



**HAL**  
open science

# Développement d'un diffusiomètre supercontinuum pour la caractérisation spectro-polarimétrique des aérosols : application au problème de l'inversion des données lidar

Killian Aleau

## ► To cite this version:

Killian Aleau. Développement d'un diffusiomètre supercontinuum pour la caractérisation spectro-polarimétrique des aérosols : application au problème de l'inversion des données lidar. Physique [physics]. ISAE - Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace, 2024. Français. NNT : 2024ESAE0022 . tel-04702590

**HAL Id: tel-04702590**

**<https://hal.science/tel-04702590v1>**

Submitted on 19 Sep 2024

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

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

# Doctorat de l'Université de Toulouse

Délivré par l'ISAE-SUPAERO

---

Développement d'un diffusiomètre supercontinuum  
pour la caractérisation spectro-polarimétrique des  
aérosols : application au problème de l'inversion des  
données lidar

---

Thèse présentée et soutenue, le 27 mai 2024 par

**Killian ALEAU**

**École doctorale**

SDU2E - Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espaces

**Spécialité**

Océan, atmosphère, climat

**Unité de recherche**

ISAE-ONERA PSI Physique Spatiale et Instrumentation

**Thèse dirigée par**

Romain CEOLATO

**Composition du jury**

M. Jérôme YON, Président, CORIA, INSA ROUEN

M. Romain CEOLATO, Directeur de thèse, ONERA

M. Jorge GARCIA-SUCERQUIA, Rapporteur, Universidad Nacional de Colombia Sede Medellin

M. Nicolas RIVIERE, Examineur, ONERA

Mme Myriam ZERRAD, Rapporteur, Aix-Marseille Université



# Remerciements

---

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de cette thèse et qui ont rendu cette aventure si enrichissante. Tout d'abord, je souhaite remercier les membres du jury, Myriam Zerrad, Jorge Garcia-Sucerquia, Jérôme Yon et Nicolas Rivière, pour avoir pris le temps d'évaluer mon travail et pour leurs précieux commentaires et suggestions. Votre expertise et votre bienveillance ont grandement contribué à l'amélioration de cette thèse.

Je voudrais également remercier Romain Ceolato, mon directeur de thèse, pour m'avoir accompagné pendant ces trois années, et même cinq ans en comptant les stages. C'était un véritable plaisir de travailler avec toi.

Je souhaite par ailleurs exprimer ma reconnaissance à Guillaume Huss. Merci de m'avoir fait confiance et de m'avoir offert cette opportunité unique. Un immense merci à Matthew Berg. Grâce à toi, j'ai pu découvrir et approfondir mes connaissances en holographie. C'était un plaisir de te rencontrer et d'échanger avec toi. Tes enseignements ont été précieux pour la réussite de cette thèse.

Je tiens aussi à exprimer ma gratitude envers les étudiants que j'ai eus l'opportunité d'encadrer pendant ma thèse : Kevin Barge, Cyril Ardisson, Matteo Labrousse et Raoul Dabadie. Merci pour vos contributions, vos projets innovants et vos compétences d'ingénierie, qui ont significativement aidé à faire avancer ma recherche.

Aux doctorants de l'ONERA, qui sont devenus de véritables amis : merci pour votre soutien. Vous avez rendu cette période de ma vie beaucoup plus agréable et moins solitaire. Ma famille, qui m'a soutenue tout au long de mes études jusqu'à leur aboutissement, qui ont aussi pris le temps de me relire. Même si vous êtes loin de Toulouse, vous avez toujours été présent à mes côtés.

À Meggie, ma compagne, merci infiniment pour ton soutien indéfectible et ta patience durant ces années de thèse. Tu as été une source de réconfort et de motivation. Merci pour tout. Enfin, un clin d'œil à Leif, notre chat, pour avoir été une présence réconfortante et une source de distraction bienvenue. À tous, un grand merci du fond du cœur.



# Résumé

---

Les propriétés radiatives des particules comme les aérosols est un domaine d'étude essentiel pour la télédétection optique, notamment pour les techniques lidar à rétrodiffusion élastique. Les propriétés radiatives en rétrodiffusion, comme le rapport de dépolarisation, sont particulièrement importantes pour inverser l'équation lidar et dériver des produits physiques d'une mesure lidar. L'objectif de ces travaux de thèse vise à développer une instrumentation de laboratoire dédiée à la mesure spectro-polarimétrique des paramètres radiatifs des aérosols tels que les poussières désertiques ou volcaniques. L'instrument, dénommé SOPHOS pour Spectro-Polarimetric and HOlographic Scatterometer, permet de mesurer les propriétés de diffusion, dont la rétrodiffusion, en fonction de la longueur d'onde dans le domaine visible proche-infrarouge, en fonction des états de polarisation. Ces mesures de diffusion spectro-polarimétriques sont couplées à une technique d'imagerie par holographie digitale pour permettre de la mesure en simultanée des propriétés microphysiques, telles que la taille et la forme des aérosols. En effet, le phénomène de rétrodiffusion est un phénomène particulièrement sensible aux propriétés microphysiques des aérosols. Après une validation du concept de mesure, l'instrument SOPHOS a été étalonné à partir de particules sphériques de taille connue, puis utilisé pour mesurer des propriétés radiatives spectro-polarimétriques d'aérosols atmosphériques tels que des poussières volcaniques et désertiques, mais aussi d'intérêt pour spatial tel que les régolithes lunaires. L'apport de ces mesures sera in fine d'établir un lien entre leurs propriétés microphysiques et radiatives, en particulier en rétrodiffusion pour des applications lidar. Cette étude se portera sur l'analyse de la dépolarisation en fonction de la taille et du facteur de forme des particules a une multitude de longueurs d'onde. De manière à observer l'effet de l'asphéricité des particules et de la longueur d'onde sur la dépolarisation. En perspective, une déclinaison portable de l'instrument SOPHOS a été développé durant la thèse. L'instrument HALO est un moyen portable de mesure holographique dédié à l'analyse des aérosols dans l'air. Ce dispositif permet de déterminer la distribution en taille et en forme ainsi qu'une mesure de l'extinction des aérosols dans le but d'apporter une analyse complémentaire aux mesures lidar à distance.



