 + 2 \left(\frac{7}{10} \right)^n \cos\left(\frac{4}{7} \epsilon n\right) \right] . \quad (\text{III.16.e})$$

For $\epsilon^2 n \gg 1$, we cannot make any distinction between the incident linear and circular polarization since both correlation functions decay as $\exp(-\epsilon^2 n)$. This is a result obtained by the simple stochastic model. This fact was observed experimentally by Erbacher, Lenke and Maret. Nevertheless the correlation function for incident linear and circular polarization have different behaviors for larger values of $\epsilon^2 n$. For circular polarization it keeps decaying as $\exp(-\epsilon^2 n)$, but for the incident linear polarization this function is only the envelope of an oscillating function with period of $\epsilon n = \frac{7\pi}{2}$. This kind of oscillations has been observed in a Monte Carlo simulation.¹³

IV. MONTE CARLO SIMULATION

1. Algorithm

To simulate sequences of Mie scatterings in a slab of length L under a magnetic field B , we have included the Faraday rotations between the scatterers in the Monte Carlo code we have developed to study the statistics of the polarization.⁸ In this code, the Mie coefficients and scattering amplitudes $S_{//}(\cos\theta)$ and $S_{\perp}(\cos\theta)$ have been obtained as described in reference 22 using the Lentz algorithm.²³ The Jones matrix of each Mie scattering contains the Faraday rotation due to the magnetic field. The effect of the magnetic field inside the scatterers is ignored. These matrices are calculated using the Chandrasekhar-Sekera representation.¹⁶

In the slab, the photon history starts at the origin of the laboratory frame (x, y, z) . It propagates along the z -axis until $z' > 0$. This distance is generated following the exponential distribution $\exp(-r/l)/l$. The distance $l = 1/(\Phi \sigma_t)$ is the mean free path, where Φ is the concentration of spheres and σ_t is the total cross section (we do not consider the effects of absorption). If $z' > L$, the photon leaves the slab without being scattered and the Faraday rotation inside the slab is taken into account. On the other hand, if $0 < z' < L$, the Faraday rotation is taken into account for this segment and a sphere of radius a is supposed to be present at this position. A local coordinate system is considered so that $\hat{x}_I = \hat{x}$, $\hat{y}_I = \hat{y}$ and $\hat{z}_I = \hat{z}$. In this local frame the scattering angles θ_I and ϕ_I are generated by the Mie distribution and a new distance r_I is generated by the exponential distribution. This new position (θ_I, ϕ_I, r_I) corresponds to a new scattering and its coordinates are then calculated in the lab. frame (x_I, y_I, z_I) . If $z_I > L$, the photon is transmitted and if $z_I < 0$, the photon is reflected. In both cases, the photon leaves the slab perpendicularly to the walls suffering one collision and the Faraday rotation is taken into account for this segment. If the photon does not escape the slab, the Faraday rotation corresponding to this segment is considered as well as a new local coordinated system: $\hat{x}_2 = \hat{\theta}_I$, $\hat{y}_2 = \hat{\phi}_I$ and $\hat{z}_2 = \hat{k}_I$. The scattering angles are chosen following the Mie distribution and a new distance is generated in this new local frame. This position is calculated in the lab. frame and this process is repeated successively until a sphere lies outside the slab. The last scattering is taken back and the photon is forced to be scattered in the direction $\hat{\theta}'$ and $\hat{\phi}'$ in the last local frame. These last scattering angles are not random, but calculated so that the photon escape perpendicularly to the plane of the slab. In transmission, the multiply scattered Jones matrix is calculated in the lab. frame ($\hat{\theta}' = \hat{x}$, $\hat{\phi}' = \hat{y}$, and $\hat{k}' = \hat{z}$), but in reflection, it is calculated in the frame: ($\hat{\theta}' = \hat{x}$, $\hat{\phi}' = -\hat{y}$, and $\hat{k}' = -\hat{z}$), which is an improper rotation of the lab. frame. A weight (the probability for a photon to be scattered with θ' and ϕ') is then assigned to each sequence. The reverse sequence is calculated so that, if the photon quits the slab in reflection, the Jones matrix of the reverse

sequence is considered. The Mueller matrices are then calculated and the averages are performed. In this way we obtain the enhancement factor and the intensity correlations as a function of the magnetic field and slab length.

An important step of the method resides in the choice of the scattering angles θ and ϕ . We emphasize that the complete Mie distribution is not separable. Even worse, it is parametrized by the incident field. Generating this distribution numerically, by the rejection method, is very time consuming. For large spheres, the distribution takes a simpler form. It is independent of both ϕ and the incident field. Therefore, the angle ϕ can be chosen from a uniform distribution and the angle θ is given by the approximate large sphere Mie distribution $[|S_{//}(\cos\theta)|^2 + |S_{\perp}(\cos\theta)|^2]/(2\sigma_s)$, where σ_s is the scattering cross section. This simplification has already been used in previous simulations.²⁴⁻²⁶ In this case, the angle θ can be generated by the cumulative function (the integral of the large sphere Mie distribution). This method is very efficient, since a single random number is needed for each $\cos\theta$. The values of the cumulative function can be tabulated as well as the values of the scattering amplitudes. The tables are divided in 180 intervals of $\cos\theta$ and data are obtained from these tables by linear interpolation.

2. Results

We have considered incident circular and linear polarized light along the x axis with a wavelength in the vacuum $\lambda_{vac} = 0.4579 \mu\text{m}$. The Verdet constant of the medium is $V = 157.1 \text{ rad/(mT)}$ and its refraction index $n_m = 1.69$. The spheres have a radius $a = 0.1 \mu\text{m}$, refraction index $n_s = 1.45$ and are diluted, representing $\Phi = 1\%$ of the volume. This leads to a size parameter $\alpha = ka = 2\pi n_m a / \lambda_{vac} = 2.32$. The magnetic field is applied along the z axis and we have considered at least 10000 sequences for each slab thickness.

From the Mie regime ($ka = 2\pi n_m a / \lambda_{vac} = 2.32$ and $n_s/n_m = 0.858$) we obtain a total scattering cross section $\sigma_t = 0.00441 \mu\text{m}^2$, $l = 1/(\sigma_t \Phi) = 0.0951 \text{ mm}$, the mean value of the cosine of the scattering angle is $\langle \cos\theta \rangle = 0.669$ leading to a Boltzmann transport mean free path $l^*/l = 1/(1 - \langle \cos\theta \rangle) = 3.02$. These values correspond to the experimental situation.²¹

a. Reflection

In reflection we have compared the numerical simulation result with the experimental one in figure 1. We have also considered a slab with thickness $L/l^* = 15$ and three regimes of scattering: point-like scatterers (Rayleigh regime with $ka = 0.232$), intermediate regime ($ka = 2.32$) and large spheres ($ka = 23.2$). In all regimes we have considered incident light polarized circularly and linearly along the x -direction. For both cases, we have obtained the enhancement factor for the same polarization channel ($++$ or xx) and for the opposite one ($+ -$ or xy). We have observed that the enhancement factor presents some general features (Fig. 2):

1. The enhancement factor in the $+-$ channel is independent of B in all cases. As we have seen in section I.4, this behavior was described as the invariance of the opposite helicity channel.

2. For small values of VB and for the same polarization channel, either $++$ or xx , the enhancement factor decays exponentially with the same attenuation constant. This attenuation depends on the size of the scatterers. This behavior has been observed experimentally.