# Abstract

---

The radiative properties of particles like aerosols are a crucial area of study for optical remote sensing, especially for techniques like elastic backscatter lidar. Radiative backscatter properties, such as the depolarization ratio, are particularly important for inverting the lidar equation and deriving physical products from a lidar measurement. The goal of this doctoral work aims to develop laboratory instrumentation dedicated to the spectropolarimetric measurement of the radiative parameters of aerosols, such as desert or volcanic dust. The instrument, named SOPHOS for Spectro-Polarimetric and HOlographic Scatterometer, allows for the measurement of scattering properties, including backscatter, as a function of wavelength in the visible to near-infrared spectrum, based on polarization states. These spectropolarimetric scattering measurements are coupled with a digital holography imaging technique to simultaneously measure microphysical properties, such as the size and shape of aerosols. Indeed, the backscatter phenomenon is particularly sensitive to the microphysical properties of aerosols. Following a validation of the measurement concept, the SOPHOS instrument was calibrated using spherical particles of known size and then used to measure the spectropolarimetric radiative properties of atmospheric aerosols, such as volcanic and desert dust, but also of interest for space, such as lunar regoliths. The contribution of these measurements will ultimately establish a link between their microphysical and radiative properties, particularly in backscatter for lidar applications. This study will focus on the analysis of depolarization as a function of particle size and shape factor at a multitude of wavelengths, to observe the effect of particle asphericity and wavelength on depolarization. In perspective, a portable version of the SOPHOS instrument was developed during the thesis. The HALO instrument is a portable holographic measurement device dedicated to the analysis of aerosols in the air. This device allows determining the size and shape distribution as well as a measurement of the aerosol extinction with the aim of providing a complementary analysis to remote lidar measurements.



# Table des matières

---

Introduction	1
I. CONTEXTE .....	1
II. DEMARCHE.....	7
Chapitre 1: Formalisme et état de l'art	9
I. FORMALISME .....	10
1. <i>Diffusion</i> .....	10
2. <i>Holographie numérique</i> .....	18
II. ÉTAT DE L'ART SUR LES DISPOSITIFS DE MESURE .....	25
1. <i>Diffusion</i> .....	25
2. <i>Holographie</i> .....	40
III. ANALYSE COMPARATIVE .....	45
1. <i>Tableau de synthèse</i> .....	46
2. <i>Sources</i> .....	47
3. <i>Configuration capteurs</i> .....	47
4. <i>Conditionnement des particules</i> .....	48
IV. CONCLUSION.....	49
Chapitre 2: Diffusiomètre spectropolarimétrique	51
I. PRESENTATION GENERALE.....	52
II. VOIE DIFFUSION AVANT .....	54
III. VOIE RETRODIFFUSION .....	59
1. <i>Mesures polarimétriques</i> .....	64
2. <i>Calibration</i> .....	66
IV. VOIE HOLOGRAPHIE .....	81
1. <i>Présentation de l'instrument</i> .....	81
2. <i>Reconstruction à partir de données synthétiques</i> .....	83
3. <i>Reconstruction à partir des données expérimentales</i> .....	84
4. <i>Algorithme d'identification des caractéristiques morphologiques des particules</i> .....	87
V. VALIDATION INSTRUMENTALE .....	89
1. <i>Holographie</i> .....	89
2. <i>Validation en diffusion avant</i> .....	91
3. <i>Validation en rétrodiffusion</i> .....	94
VI. CONCLUSION.....	100

Chapitre 3: Morphologie et propriétés radiatives des aérosols	101
<hr/>	
I. PRESENTATION DES PARTICULES .....	103
1. <i>Poussières désertiques</i> .....	103
2. <i>Cendres volcaniques</i> .....	106
3. <i>Récolithes lunaires</i> .....	108
II. DIFFUSION AVANT .....	111
III. RETRODIFFUSION .....	114
1. <i>Poussières désertiques</i> .....	114
2. <i>Cendres volcaniques</i> .....	118
3. <i>Récolithes lunaires</i> .....	120
4. <i>Synthèse</i> .....	121
IV. LIEN MORPHOLOGIE/RETRODIFFUSION .....	123
1. <i>Analyse en fonction de la taille</i> .....	125
2. <i>Analyse en fonction du rapport d'aspect</i> .....	126
3. <i>Analyse spectrale de la dépolarisation</i> .....	127
V. CONCLUSION.....	133
Conclusion générale	135
<hr/>	
VI. PERSPECTIVES.....	138
1. <i>Instrument de laboratoire SOPHOS</i> .....	138
2. <i>Instrument portable HALO</i> .....	140
VII. CONCLUSIONS ET OUVERTURE .....	143

# Liste des Abréviations

---

2D-SALS.....	2D Small Angle Light Scattering
AOTF.....	Acousto-Optic Tunable Filter
ATD .....	Poussières désertiques d'Arizona (Arizona Test Dust)
BS.....	Diviseur de faisceau (Beam Splitter)
FWHM .....	Largeur à mi-hauteur (Full Width at Half Maximum)
CCD.....	Capteur photographique (Charge Coupled Device)
CMOS.....	Capteur photographique (Complementary metal-oxide semiconductor)
DDA.....	Calcul par éléments finis (Discrete Dipole approximation)
DIH .....	Holographie en ligne (Digital In-line Holography)
DOP .....	Degré de polarisation (Degree of polarization)
FFT .....	Calcul de transformé de Fourier (Fast Fourier Transform)
HALO .....	Instrument de mesure holographique sur des aérosols en mouvement
IR.....	Infrarouge
JSC-1A.....	Simulant de Régolithes lunaires issue du Johnson Space Center
LED.....	Light-Emitting Diode
LHS-1.....	Simulant de Régolithes lunaires (Lunar Highland Simulant)
LP .....	Polariseur linéaire (Linear Polarizer)
MEB.....	Microscope électronique à balayage
OPM.....	Miroirs paraboliques hors axe (Off-axis Parabolic mirror)
OSN.....	Observatoire de Sierra Nevada
PBS .....	Diviseur de faisceau polarisant (Polarizing Beam Splitter)
PDA .....	Photodiode Array
PH .....	Ouverture circulaire de faible diamètre (PinHole)
PM.....	Photomultiplicateur
RLP .....	Polariseur linéaire rotatif (Rotative Linear Polarizer)
RS232 .....	Norme de BUS de communication de type série
SALS.....	Small Angle Light Scattering

sCMOS ..... scientific Complementary metal-oxide semiconductor  
SOPHOS ..... SpectrO-Polarimetric and Holographic Scaterometer  
SPB ..... Rétrodiffusion spectro-polarimétrique (Spectro-Polarimetric Backscattering)  
SRS-02..... Spectralon Labsphere à 2% de réflectance  
SRS-99..... Spectralon Labsphere à 99% de réflectance  
USB3 ..... Norme de BUS de communication de type série (Universal Serial BUS)  
UV ..... Ultraviolet

# Nomenclature

---

- **Formalisme de Stokes**

$S$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Vecteur de Stokes  
 $I$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Intensité totale issue du vecteur de Stokes  
 $Q$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Intensité de polarisations horizontale/verticale  
 $U$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Intensité de polarisations diagonales (45°/-45°)  
 $V$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Intensité de polarisations circulaires  
 $M$  ..... Matrice de Mueller  
 $M_{opt}$  ..... Matrice de Mueller du système optique

- **Lidar**

$\alpha_{p,i}$  [m<sup>-1</sup>] ..... Coefficient d'extinction d'une particule  $i$   
 $\beta_{p,i}$  [m<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup>] ..... Coefficient de rétrodiffusion d'une particule  $i$   
 $c_{p,i}^{ext}$  [m<sup>2</sup>] ..... Section efficace d'extinction d'une particule  $i$   
 $c_{p,i}^{back}$  [m<sup>2</sup>sr<sup>2</sup>] ..... Section efficace de rétrodiffusion d'une particule  $i$

- **Diffusion**

$A_f$  ..... Facteur d'asymétrie de la fonction de phase 2D  
 $\delta_L$  ..... Dépolarisation linéaire  
 $E$  [V/m] ..... Champ électrique de l'onde  
 $E^{inc}$  [V/m] ..... Champ électrique incident  
 $E^{sca}$  [V/m] ..... Champ électrique diffusé  
 $f(\theta, \phi)$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Fonction de phase  
 $I^{inc}$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Intensité lumineuse incidente  
 $I^{sca}$  [W/m<sup>2</sup>] ..... Intensité lumineuse diffusée  
 $k$  [m<sup>-1</sup>] ..... Vecteur d'onde  
 $q$  [m<sup>-1</sup>] ..... Vecteur de diffusion

$r$  [m]..... Distance particule / point de mesure  
 $X$ ..... Paramètre de taille  
 $\gamma$ ..... Pente de la dépolarisation en fonction du rapport d'axe  
 $\theta$  [rad] ..... Angle de diffusion  
 $\phi$  [rad]..... Angle azimutal  
 $\chi$  [rad] ..... Orientation du polariseur  
 $\psi$  [rad] ..... Orientation de l'analyseur

- **Holographie**

$E_{holo}$  [V/m] ..... Champ électrique issu de l'hologramme  
 $E_R$  [V/m] ..... Champ électrique de l'onde de référence  
 $E_S$  [V/m] ..... Champ électrique de l'onde diffusée  
 $H^{con}$  ..... Hologramme de contraste  
 $\lambda$  [m] ..... Longueur d'onde  
 $D$  ..... Diamètre de la particule  
 $a/b$  ..... Rapport d'axe  
 $\mathcal{F}$  ..... Transformée de Fourier

# Liste des figures

---

Figure 1 : Calcul du coefficient d'extinction via la théorie de Mie en fonction de la longueur d'onde pour une particule de suie de 240 nm et une gouttelette d'eau de 400 nm.....	5
Figure 2 : Illustration de la dépolarisation linéaire ( $\delta L$ ) de diverses particules minérales, dérivée d'une compilation de multiples mesures expérimentales. Cette figure synthétise les valeurs de dépolarisation obtenues pour une variété de particules minérales, mettant en évidence les différences intrinsèques en fonction de leur composition et forme. [56].....	6
Figure 3 : Interaction entre la lumière (onde plane $I_{inc}$ ) et un objet (obj), Diffusion de la lumière ( $I_{scat}$ ) dans toutes les directions de l'espace avec un angle de diffusion $\theta$ .....	10
Figure 4 : Diagramme de la géométrie de diffusion, $\theta$ l'angle de diffusion et $\phi$ l'angle azimutale, l'angle $\phi$ dépend des deux autres. La détection de $I_{scat}$ se fait au niveau du détecteur (det).....	12
Figure 5 : Les différents domaines de diffusion en fonction du paramètre de taille : Diffusion Rayleigh (symétrique en avant et arrière), diffusion de Mie (plus prononcé vers l'avant) et optique géométrique (réflexions internes).....	13
Figure 6 : Schéma des réflexions et réfractions multiples au sein d'une interface air-sphère avec un faisceau incident $I_{inc}\theta_i$ . .....	17
Figure 7 : Enregistrement de l'hologramme qui est le résultat de l'interférence entre l'onde de référence et l'onde diffractée par l'objet.....	20
Figure 8 : Formation de l'image de l'objet en rééclairant l'hologramme avec l'onde de référence.....	21
Figure 9 : Calcul de l'image de la particule en $(x,y,d)$ à partir de l'hologramme de contraste $H_{con}$ en $(x',y',0')$ . Chaque point de l'image de $H_{con}$ est transposé en $d$ avec l'équation 32 pour former l'image de la particule.....	22
Figure 10 : Hologramme simulé du mot « HOLO » (a) et sa reconstruction (b) avec le modèle de spectre angulaire.....	25
Figure 11 : Spectre produit par le laser supercontinuum, Leukos Samba-450, capable d'émettre sur une large plage spectrale allant de 450 à 2000 nm. Un exemple spécifique de fibre à cristaux photoniques, qui étend le spectre initial de 1064 nm, est illustré dans l'encart.....	27
Figure 12 : Types d'échantillonnages pour l'observation de la diffusion de particules. (a) expose le dépôt de particules, (b) la suspension de particules, (c) le flux de particules et (d) les moyens de piéger/faire léviter une particule.....	29
Figure 13 : méthodes employées pour l'étude de la diffusion de la lumière, où chaque sous-section (a), (b), (c), (d), et (e) démontre différentes approches utilisant un ou plusieurs capteurs pour mesurer un ou plusieurs angles de diffusion.....	33
Figure 14 : Multiples photodiodes pour une mesure de fonction de phase avec différents angles de diffusion sur deux plans de diffusion différents [126].....	34
Figure 15 : Mesure de la fonction de phase avec l'angle de diffusion variant en fonction de la position de la particule dans le tube. La vitesse de la particule étant connue [130].....	35