3. For large values of VB , the enhancement factor is not 1: their asymptotic values are different. This convergence to non-trivial asymptotic values has also been observed experimentally. The asymptotic values as a function of the size parameter α are represented in table 2.

Let us start the discussion for the small values of VB . The exponential decays observed in figures 2.a, 2.b and 2.c can be understood qualitatively in the framework the Rayleigh model. For large values of VB , we see from table 2 that the asymptotic values of the enhancement factor in the xx , xy and $++$ polarization channels increase as the size parameter ($\alpha = ka$) increases. On the other hand, the asymptotic values of the enhancement factor of the $+-$ tends to decrease as the parameter α increases. We see that these values of the enhancement factor *cannot* be explained by the proportion of single, double or triple scatterings. To understand qualitatively these results we have to take into account the multiple scattering of light through the path length distribution.

Table 2. Asymptotic values of the enhanced factor for strong magnetic fields.

α	$\langle \cos\theta \rangle$	Single Scattering	Double Scattering	Triple Scattering	xx	xy	$++$	$+-$
0.232	0.008	18.4 %	10.3 %	7.36 %	$\cong 1.15$	$\cong 1.15$	$\cong 1.05$	$\cong 1.20$
2.32	0.689	1.31 %	2.48 %	3.22 %	$\cong 1.25$	$\cong 1.25$	$\cong 1.35$	$\cong 1.10$
23.2	0.931	0.107 %	0.123 %	0.134 %	$\cong 1.40$	$\cong 1.40$	$\cong 1.60$	$\cong 1.05$

The path length distribution in reflection is roughly described by a power-law ($P(s) \propto s^{-3/2}$) which is not characterized by any length. It allows very long sequences which are not very numerous. These sequences dephases the direct and reverse sequences through the azimuthal randomization (ϕ -randomization) and backwards scatterings. The " ϕ -

randomization" affects drastically the linear polarization states while the backwards scattering change the helicity of the wave. So that these sequences push down the enhancement factor to one. On the other hand, this distribution allows very many short paths, typically of the order of $l^* = \frac{l}{1 - \langle \cos \theta \rangle}$. If the scatterings are strongly peaked forwards, the backward scattering is a rare evenement. These short sequences do not dephase the direct and reversed sequence very much, and they tend to preserve the helicity of the waves.

Let us consider now very anisotropic scatterings where $\alpha = 23.2$. The scattering amplitudes are strongly peaked forwards. Because of the azimuthal randomization, any incident linear polarization state will be scattered into other linear polarization states. So the x direction has roughly the same probability to be visited as the y direction. This is the reason why the enhancement factor of the xx and xy channel have the same asymptotic values. On the other hand, the backwards scatterings are very rare, and the helicity channel is preserved. This is why the enhancement factor of the $++$ channel is larger than the $+-$, which is very weak, *i.e.*, close to one.

For $\alpha = 2.32$, the scatterings are still anisotropic, but the scattering amplitudes are not so forward peaked as in the previous case. Backward scatterings occur more often so that they tend to increase the enhancement factor of the $+-$ channel and to lower down the factor of the $++$ channel, which is nevertheless larger than the $+-$ one.

For the Rayleigh scattering $\alpha = 0.232$, the scatterings are isotropic, there are roughly 50 % of backward scatterings and among them many single backward scattering (about 20 %), so that the enhancement factor of the $+-$ channel is greater than the factor of the $++$ channel.

b. Transmission

For transmission, the intensity correlation functions for incident circular and linear polarization along the x -direction are shown in figure 3. In the diffusion limit (Fig. 3) $L/l^* = 7, 8, 9, 10$ and 11 , VBL is a good reduced variable, according to the Rayleigh theory for small values of VBL . For larger values of VBL , $G_{xx}^{(2)}(B)$ cannot be written only in terms of VBL . This is apparent from figure 3 where oscillations are observable above the noise. For the intermediate regime, we have plotted $G_{xx}^{(2)}$ as a function of VB for $L/l^* = 1, 2, 3, 4, 5$ and 10 for the linear and circular incidence. It is striking that for small values of L/l^* the correlation function displays very net oscillations (Figs. 4a and 4.b) which do not exist in a homogeneous slab (no scatterings) where $G_{xx}^{(2)} = 1$. Still more striking are the amplitudes of these oscillations, which are no more damped for larger VB (see curves for $L/l^* = 3$ and 4).

For thinner slabs, because of anisotropy, the scattering paths are almost straight lines. This is relevant to the Faraday effect in a chain, where the photon executes a one-dimensional random walk. In this model, the polarization states rotate in the same sense between the successive scatterings, which can be either forwards or backwards, leading to an accumulation of the rotation angle proportional to the total length of the path. This simple idea gives for an incident linear polarization (Eq. II.7.a) $G^{(2)}_{xx}(B) = \langle \cos(VBs) \rangle_s^2 / \langle \cos^2(VBs) \rangle_s$ and (II.7.b) $G^{(2)}_{xx}(B) = \langle \cos(VBs) \rangle_s^2 + \langle \sin^2(VBs) \rangle_s$ for incident circular polarization. The average is performed over the path length distribution $P(s)$. In transmission, $P(s)$ is characterized by a dispersion, which can be pictured as a window along the s axis. Hence, for narrow distributions corresponding to thin slabs, oscillations arise from the average values of $\cos(VBs)$ and $\cos^2(VBs)$ inside this window. To be more explicit, in transmission the Laplace transform of the path length distribution gives: $\int_L^\infty ds P(s) \exp(-VBs) \equiv \frac{VBL}{sh(VBL)}$ where the approximation holds for $L^* \gg 1$, so that: $\langle \cos(VBs) \rangle_s = j_0(VBL)$, $\langle \cos^2(VBs) \rangle_s = \frac{1}{2} (1 + j_0(2VBL))$ and $\langle \sin^2(VBs) \rangle_s = \frac{1}{2} (1 - j_0(2VBL))$, where $j_0(VBL)$ is the spherical Bessel function. The intensity correlation function for the incident linear polarization is then given by:

$$G^{(2)}_{xx}(B) = \frac{2 j_0^2(VBL)}{1 + j_0(2VBL)}, \quad (IV.1)$$

which exhibits the oscillations as we see in figure 4.b. On the other hand, for this one-dimensional model the intensity correlation function for the incident circular polarization is always unity.

To understand the oscillations for the incident circular polarization, we remind that the paths are not strictly speaking straight lines, so that the incident circular state becomes an elliptical one, this ellipticity is amplified by the multiple scattering. The effect of the magnetic field is to turn these ellipses and the correlation function decays and for large VB it presents oscillations which are not so net as for the linear case.

The oscillations for the linear incident polarization for small values of L^* can also be justified by the Rayleigh model in three dimensions (Eq. III.16.e).

V. DISCUSSION AND CONCLUSION

Several important properties of the multiple scattering of waves can be understood in the simplified frame of the scalar theory. The properties such as the transmission or reflection coefficient or the intensity time correlation function, due to the motion of the scatterers, are directly connected to the distribution of the diffusion paths in a given sample. The intensity enhancement of the backscattering cone is due to the existence of reverse sequences which interfere with the direct sequence. Hence, for a scalar waves, where only the phase difference between the direct and reverse sequence is taken into account, it is correct to claim these sequences are coupled by a time-reversal operation. This basic interference is very robust: neither the absorption nor the confinement in finite slabs can affect the value 2 of the enhancement factor but they round off the line shape of the peak.