Figure 16 : Diffusion avant et rétrodiffusion sur le même capteur CCD Grâce à un miroir ellipsoïdale de courte focale [135].....	36
Figure 17 : dispositifs de mesure utilisés pour la rétrodiffusion exacte : (a) présente la rétrodiffusion simple à l'aide d'un séparateur de faisceau non polarisant (BS), tandis que (b) illustre un système de mesure de dépolarisation équipé de deux capteurs et d'un séparateur de faisceau polarisant (PBS).....	37
Figure 18 : Configuration pour capturer figure de rétrodiffusion en deux dimensions avec une caméra CCD [139].....	39
Figure 19 : Exemple d'instrument de mesure holographique in-line avec onde sphérique [147].....	42
Figure 20 : Reconstruction sur un agglomérat de particules sphérique. Les images (a) et (b) montrent respectivement l'image <i>I<sub>holo</sub></i> et <i>H<sub>con</sub></i> des particules. (c) est la reconstruction à partir de <i>H<sub>con</sub></i> et (d) l'image au microscope de ces mêmes particules [43].....	43
Figure 21 : (a) Hologramme enregistré sur un capteur CCD, (b) Reconstitution de l'image à partir de l'hologramme, (c) Image MEB des particules, (d) Distribution en taille des particules étudiées [147].....	44
Figure 22 : Schéma de principe de l'instrument de mesure de diffusion spectro-polarimétrique et d'holographie numérique. La partie émission se compose de deux sources, une pour la diffusion (rouge) et une pour l'holographie (vert). L'instrument est divisé en trois voies de mesure distincte, une voie de rétrodiffusion, une voie de diffusion avant et une voie holographique.....	52
Figure 23 : Configuration optique pour l'instrument SOPHOS. Un laser supercontinuum émet un faisceau de lumière blanche (480-1000 nm) filtré spectralement (de 450 à 850 nm) qui éclairent des particules stationnaires sur une fenêtre (W). La lumière rétrodiffusée par les particules est projetée sur un capteur, fournissant le motif d'intensité rétrodiffusée selon des angles polaires et azimutaux. Un autre laser monochromatique (532 nm) éclaire les particules avec un faisceau élargi où la lumière diffusée et non diffusée interfère pour produire un hologramme en ligne sur un second capteur, le capteur d'holographie. Les images des particules peuvent ensuite être obtenues par reconstruction à partir de l'hologramme numérique enregistré. ....	53
Figure 24 : Schéma optique de l'instrument de mesure en diffusion avant, utilisation d'un laser supercontinuum couplé avec un monochromateur. La séparation entre le faisceau transmis et la partie diffusée par la particule est réalisée par un miroir parabolique troué en son centre (OPM3). ....	54
Figure 25 : Angles et distance décrivant le faisceau diffusé sur la matrice d'image (d : distance entre le centre de l'image et le point de convergence du faisceau diffusé, r : distance entre le centre de l'image et un pixel, $\phi$ : angle azimutal autour du centre de l'image, $\theta$ : angle de diffusion) .....	56
Figure 26 : Mesure de diffraction obtenue avec un « pinhole » de 50 $\mu\text{m}$ sur l'instrument décrit précédemment. L'image de gauche est la figure acquise directement depuis la caméra, diffusion 2D du « pinhole ». L'image de droite est la fonction de phase en fonction de l'angle de diffusion $\theta$ moyenné autour de l'angle azimutal $\phi$ , la mesure est comparée à la fonction de phase théorique apportée avec le modèle d'Airy.....	57
Figure 27 : Configuration optique pour l'instrument SOPHOS (SpectrO-Polarimetric and HOlographic Scaterometer). Un laser à supercontinuum émet des impulsions de lumière à longueur d'onde ajustable qui éclairent des particules stationnaires sur une fenêtre (W). La lumière rétrodiffusée	

par les particules est projetée sur un capteur, fournissant le motif d'intensité rétrodiffusée selon des angles polaires et azimutaux.....	59
Figure 28 : Schéma optique de la première version de l'instrument de mesure de rétrodiffusion avec longueur d'onde unique (532 nm) et des miroirs paraboliques et un séparateur de faisceau pour focaliser la lumière sur une caméra sCMOS Hammamatsu .....	61
Figure 29 : Illustration de l'instrument de filtration spectrale bebop de Leukos. Présence de deux filtres passe haut et passe bas dont la fréquence de coupures est variable selon la position du faisceau sur le filtre, permettant ainsi le choix de la longueur d'onde de sortie et la largeur de bande. ...	62
Figure 30: Les quatre orientations des polariseurs lors de la mesure.....	64
Figure 31 : Diagramme de rétrodiffusion en deux dimensions avec l'intensité rétrodiffusée en fonction des deux angles de diffusion $\theta$ et $\phi$ . Les quatre images correspondent aux intensités rétrodiffusées pour chaque polarisation observée par l'analyseur $0^\circ$ , $45^\circ$ , $90^\circ$ , $-45^\circ$ . .....	65
Figure 32 : Intensités $I$ du vecteur de stokes mesurées par la caméra en fonction des angles $\theta$ et $\phi$ . .....	67
Figure 33 : Fonction de phase d'une particule sphérique (intensité en fonction de l'angle de diffusion). Chaque courbe représente un angle azimutal $\phi$ différents ( $45^\circ$ , $135^\circ$ , $225^\circ$ , $315^\circ$ ). (a) La fonction de phase non corrigée angulairement, (b) Fonction de phase corrigée.....	68
Figure 34 : Puissance du laser à la sortie du filtre bebop et du premier polariseur linéaire. Ici est représenté quatre courbes de puissance pour 4 états de polarisation linéaire $0^\circ$ , $90^\circ$ , $45^\circ$ et $-45^\circ$ .....	70
Figure 35 : Évolution de l'intensité rétrodiffusée par le spectralon SRS99 (99 % de réflectance). (a) intensité directement obtenue par la caméra (b) Signal corrigé du rapport d'intensité entre l'intensité du faisceau initial et l'intensité mesurée par la caméra en rouge, la courbe noire correspond aux valeurs de réflectance données par le constructeur.....	70
Figure 36 : Rapport d'intensité normalisé pour des spectralon de couleur rouge et jaune (les couleurs de courbes correspondent aux couleurs des spectralon) en fonction de la longueur d'onde. Les courbes avec les points sont les données mesurées par notre instrument et les courbes lisses sont les données de réflectances données par le fabricant de spectralon. ....	71
Figure 37 : Schéma optique des premiers essais de calibration sur la première version de l'instrument utilisant deux miroirs paraboliques. La puissance est mesurée en sortie des deux miroirs avec les polariseurs tournés à $0^\circ$ , $45^\circ$ , $90^\circ$ et $135^\circ$ et le polariseur et l'analyseur tournés chacun dans la même orientation.....	73
Figure 38 : Matrice Mueller $M_{opt}(\lambda)$ linéaire sans les éléments de polarisation circulaires. La Matrice varie selon la longueur d'onde entre 450 et 850 nm.....	77
Figure 39 : Taux de dépolarisation en fonction de la longueur d'onde pour la cible Spectralon de référence mesurée avec la caméra de polarisation (ligne continue) et celle mesurée avec le capteur de diffusion (points de données avec barres d'erreur). La ligne rouge représente la cible Spectralon SRS-99 avec une réflectance de 99 %, tandis que la ligne bleue correspond à la cible avec une réflectance de 2 % (SRS-02). Les dépolarisations instrumentales à 535 nm sont de 91 % et 4,8 % respectivement pour SRS-99 et SRS-02.....	78
Figure 40 : Voie de mesure holographique, un laser monochromatique à 532 nm est utilisé, un système de lentilles est utilisé pour élargir le faisceau (non exposé sur le schéma). Le faisceau est sur le même chemin optique que la rétrodiffusion, donc les éléments optiques de la rétrodiffusion sont présents. Une caméra (BlackFly S USB3) mesure l'image d'interférence de la diffusion et du faisceau transmit. ....	82

- Figure 41 : Illustration de la procédure de simulation d'hologramme pour des particules elliptiques avec un rapport d'axe de 2. (a) présente l'image initiale des particules elliptiques ; (b) affiche l'hologramme généré à partir de l'image initiale ; (c) montre l'hologramme après introduction de bruit, dérivé de (b) ; (d) révèle la reconstruction obtenue grâce à l'hologramme bruité ; (e) illustre l'identification des particules dans l'image reconstruite, mettant en évidence la capacité de l'algorithme à distinguer individuellement chaque particule. .... 84
- Figure 42 : Hologramme d'une particule (a) et sa reconstruction (b). L'étape de reconstruction est faite via la méthode de transformée de Fresnel. .... 85
- Figure 43 : Cible de résolution imagée par l'instrument de mesure en holographie. (a) représente l'hologramme de la cible directement mesuré par la caméra et (b) représente la reconstruction de cet hologramme avec en rouge un zoom sur les éléments les plus petits (c). .... 86
- Figure 44 : Algorithme d'identification des particules et de détermination des paramètres morphologiques (diamètre  $D$  et rapport d'axe  $a/b$ ). L'entrée de l'algorithme est l'image reconstruite des particules. Les transformations appliquées à l'image, menant à la détermination des paramètres morphologiques, sont indiquées en rouge. .... 87
- Figure 45 : Image d'une particule suite à la reconstruction d'un hologramme (a), l'image (b) correspond à la carte d'élévation suite à l'application du filtre de Sobel pour retrouver les contours de la particule et donc ensuite la région de pixel correspondant à cette particule automatiquement, (c) est la vue en 3D de (b) pour visualiser la forme remplie par l'algorithme watershed. .... 89
- Figure 46 : Image des particules sphériques étudiées sur les différentes voies de mesures, l'image (a) représente la reconstruction directe de l'hologramme et l'image (b) est la détermination automatique des différentes régions appartenant à chaque particule représentée en couleur. Distribution en taille (c) et en rapport d'axe (d) des particules sphériques de  $32 \mu\text{m}$  en « soda lime glass ». .... 90
- Figure 47 : Mesures des motifs 2D-SALS d'une microsphère de polyéthylène à différentes longueurs d'onde. (a)–(c) Motifs 2D-SALS pour  $\lambda=450 \text{ nm}$ ,  $632 \text{ nm}$  et  $850 \text{ nm}$ , respectivement. Ces motifs sont tracés en échelle logarithmique comme indiqué. (d)–(f) Moyenne azimutale (ligne continue) des motifs dans (a)–(c) présentée en échelle log-log en fonction de  $\theta$ , semblable à la Fig. 1(c). Sont également affichés dans (d)–(f) les ajustements de la théorie de Mie pour une sphère de rayon  $R=27,17 \mu\text{m}$  et le  $m(\lambda)$  dépendant de la longueur d'onde indiquée. .... 92
- Figure 48 : Courbes de diffusion de lumière multispectrale *IExpsca* pour la microsphère de polyéthylène teintée en rouge de  $R = 27,17 \mu\text{m}$  présentée dans la Fig. 2. Chaque courbe représente la moyenne azimutale du motif 2D-SALS mesuré pour la longueur d'onde indiquée. Toutes les courbes sont normalisées par rapport à l'intensité maximale mesurée,  $I_{maxsca}$ , pour le  $\lambda$  donné. Les données sont représentées sur une échelle logarithmique en termes de  $q$  plutôt que de  $\theta$ , ce qui aligne approximativement les premiers maxima des courbes comme indiqué par la flèche rouge. .... 93
- Figure 49 : Fonction de phase en rétrodiffusion à  $535 \text{ nm}$  d'une particule sphérique en soda-lime glass. La ligne noire pleine correspond à la diffusion mesurée expérimentalement par l'instrument présenté auparavant et la ligne rouge en pointillés correspond à la diffusion modélisée avec la théorie de Lorentz-Mie par une particule de verre de  $32 \mu\text{m}$  avec un indice de réfraction de  $(1.52+1e-7i)$ . .... 94
- Figure 50: Intensité totale rétrodiffusée  $I$  en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour une particule sphérique de verre d'un diamètre de  $32$