When the vectorial nature of light is taken into account, the situation is more complex. If the multiple scattered light is detected in the same polarization channel as the incident one (VV, ++ or -- configurations) the direct and reverse sequence interfere constructively giving the factor 2 of the cone. On the other hand, for the opposite polarization channel (VH or + -), the enhancement factor is smaller than 2 since the final polarization states are different, breaking the reciprocity between the direct and reverse sequence. These properties are expressed mathematically by a simple transposition operation of the effective Jones matrix (which describes the multiple scattering process) written in the circular basis or a antitransposition for the Jones matrix written in the linear basis.

The Faraday effect is known to break the time-reversal symmetry for a single scattering. For a scattering sequence, it introduces the rotation of polarization between successive scatterings. For a given segment, the Faraday angle has opposite sign between the direct and reverse sequence, but this rotations happen in different local frames which are conjugated by an improper rotation operation. Hence the time-reversal symmetry is always broken by the Faraday effect, but it is the reciprocity between the direct and reverse sequence that alter the enhancement factor of the scattering cone. For an optically two-dimensional medium and circular scatterers, the Jones matrices of each single scattering is diagonal: hence the product of these matrices is diagonal. We then have the enhancement of the same polarization channel and the intensity in the opposite channel is null since these components are not connected by the diagonal matrix. The presence of the magnetic field introduces the rotation matrices between successive scatterings: then the effective Jones matrix is no longer diagonal and a close analogy with the problem in three dimension without magnetic field can be made by replacing α by $-\phi$. Like in the three-dimensional problem with $B = 0$, the backscattering cone in two dimensions, for the same polarization channel, is not altered by the magnetic field, but the opposite polarization channel is affected.

Although the random helicity model offers a simple frame for the analysis of the main properties of the multiple scattering of light, some important features are not well founded in this model and call for a detailed analysis. This deeper analysis is the principal motivation of this work. The first objection against this model is certainly the fact that the randomness of the polarization state is not justified as an independent random variable of the wavevector. Actually, the wavevectors are the basic and unique random variables of the multiple scattering problem. This remark is crucial in the one-dimensional problem. In this model, a complete correlation occurs between the polarization rotation and the length of the diffusion paths while the wavevectors are totally randomized by the one-dimensional random walk. An analytical calculation of this situation shows that the correlations are damped only by the dispersion of the path length distribution rather than by any randomness of the polarization states. The second objection to the stochastic model is that the problem of the successive rotations of the polarization vectors by the Faraday effect *must* be handled by a matrix formalism. The n -th order multiple scattering is mapped mathematically into a matrix power problem. Its solution involves the research of the largest eigenvalue. The damping of the correlation function originates from the transition between the polarization states coupled to the scattering wavevector rather than independent random transitions of the polarization. Indeed there is no scalar analogy of the problem of the vector rotation in three dimensions.

By a recurrence method, we have succeeded to obtain the characteristic attenuation factor in the scattering number representation for Rayleigh scatterers. A simple matrix representation can be settled in the three dimensional laboratory frame. Another remarkable result concerns the oscillatory correlation as a function of the magnetic field. These oscillations are reminiscent of the one-dimensional case. This one-dimensional feature could be observed in the intermediate regime, between the single scattering and the diffusion regime. Beyond the analytical calculation of the one dimensional system and the Rayleigh scattering in three dimensions, numerical simulations are necessary to describe the multiple Mie scattering. Qualitatively, the main results are confirmed in this more general anisotropic scattering regime: exponential (gaussian) damping of the correlation function in transmission for the diffusive regime as well as oscillatory behavior for larger magnetic fields and moderate number of scatterings. For reflection the damping of the backscattering cone enhancement factor is well accounted and compared with the experiments. For stronger magnetic fields nontrivial values are observed for this factor. These values correspond to the contribution of the short paths or low order of scatterings hence the correlation between the direct and reversed sequence is maintained even in high magnetic fields.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank F. Erbacher, R. Lenke and G. Maret for very stimulating discussions. One of us (A.S.M.) also wish to thank CAPES for financial support.

REFERENCES

1. "Classical Wave Localization," ed. P. Sheng, World Scientific, Singapore (1990).
2. "Mesoscopic Phenomena in Solids," ed. B.L. Altshuler, P.A. Lee and R.A. Webb, North Holland, Amsterdam (1991).
3. E. Akkermans, P.E. Wolf and R. Maynard, Phys. Rev. Lett. 56, 1471 (1986).
4. Y. Kuga and A. Ishimaru, J. Opt. Soc. Am. A8, 831 (1984).
5. M.P. van Albada and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. 55, 2692 (1985).
6. P.E. Wolf and G. Maret, Phys. Rev. Lett. 55, 2696 (1985).
7. H.C. van de Hulst, "Light Scattering by Small Particles," Dover Publication, New York (1981).
8. A.S. Martinez and R. Maynard, in: "Localization and Propagation of Waves in Random and Periodic Structures," ed. C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Corporation, New York (to appear).
9. A.A. Golubenstein, JETP 59, 26 (1984).
10. F.C. MacKintosh and S. John, Phys. Rev. B37, 1884 (1988).
11. F.A. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, Europhys. Lett. 21, 551 (1993).
12. P.S. Theocaris and E.E. Gdoutos, "Matrix Theory of Photoelasticity," Springer-Verlag, New York (1979).
13. A.S. Martinez and R. Maynard, in: "Soft Order in Physical Systems," ed: R. Bruinsma and Y. Rabin, Plenum Publishing Corporation, New York (to appear).
14. A. Ishimaru, "Wave Propagation and Scattering in Random Media," Academic Press, New York (1978).
15. Z. Sekera, J. Opt. Soc. Am. 56, 1732 (1966).
16. R. L.-T. Cheung and A. Ishimaru, Appl. Opt. 21, 3792 (1982).
17. E. Akkermans, P.E. Wolf, R. Maynard and G. Maret, J. Phys. (Paris) 49, 77 (1988).
18. C. Prada, F. Wu and M. Fink, J. Acoust. Soc. Am. 90, 1119 (1991).
19. F.A. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, in: "Localization and Propagation of Waves in Random and Periodic Structures," ed. C.M. Soukoulis, Plenum Publishing Corporation, New York (to appear).
20. A.S. Martinez and R. Maynard, "Polarizing Behavior of the Two-Dimensional Multiple Scattering of Light," (to be submitted).
21. R. Lenke and G. Maret, "Affecting Weak Light Localization by Strong Magnetic Fields," pre-print
22. G. Grehan and G. Gouesbet, Appl. Opt. 18, 3489 (1979).
23. W.J. Lentz, Appl. Opt. 15, 668 (1976).
24. E.A. Bucher, Appl. Opt. 12, 2391 (1973).
25. K.E. Kunkel and J.A. Weinman, J. Atmos. Sci. 33, 1772 (1976).
26. P. Brusciaglioni and G. Zaccanti, in: "Topical Meeting on Atmospheric, Volume and Surface Scattering," Florence (1991).

FIGURES CAPTIONS

Figure 1. Comparison between the calculated (numerical simulation) enhancement factor in the ++ polarization channel and xx channel and the ++ channel experiment (The xperimental points have been obtained by Lenke and Maret). The parameters are $\alpha = 2.32$, $\frac{n_s}{n_m} = 0.858$ and $L/l^* = 15$ (simulation).