<p><math>\mu\text{m}</math>. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers <math>I(\theta, \lambda)</math> soit à <math>\theta=179,5^\circ</math> soit à <math>\lambda=535\text{ nm}</math>. Le graphique en (a) montre les mesures tandis que (b) affiche les résultats de la simulation utilisant la théorie de Mie. Une image de la particule produisant ces données de diffusion est obtenue par DIH et présentée en incrustation dans (a).....</p>	96
<p>Figure 51 : Ensemble de diagramme de diffusion et de dépolarisation avec (a) et (c) pour les particules sphériques de <math>32\ \mu\text{m}</math> et (b) et (d) pour une particule de <math>10\ \mu\text{m}</math>. (a) et (b) sont les Intensités <math>I</math> du vecteur de Stokes mesurées par la caméra en fonction des angles <math>\theta</math> et <math>\phi</math>. (c) et (d) sont les diagrammes de dépolarisation en deux dimensions en fonction des deux angles de diffusion <math>\theta</math> et <math>\phi</math>.....</p>	98
<p>Figure 52: Dépolarisation linéaire en fonction de l'angle de diffusion polaire <math>\theta</math> (axe horizontal) et de la longueur d'onde <math>\lambda</math> (axe vertical) pour une particule sphérique de verre d'un diamètre de <math>10\ \mu\text{m}</math>. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers <math>I(\theta, \lambda)</math> soit à <math>\theta=179,5^\circ</math> soit à <math>\lambda=535\text{ nm}</math>. Une image de la particule produisant ces données de diffusion est obtenue par DIH et montrée en incrustation. ....</p>	99
<p>Figure 53 : Dépolarisation en fonction de la longueur d'onde pour trois longueurs d'ondes étudiée (<math>355, 532</math> et <math>1064\text{ nm}</math>) issu de [50]. Pour des poussières désertiques du Sahara observées dans le ciel de Leipzig et comparée aux données laboratoires (a) fresh dust et AERONET [175]/GRSAP [176] (b).....</p>	102
<p>Figure 54 : Image des particules de poussière désertique d'Arizona, cette image est la reconstruction d'un hologramme et chaque particule est identifiée et colorisée pour les identifier. On note un diamètre moyen de <math>16.3\ \mu\text{m}</math> et un rapport d'axe de <math>1.9</math>.....</p>	103
<p>Figure 55 : Distribution en taille et en rapport d'axe des poussières désertiques : ATD (a)(b), Sahara (c)(d), Gobi(e)(f).....</p>	105
<p>Figure 56 : Image des cendres volcaniques de La Palma, cette image est la reconstruction d'un hologramme et chaque particule est identifiée et colorisée pour les identifier. On note un diamètre moyen de <math>13.93\ \mu\text{m}</math> et un rapport d'axe de <math>1.6</math>.....</p>	106
<p>Figure 57 : Distribution en taille et en rapport d'axe des cendres volcaniques : La Palma (a)(b), Islande(c)(d) et Popocatépetl (e)(f).....</p>	107
<p>Figure 58 : Distribution en taille et en rapport d'axe des simulants de régolites lunaire LHS-25A(a), (b) et JSC-1A(c), (d).....</p>	109
<p>Figure 59 : Motifs multispectraux 2D-SALS mesurés pour des particules de poussière désertiques et cendres volcaniques. Chaque motif est obtenu en traçant les motifs 2D-SALS mesurés aux longueurs d'onde <math>\lambda_b = 450\text{ nm}</math>, <math>\lambda_g = 550\text{ nm}</math> et <math>\lambda_r = 632\text{ nm}</math>, en les colorant respectivement en bleu, vert et rouge, puis en superposant ces motifs. Des images au microscope de chaque particule sont présentées en incrustation à droite du motif associé avec des tailles approximatives comme suit : (a) <math>314 \times 300\ \mu\text{m}</math>, et (b) <math>41 \times 30\ \mu\text{m}</math>.....</p>	112
<p>Figure 60 : Facteur d'asymétrie pour les particules sphériques et cendres volcaniques. L'équation 79 est appliquée aux motifs pour chaque particule et l'image insérée montre le motif de cendres volcaniques.....</p>	113
<p>Figure 61 : Diagramme de rétrodiffusion en deux dimensions avec l'intensité rétrodiffusée en fonction des deux angles de diffusion <math>\theta</math> et <math>\phi</math>. Les quatre images correspondent aux intensités rétrodiffusées pour chaque polarisation observée par l'analyseur <math>0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, -45^\circ</math>.....</p>	114

- Figure 62 : Diagramme de dépolarisation en deux dimensions en fonction des deux angles de diffusion  $\theta$  et  $\phi$ . La figure est réalisée avec une particule de poussière désertique du désert d'Arizona à 535 nm. .... 115
- Figure 63 : Intensité de rétrodiffusion (gauche) et Rapport de dépolarisation linéaire  $\delta L$  (droite) en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour des poussières désertiques. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $\delta L(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=180^\circ$  soit à  $\lambda=535$  nm. .... 117
- Figure 64 : Intensité rétrodiffusée (gauche) et Rapport de dépolarisation linéaire  $\delta L$  (droite) en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour les cendres volcaniques de La Palma et celles du volcan Eyjafjallajökull. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $\delta L(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=180^\circ$  soit à  $\lambda=535$  nm. Une image des particules d'ATD produisant ces données est obtenue par DIH et présentée en incrustation (en bas à gauche) dans le graphique. .... 119
- Figure 65 : Intensité rétrodiffusée (gauche) et Rapport de dépolarisation linéaire  $\delta L$  (droite) en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour des régolithes lunaires JSC-1A. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $\delta L(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=180^\circ$  soit à  $\lambda=535$  nm. Une image des particules d'ATD produisant ces données est obtenue par DIH et présentée en incrustation (en bas à gauche) dans le graphique. .... 121
- Figure 66 : Dépolarisation linéaire autour de l'angle de rétrodiffusion en fonction de la longueur d'onde pour cinq types de particules différentes. La dépolarisation est calculée autour de l'angle de rétrodiffusion exact moyennée sur la plage d'angle  $[179^\circ-180^\circ]$ . .... 122
- Figure 67 : Variation de la dépolarisation linéaire (domaine angulaire :  $[179^\circ-180^\circ]$ ) en fonction du diamètre des particules pour deux types d'aérosols : les poussières désertiques d'Arizona (ATD) en bleu et les cendres volcaniques islandaises en rouge. Les données sont présentées pour quatre longueurs d'onde distinctes : 535 nm, 600 nm, 650 nm, et 750 nm, permettant d'observer les différences de comportement de dépolarisation entre ces deux catégories d'aérosols à travers le spectre lumineux. .... 124
- Figure 68 : Dépolarisation linéaire (domaine angulaire :  $[179^\circ-180^\circ]$ ) en fonction du rapport d'axe pour les poussières désertiques d'Arizona (ATD) et les cendres volcaniques islandaises, illustrées respectivement en bleu et en rouge. Les données couvrent quatre longueurs d'onde : 535 nm, 600 nm, 650 nm, et 750 nm, mettant en évidence la variation de la dépolarisation en relation avec le rapport d'axe des particules. Pour chaque groupe de données correspondant à un type de particule et à une longueur d'onde, une régression linéaire a été effectuée, et les pentes ( $\gamma$ ) associées sont indiqués sur le graphique. .... 126
- Figure 69 : Évolution de la pente de la régression linéaire relative à la dépolarisation en fonction de la longueur d'onde pour les poussières désertiques d'Arizona (ATD), représentées en bleu, et pour les cendres volcaniques islandaises, en rouge. .... 128
- Figure 70 : Répartition spectrale de la dépolarisation linéaire en fonction du rapport d'axe des particules, présentée sous forme de diagrammes en boîte pour les poussières désertiques d'Arizona (ATD), en bleu, et pour les cendres volcaniques islandaises, en rouge. Chaque rectangle, rouge ou bleu, illustre l'étendue interquartile de la distribution de la dépolarisation, tandis que la barre orange horizontale indique la médiane de cette distribution. Ce type de visualisation met en exergue la

variabilité de la dépolarisation en fonction du rapport d'axe pour chaque catégorie d'aérosols, fournissant une indication claire des tendances centrales et de la dispersion des données..... 129

Figure 71 : Dépolarisation linéaire (domaine angulaire :  $[179^\circ-180^\circ]$ ) en rapport avec le rapport d'axe pour un ensemble diversifié de particules, avec trois types de poussières désertiques (les ATD, celles du désert de Gobi et du Sahara) et deux types de cendres volcaniques (cendres islandaises et cendres de La Palma), ainsi que des simulants de régolithes lunaires. Les régions de dépolarisation pour les poussières désertiques et les cendres volcaniques sont respectivement représentées en bleu et en rouge. .... 131

Figure 72 : Étape pour calculer l'extinction d'une particule sphérique de  $32\ \mu\text{m}$  de diamètre. (a) représente l'hologramme de contraste sans filtration, (b) est la reconstruction de l'image de la particule issue de (a) et (c) est l'hologramme filtré en inversant la reconstruction tout en ayant filtré au préalable l'image de la particule pour supprimer le bruit d'après [202]..... 140

Figure 73 : Schéma optique du projet HALO utilisant un laser fibré monomode et une caméra pour faire de l'holographie sur des particules en circulation dans un conduit dédié..... 141

Figure 74 : A gauche. Dessin 3D de la boîte hermétique et du conduit de circulation des aérosols (pièce rouge). A droite. Score de focus en fonction de la distance particule/caméra en mm. Le score de focus est calculé avec la méthode de DarkFocus dont le principe est illustré par trois images de reconstruction de l'hologramme en fonction de la distance de reconstruction définie par la flèche rouge. Le score de focus le plus haut correspond à la distance de focus qui forme une image nette de la particule..... 142



# Introduction

---

## I. Contexte

Les aérosols atmosphériques sont des particules solides ou liquides en suspension dans un milieu tel que l'air. Ils jouent un rôle important dans divers processus environnementaux et climatiques. Ces particules peuvent provenir de sources naturelles, telles que les cendres volcaniques et les poussières désertiques, ou de sources anthropiques, dont les suies et autres microparticules émises par les moyens de transport et l'industrie. Leur présence dans l'atmosphère a un impact significatif sur la formation des nuages, les changements climatiques, la qualité de l'air, et par conséquent, sur la santé humaine. Les aérosols sont au cœur de la nucléation des nuages, un processus par lequel l'eau s'agrège autour des particules pour former ceux-ci [1]. Cette capacité à influencer la formation des nuages souligne l'importance des aérosols dans le bilan radiatif terrestre et, par extension, dans les mécanismes de changement climatique [2,3]. De plus, la concentration et la composition des aérosols dans l'atmosphère ont des répercussions directes sur la qualité de l'air, affectant la santé des populations exposées à des niveaux élevés de pollution particulaire [4]. L'étude des aérosols est donc essentielle pour une compréhension approfondie de leur rôle dans l'atmosphère, permettant de surveiller et de prévoir leur distribution spatiale et temporelle, ainsi que leur impact sur les processus climatiques et environnementaux. L'analyse de leur concentration, de leur taille ou de leur composition chimique est essentielle pour quantifier leur contribution aux phénomènes météorologiques tels que le forçage radiatif des aérosols. En outre, l'étude des aérosols dépasse le cadre de la Terre pour s'étendre à l'exploration spatiale et l'observation astronomique. L'analyse des émissions volcaniques sur d'autres planètes ou lunes, telles qu'Encelade, offre des perspectives uniques sur les processus géologiques et atmosphériques extraterrestres [5,6].

L'étude des aérosols est d'intérêt dans le secteur aéronautique, compte tenu de leurs impacts significatifs non seulement sur l'environnement, mais également sur la santé publique et la sécurité aérienne. Alors que les émissions de gaz à effet de serre constituent une préoccupation majeure dans l'aviation, l'attention doit par ailleurs se porter sur les émissions de particules fines, telles que les particules de suie. Ces dernières ont un impact considérable sur l'environnement et le réchauffement climatique grâce à leurs interactions avec les rayonnements [7,8] mais elles ont aussi un fort impact sur la santé publique dans les environnements urbains. Il est donc impératif d'étudier ces particules fines afin de comprendre leur formation, leur comportement et leur dispersion dans l'atmosphère. Cette compréhension approfondie est essentielle pour élaborer des stratégies efficaces visant à réduire leur concentration, dans l'aviation, avec le développement de l'avion vert par exemple [9,10]. En outre, les émissions d'aérosols minéraux, telles que les cendres volcaniques et les particules minérales issues de tempêtes de sable, présentent des défis particuliers pour l'aviation. Les éruptions volcaniques et les tempêtes de sable, en libérant respectivement des cendres et des particules minérales dans l'atmosphère, posent des risques

significatifs pour la sécurité aérienne. Ces particules peuvent considérablement réduire la visibilité et provoquer des incidents techniques, paralysant ainsi les voies aériennes [11,12]. La présence de ces aérosols dans l'atmosphère nécessite donc une surveillance et une recherche constantes pour mieux comprendre leur dynamique et développer des méthodes de prévision et de gestion des risques associés à leur dispersion. En somme, l'étude des aérosols dans le domaine aéronautique est fondamentale pour aborder les problématiques environnementales et de santé publique liées aux émissions de particules fines, ainsi que pour garantir la sécurité des opérations aériennes face aux phénomènes naturels émettant des aérosols minéraux.