Figure 2. The enhancement factor obtained by the Monte Carlo simulation in the ++, +-, XX and XY polarization channel as a function of VB for a slab of thickness $L/l^* = 15$. The considered regimes are: a) Rayleigh ($\alpha = 0.232$), b) Mie ($\alpha = 2.32$), and c) large spheres ($\alpha = 23.2$). The refraction indices ratio is $\frac{n_s}{n_m} = 0.858$. Insets: the parallel and perpendicular scattering amplitudes as a function of the scattering angle.

Figure 3. Intensity correlation for the Mie scatterers for incident linear and circular polarized light as a function of VBL/l^* , i.e. VBL since l^* is a constant in the diffusion regime. The refraction indices ratio is $\frac{n_s}{n_m} = 0.858$, and the size parameter is ($\alpha = 2.32$). The slab thicknesses considered are: $L / l^* = 7, 8, 9, 10$ and 11

Figure 4. Intensity correlation as function of VB for incident a) circular and b) linear polarized light for slabs of thickness: $L / l^* = 1, 2, 3, 4, 5$ and 10 . The other parameters are the same as figure 3. The lines are only a guide to the eyes.

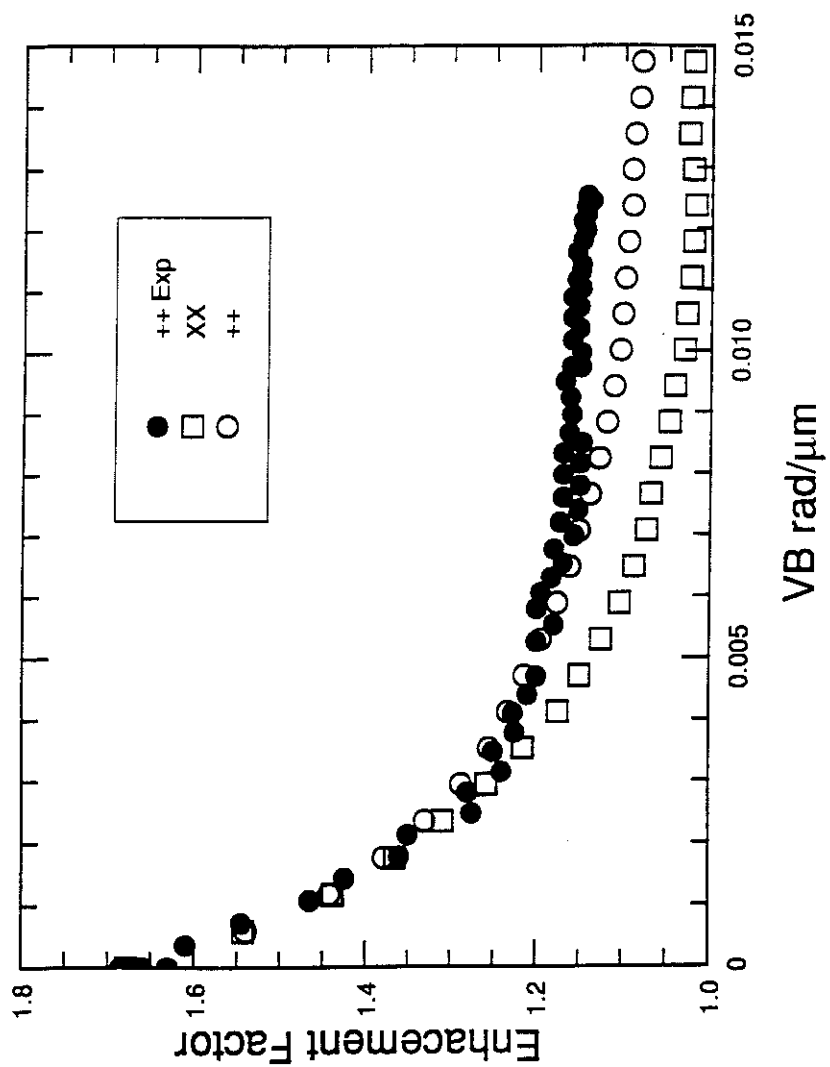


Fig. 1

Martinez and Maynard

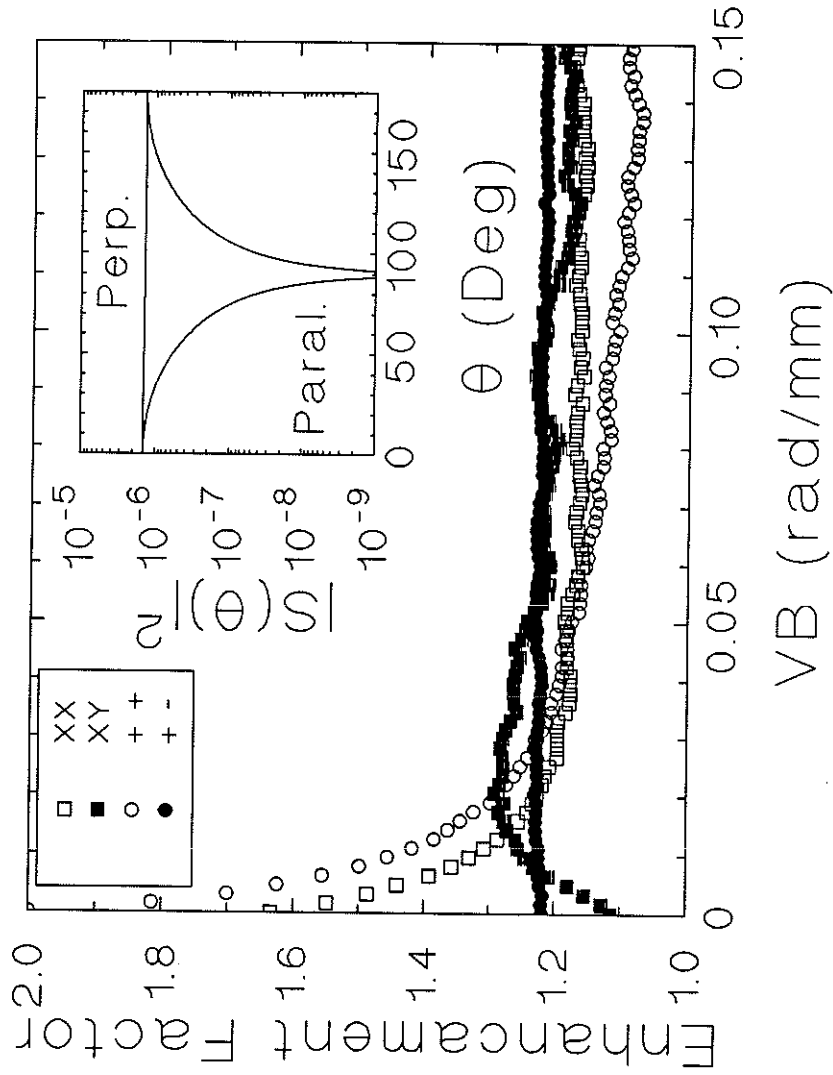


Fig. 2.a

Martinez and Maynard

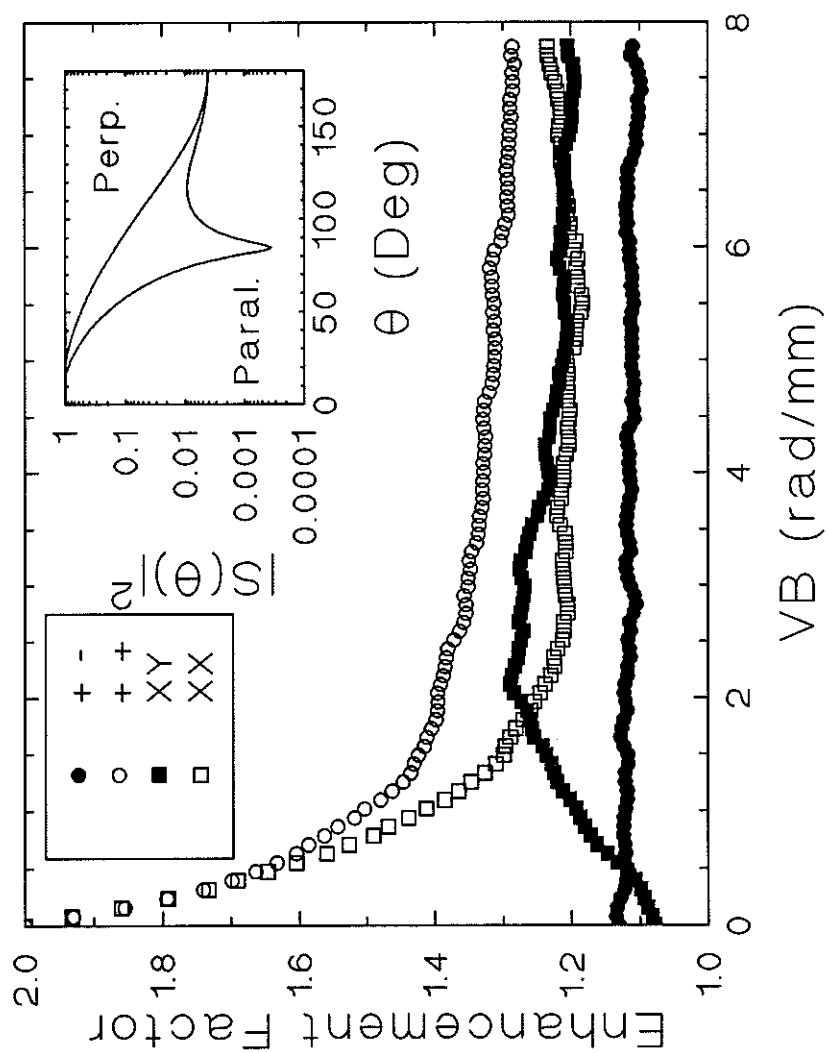


Fig. 2.b

Martinez and Maynard

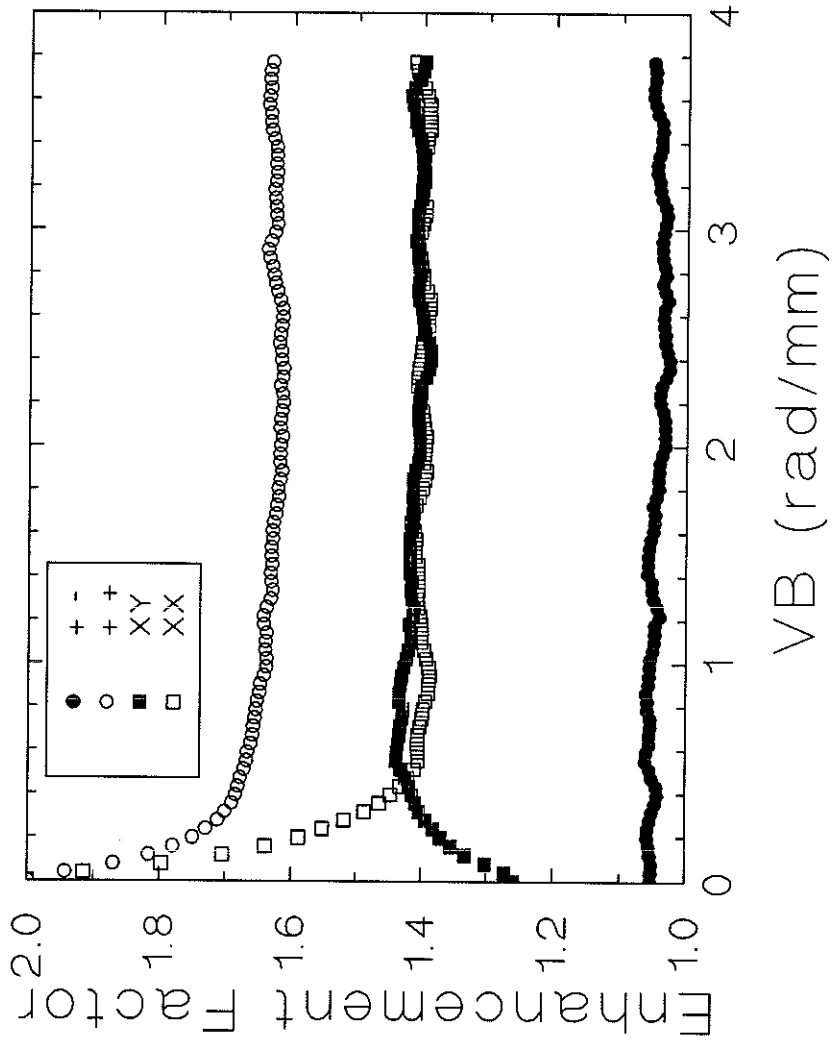


Fig. 2.c

Martinez and Maynard

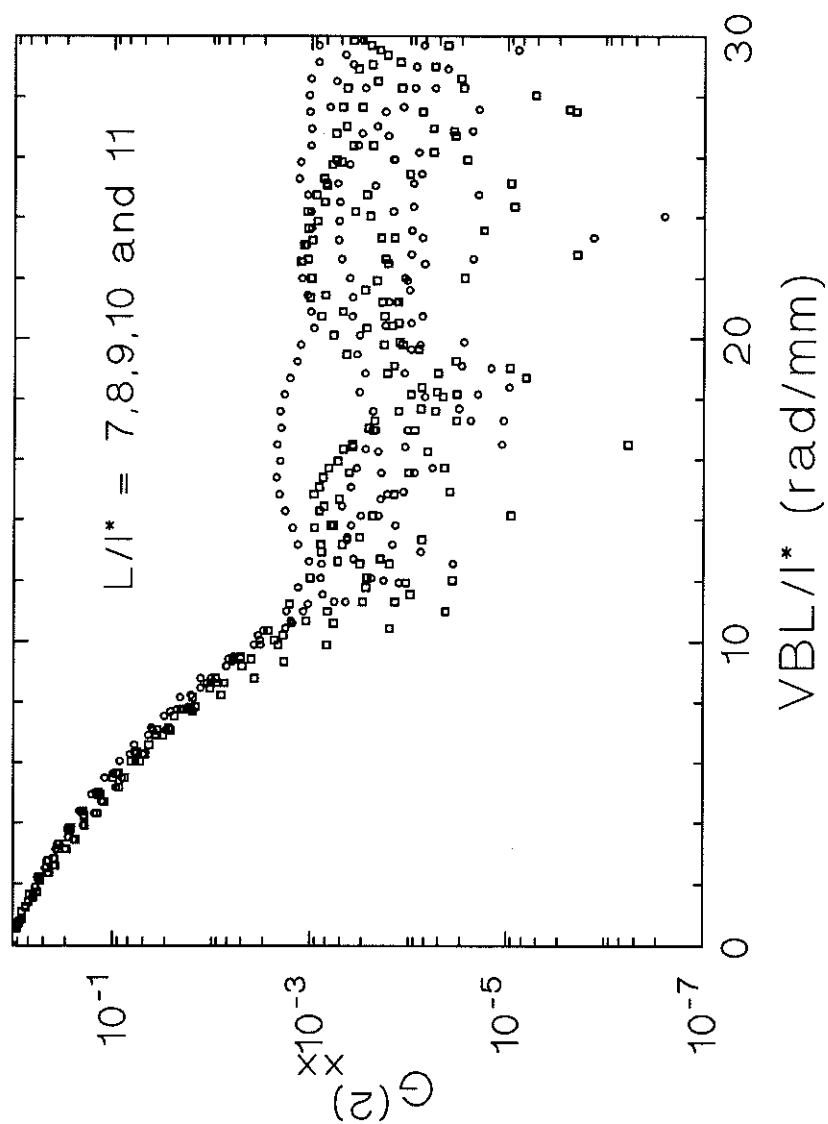


Fig. 3

Martinez and Maynard

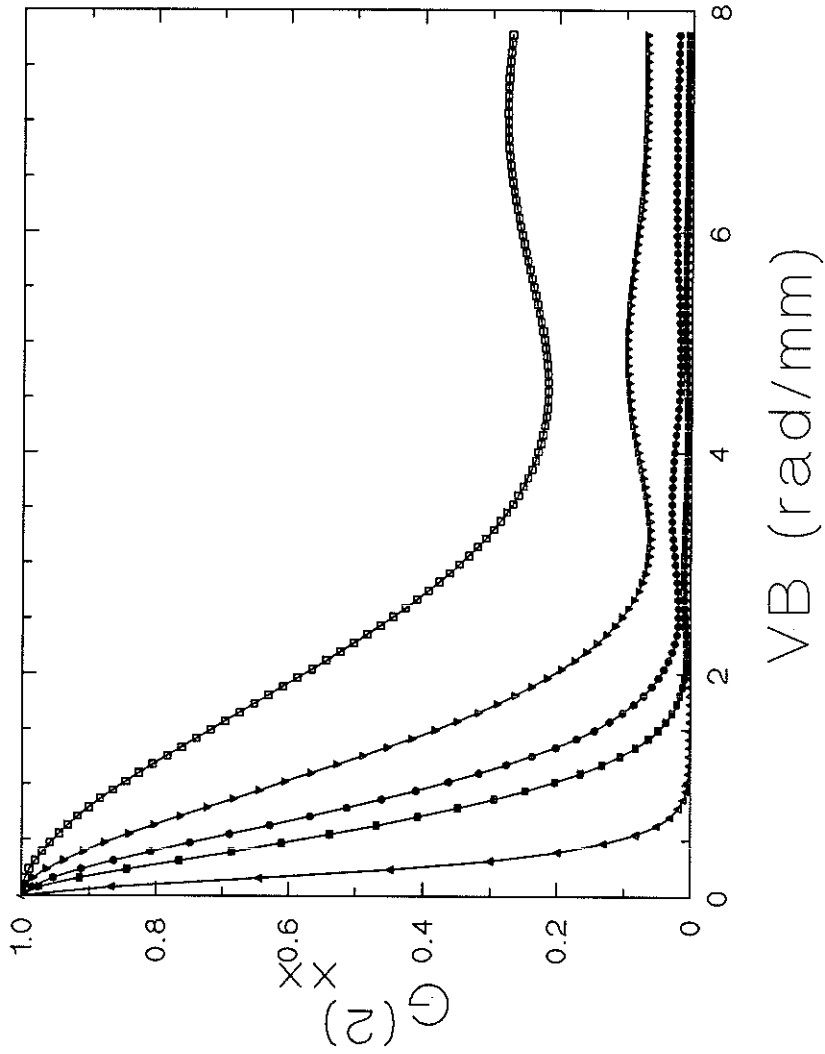


Fig. 4.a

Martinez and Maynard

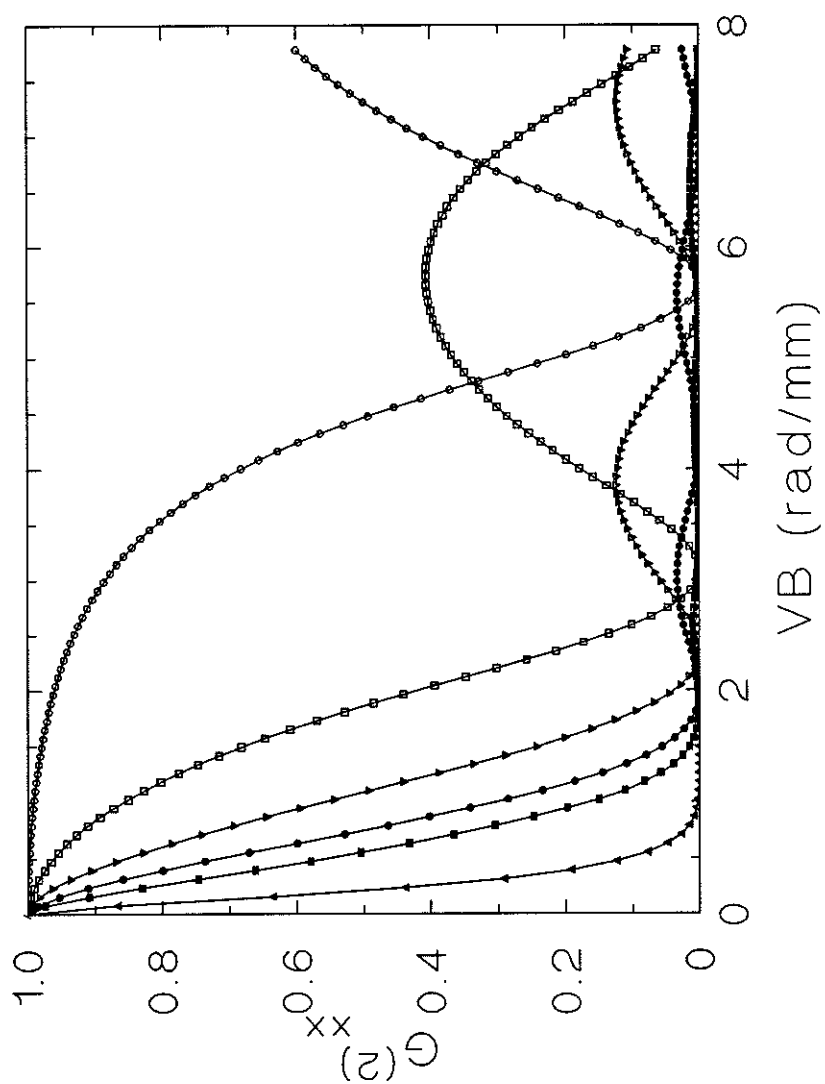


Fig. 4.b

Martinez and Maynard

CONCLUSION

Notre étude de la diffusion multiple de la lumière a débuté avec l'élaboration d'un code de simulation numérique du type Monte Carlo. L'idée centrale était de construire un code traduisant des éléments réalistes de calcul, tels que la diffusion de Mie des ondes vectorielles par des cibles sphériques. Nous sommes donc allés au-delà des deux simplifications qui sont souvent employées lors d'un calcul analytique: l'approximation de champ scalaire et celle de diffusion isotrope. Il s'avère que l'aspect vectoriel du champ électromagnétique rend le problème de la diffusion multiple plus complexe mais aussi plus riche. Dans l'analyse des résultats numériques, les longueurs caractéristiques obtenues dans le cadre d'une théorie scalaire ne suffisent pas pour décrire les effets observés pour les ondes vectorielles.

Il est important de situer notre simulation de Monte Carlo par rapport à celles faites précédemment ainsi qu'avec la théorie du transfert radiatif. Notre simulation diffère des précédentes parce qu'elle décrit la propagation des champs et non des intensités. Ceci nous permet de contrôler les phases des ondes. Cette méthode est importante lorsque l'on veut recomposer les champs pour étudier les distributions des intensités ou des états de polarisation. Le calcul des intensités moyennes est fait à partir de la matrice de Mueller, qui tient compte des symétries du problème. La comparaison entre la méthode de Monte Carlo et l'équation de Boltzmann montre que ces deux méthodes ne sont pas équivalentes. En fait la théorie de transport peut être considérée comme une approximation de type "champ moyen" de la méthode de Monte Carlo. Cette distinction est capitale puisque la méthode de Monte Carlo nous permet de tenir compte très facilement des effets de bord. Ces effets sont particulièrement importants en réflexion, où le rôle joué par les chemins courts est prédominant.

En prenant en compte l'aspect vectoriel du champ électromagnétique nous avons pu traiter les rotations Faraday en diffusion multiple dans un matériau optiquement magnéto-actif. Nous avons eu le souci constant de comparer nos résultats numériques aux mesures. La simulation numérique s'est révélée un bon outil pour vérifier certaines hypothèses ou pour observer des symétries pas toujours évidentes a priori.

Dans le premier chapitre, nous avons considéré la propagation de la lumière dans un milieu diffusif. Nous nous sommes placés dans le cas de diffuseurs sphériques et d'ondes électromagnétiques planes en utilisant la diffusion de Mie. La modélisation consiste à supposer que chaque onde partielle subit des séquences de diffusion multiple. Les champs

sont recomposés et nous obtenons ainsi le champ total diffusé par l'échantillon. En réflexion, nous avons montré que le champ électrique de la séquence inverse, séquence qui donne lieu au cône de rétrodiffusion, peut être obtenu à partir de la séquence directe par une opération mathématique simple d'"antitransposition" de la matrice de Jones effective. C'est une propriété de la séquence inverse. Nous avons écrit un code de simulation de Monte Carlo à partir de ce résultat qui est fondamentalement différent d'une modélisation partant de l'équation du transfert radiatif. En utilisant le théorème de la limite centrale, nous avons obtenu analytiquement les distributions des intensités de Stokes et des états de polarisation. Il s'avère que le milieu désordonné à trois dimensions est parfaitement caractérisé par trois paramètres: l'intensité totale, le degré de polarisation de la lumière incidente polarisée linéairement ou circulairement. Notre approche pour décrire le processus de dépolarisation de la lumière incidente par le milieu désordonné généralise celle de Cohen *et al.*, puisque nous considérons la polarisation incidente circulaire en plus de la linéaire. Nous avons représenté les mécanismes de dépolarisation dans la représentation de Poincaré qui fournit une image géométrique des différents mécanismes de dépolarisation. Nous avons étudié analytiquement le problème de la diffusion de la lumière par un milieu désordonné à deux dimensions. Nous avons obtenu les intensités de Stokes pour ce milieu à partir d'un calcul complet de tous les éléments de la matrice de Mueller. Notre approche permet d'expliquer, d'un point de vue microscopique, les expériences de Freund.

Dans le deuxième chapitre, nous avons comparé les approches de Boltzmann et de la marche au hasard pour le problème de transport, plus spécifiquement pour la diffusion multiple de la lumière. Nous avons montré que l'équation du transfert radiatif est une approximation du type "champ moyen" de la marche au hasard. Nous obtenons ainsi une constante de diffusion qui est plus petite que celle de Boltzmann et qui varie différemment avec l'anisotropie. Pour justifier nos simulations de Monte Carlo, où les effets de bords sont bien pris en compte, nous avons étudié les distributions des séquences dans une tranche. Nous pouvons classer les différentes modélisations théoriques du problème de la diffusion multiple. *i)* Le modèle le plus simple que l'on puisse considérer est l'approximation de diffusion. *ii)* Un traitement plus réaliste consiste à considérer l'équation de Boltzmann. *iii)* Une amélioration significative consiste à utiliser le modèle de la marche aléatoire. *iv)* Même dans le cadre de la marche aléatoire, il est très difficile de tenir compte correctement des effets de bords dans le cas de trois dimensions. *v)* Un traitement de Monte Carlo se montre alors utile. Enfin, un modèle plus élaboré de marche au hasard pourrait être envisagé, où les croisements entre chemins de diffusion qui jouent un rôle important dans les corrélations à longue portée seraient pris en compte.

Dans le troisième chapitre, nous avons étudié numériquement les degrés de polarisation en utilisant l'expression exacte des amplitudes de diffusion de Mie et un code de Monte Carlo pour engendrer les séquences de diffusion. Dans le régime intermédiaire, entre

la diffusion simple et le régime diffusif où le degré de polarisation est non nul, le degré de polarisation pour les grandes sphères est très différent de celui des diffuseurs ponctuels (Rayleigh). Nous avons obtenu deux résultats originaux avec la simulation numérique pour les gros diffuseurs:

i) Le taux de dépolarisation est différent pour des lumières incidentes polarisées circulairement ou linéairement. Le régime "gros diffuseurs" est différent de celui de Rayleigh parce que l'hélicité de la polarisation circulaire nécessite davantage de collisions pour devenir complètement aléatoire. Ce résultat diffère de celui obtenu par les analyses précédentes.

ii) Le mécanisme de dépolarisation est réalisé par un remplissage continu et progressif de la sphère de Poincaré quant on fait varier le degré de polarisation. Contrairement à ce qui a été décrit précédemment, les états de polarisation elliptique sont les états de polarisation les plus fréquents au cours de la dépolarisation. Le modèle proposé de saut d'hélicité est trop simplifié.

Notre étude montre que les régimes de Mie et de Rayleigh appartiennent à des "classes d'universalité" différentes. Si le processus de dépolarisation pour les diffuseurs de Rayleigh peut être décrit grossièrement par un saut d'hélicité (modèle d'Ising) ceci n'est certainement pas vrai pour les diffuseurs de Mie, où le changement d'hélicité est un processus continu (modèle de Heisenberg).

Dans le quatrième chapitre nous considérons l'effet Faraday sur la diffusion multiple de la lumière. Malgré le fait que plusieurs propriétés puissent être comprises dans le cadre d'une théorie scalaire, une analyse plus approfondie, prenant en compte la nature vectorielle du champ électromagnétique, est nécessaire pour comprendre des effets associés à la polarisation de la lumière. Si la lumière est détectée en réflexion dans le même canal de polarisation que le canal incident, la séquence de diffusion directe interfère constructivement avec la séquence inverse, qui donne le facteur 2 du cône de rétrodiffusion. Par contre, si la lumière est détectée dans le canal de polarisation opposée, la réciprocité entre la séquence directe et inverse est brisée et le facteur de renforcement est plus petit que 2. Ces propriétés sont exprimées mathématiquement par la transposition de la matrice effective de Jones (qui représente la diffusion multiple) dans la base circulaire ou l'antitransposition de cette matrice écrite dans la base "rectiligne".

L'effet Faraday brise la symétrie par renversement du temps pour une diffusion simple. Pour une séquence de diffusion, il introduit des rotations des états de polarisation entre les collisions successives. Pour un segment donnée, l'angle de rotation de Faraday a des

signes opposés pour la séquence directe et la séquence inverse, mais ces rotations tournent dans des repères différents, qui sont conjugués par une rotation impropre. Malgré le fait que la symétrie par renversement du temps est brisée par l'effet Faraday, c'est seulement la réciprocity entre le chemin direct et le chemin inverse qui peut altérer le facteur de renforcement du cône de rétrodiffusion. Pour un milieu à deux dimensions, la matrice de Jones est diagonale pour la diffusion simple et la diffusion multiple. Le champ magnétique est représenté par des matrices de rotation entre collisions successives, de sorte que la matrice effective de Jones n'est plus diagonale. Une analogie peut être faite entre la structure de cette séquence et celle d'un système à trois dimensions sans champ magnétique, où l'angle azimutal ϕ joue le rôle de l'angle de rotation Faraday. Dans le cas à deux dimensions (comme dans le problème à trois dimensions sans champ), les séquences directes et inverses interfèrent constructivement dans le même canal de polarisation, même en présence de champ magnétique. Par contre le canal de polarisation opposé est affecté par le champ magnétique.

Même si le modèle d'hélicité aléatoire offre une image simple pour certaines propriétés de la diffusion multiple de la lumière, d'autres ne sont pas décrites par ce modèle et méritent une étude plus détaillée. Cette analyse plus approfondie est la motivation principale de notre travail.

La première objection contre le modèle d'hélicité aléatoire est certainement le fait que l'on ne peut pas considérer la polarisation comme une variable aléatoire, qui serait en outre indépendante du vecteur d'onde. Dans la diffusion multiple, seuls les vecteurs d'onde sont les variables aléatoires. Cette remarque est fondamentale dans le problème à une dimension. Dans ce cas, une corrélation complète s'établit entre la rotation de polarisation et la longueur du chemin de diffusion tandis que le vecteur d'onde est totalement aléatoire en raison de la marche aléatoire à une dimension. Un calcul analytique montre que les corrélations sont atténuées uniquement à cause de la dispersion de la distribution des longueurs de chemins et non par la "randomisation" des états de polarisation.

La seconde objection contre le modèle d'hélicité aléatoire porte sur le fait que les rotations Faraday et les diffusions doivent être décrites par une formulation matricielle. Ainsi la diffusion multiple d'ordre n est donnée mathématiquement par une matrice de Jones à puissance n . La solution du problème est donnée par la recherche de la valeur propre la plus grande. Alors la décroissance exponentielle de la fonction de corrélation a ses origines dans la transition entre états de polarisation différents: il n'existe pas d'analogie scalaire directe pour le problème des rotations des vecteurs à trois dimensions.

Par la méthode de récurrence, nous avons réussi à obtenir le facteur d'atténuation caractéristique pour les diffuseurs de Rayleigh en fonction du nombre de collisions. Une représentation matricielle simple en peut être établie dans le référentiel absolu à trois dimensions. Un résultat remarquable est l'existence des oscillations de la corrélation des

intensités en fonction du champ magnétique. Ces oscillations sont dues à la corrélation polarisation-chemin et le résultat est analogue à ce qui se passe dans le cas à une dimension. Ce comportement unidimensionnel peut être observé dans le régime intermédiaire, entre la diffusion simple et le régime de diffusion.

Le calcul analytique est possible à une dimension (Mie) et pour les diffuseurs de Rayleigh à trois dimensions. Dans les autres cas, des simulations numériques sont nécessaires pour décrire la diffusion multiple de Mie. Qualitativement, les résultats principaux ont été observés dans le régime le plus général de diffusion anisotrope: la décroissance exponentielle (gaussienne) de la fonction de corrélation en transmission dans le régime de diffusion aussi bien que le comportement oscillatoire des champs magnétiques dans le régime intermédiaire. Pour la réflexion, l'atténuation du facteur de renforcement a été obtenue et comparée avec les résultats expérimentaux. Pour les valeurs plus fortes du champ magnétique, le facteur de renforcement converge vers des valeurs non-triviales, qui correspondent à la contribution de chemins de diffusion courts, ce qui maintient une corrélation entre les chemins direct et inverse même sous fort champ magnétique.

RESUME

Le problème de la propagation des ondes en milieu aléatoire est posé par de nombreuses expériences telles que la diffusion de la lumière par des milieux turbides, des ondes sonores dans les substances hétérogènes, etc. L'analyse traditionnelle suppose que les ondes sont des champs scalaires et que les diffuseurs sont ponctuels.

A la différence de la plupart des théories antérieures, nous avons voulu étudier des situations plus réalistes. La nature vectorielle du champ électromagnétique et l'anisotropie de diffusion sont explicitement prises en compte. Pour réaliser cet objectif, nous avons écrit et mis au point un code de simulation numérique utilisant la méthode de Monte Carlo. Les séquences de diffusion sont engendrées à partir de la loi de phase de Mie.

Nous nous sommes intéressés tout d'abord aux mécanismes de dépolarisation de la lumière en régime de diffusion multiple. Des lois de distribution des états de polarisation ont été établies analytiquement en fonction du degré de polarisation. Ce paramètre dépend de l'anisotropie de la diffusion. Pour les régimes de diffusion de Rayleigh (ponctuelle) et de Mie, nous avons obtenu des variations différentes des degrés de polarisation pour la lumière incidente polarisée linéairement et circulairement. Dans le cas de Mie, ces résultats ne peuvent être obtenus que grâce à la simulation de Monte Carlo.

Une discussion approfondie de la pertinence des différentes approches du problème de la diffusion multiple - équation de diffusion, équation de Boltzmann, marche au hasard et méthode de Monte Carlo - est développée. Nous avons trouvé que l'approche de Boltzmann peut être comprise comme une approximation de champ moyen du problème de la marche au hasard. En fait, la constante de diffusion obtenue pour la marche aléatoire est plus petite que celle obtenue par l'approximation de diffusion.

Le gros succès de la diffusion multiple a été l'observation de la localisation faible de la lumière à travers le cône de rétrodiffusion. Les interférences de phase qui donnent lieu au cône peuvent être contrôlées par l'application d'un champ magnétique. Ce champ fait tourner les états de polarisation entre deux collisions successives dans un matériau optiquement magnéto-actif. C'est l'effet Faraday qui brise la symétrie par renversement du temps et qui peut atténuer le cône de rétrodiffusion. Nous étudions analytiquement et numériquement cet effet en diffusion multiple.

La prise en compte de la nature vectorielle des ondes lumineuses en diffusion multiple conduit à définir de nouvelles longueurs caractéristiques qui enrichissent le concept de libre parcours moyen de transport introduit dans le contexte de la diffusion multiple scalaire.

Mots clés: Diffusion Multiple de la Lumière, Polarisation de la Lumière, Anisotropie de Diffusion, Diffusion de Mie, Simulation de Monte Carlo, Effet Faraday, Equation de Boltzmann, Marche Aléatoire, Localisation.