L'étude des interactions lumière-matière est un domaine d'étude fondamental dans le domaine de la recherche en optique et plus généralement en physique. Depuis les premières avancées avec les instruments optiques destinés à l'observation astronomique et les études de diffraction par Isaac Newton, jusqu'à la révolution introduite par la découverte de la dualité onde-particule et les développements de la mécanique quantique, la compréhension des phénomènes optiques a considérablement évolué [13,14]. Cette progression a été marquée par l'invention et le perfectionnement de capteurs, de sources lumineuses et d'outils d'analyse de plus en plus sophistiqués, permettant une exploration plus approfondie des interactions lumière-matière. Par exemple, les avancées technologiques ont transformé les méthodes d'analyse de la lumière, débutant avec l'œil humain pour l'observation directe des astres, évoluant vers l'utilisation du papier photographique pour la mesure des intensités lumineuses, et aboutissant au développement de photodiodes et de capteurs matriciels [15]. Ces derniers, grâce à leur capacité à effectuer des mesures à très haute fréquence et avec une grande définition, ont ouvert la voie à l'étude de phénomènes auparavant inaccessibles en termes d'intensité lumineuse.

Le développement rapide des capteurs à base de semi-conducteurs a joué un rôle clé dans cette évolution, engendrant des progrès significatifs dans les domaines de l'optique et de la photonique. Ces capteurs facilitent aujourd'hui l'analyse de phénomènes lumineux de faible intensité. Par exemple, dans le domaine de l'étude de l'atmosphère, on peut citer un domaine d'application notable qui est celui de la télédétection active ou des lidars atmosphériques. Comme précédemment exposé, la recherche sur les aérosols a initialement visé à développer des méthodes permettant leur observation et leur quantification. L'attention s'est tournée vers l'étude de leurs interactions avec la lumière. L'analyse de la diffusion lumineuse induite par ces particules a mené au développement de la technologie lidar (Light Detection and Ranging). Ces instruments permettent de sonder à distance l'atmosphère, en particulier les aérosols [16,17]. Les lidars à rétrodiffusion élastique sont fondés sur le phénomène de diffusion élastique de la lumière par ces particules. Il s'agit d'un phénomène connu de longue date, la capacité à mesurer précisément cette diffusion dans l'atmosphère n'a été rendue possible qu'avec l'invention du laser [18]. Les lasers permettent de mesurer à la fois l'intensité lumineuse, et, grâce aux impulsions laser, de déterminer la distance entre le phénomène de diffusion et l'appareil de mesure – on parle de technique de mesure par temps de vol. Originellement conçu pour améliorer la résolution spatiale dans la mesure des distances, par rapport aux radars traditionnels, le lidar atmosphérique a évolué pour intégrer des capteurs hautement sensibles, destinés spécifiquement à l'étude des interactions lumière/particules dans l'atmosphère [19,20]. Cette aptitude d'analyse ouvre de nouvelles perspectives et nécessite une compréhension fine des interactions lumière-matière,

illustrant l'impact profond des avancées technologiques sur le progrès scientifique dans le domaine de l'optique au profit de l'étude de l'atmosphère.

Les lidars peuvent être classifiés en plusieurs catégories : les lidars élastiques [21], qui analysent la lumière rétrodiffusée sans changement de longueur d'onde et sont principalement utilisés dans l'étude des aérosols atmosphériques, et les lidars inélastiques [22,23], qui détectent les variations de longueur d'onde dues à l'interaction lumière-matière. Les mesures lidar se concentrent sur l'analyse de deux paramètres optiques clés : le coefficient d'extinction  $\alpha(\lambda, r)$  qui rend compte de la diminution de l'intensité lumineuse due à l'absorption et à la diffusion par les particules, et le coefficient de rétrodiffusion  $\beta(\lambda, r)$ , qui mesure l'intensité de la lumière diffusée vers le système de détection [24]. La détermination de ces coefficients permet d'inverser l'équation lidar élastique, offrant ainsi la possibilité de remonter aux propriétés microphysiques des aérosols présents dans l'atmosphère. Cependant, cette équation lidar est un problème mathématique mal posé en présentant de multiples inconnues, rendant sa résolution impossible sans hypothèses supplémentaires sur certains paramètres. La capacité à identifier ces paramètres inconnus est essentielle pour distinguer les différents types de particules atmosphériques et pour quantifier leur concentration, soulignant l'importance de cette technologie dans l'avancement de la recherche sur les aérosols et leur impact sur l'environnement et la santé publique. Une question importante se pose alors quant à la manière de surmonter la difficulté posée par le nombre d'inconnues dans l'équation lidar. Le défi majeur réside dans le fait que l'on dispose généralement d'une seule équation pour résoudre plusieurs variables inconnues. Cette limitation intrinsèque rend la résolution directe de l'équation complexe sans recourir à des informations supplémentaires préalablement acquises. Les variables en question ne sont pas constantes et varient selon différentes dimensions, notamment le spectre et la polarisation. Cette variabilité introduit un niveau supplémentaire de complexité supplémentaire, toutefois on peut exploiter les propriétés radiatives des aérosols sur différentes plages de longueurs d'onde et en polarimétrie. La connaissance des paramètres radiatifs spécifiques aux aérosols dans ces dimensions permet de contraindre l'équation lidar, améliorant ainsi la précision et la résolution de ces mesures. La clé pour résoudre efficacement l'équation lidar réside donc dans l'acquisition de connaissances approfondies sur les caractéristiques optiques des aérosols et leur comportement dans différentes conditions spectrales et de polarisation.

Afin de contraindre efficacement l'équation lidar, et par conséquent déterminer les propriétés microphysiques des aérosols, il est important de disposer de méthodes fiables pour déterminer les paramètres clés de cette équation. Trois approches principales sont employées dans ce but : la modélisation, la mesure en laboratoire et la constitution de base de données de mesure lidar.

Une première approche est basée sur les modèles de diffusion de la lumière, qui jouent un rôle essentiel dans la compréhension et la prédiction des interactions lumière/particules. Actuellement, les modèles établis sur la théorie de Mie [25], adaptés aux particules sphériques, ainsi que ceux utilisant l'approche T-matrix [26] pour des particules sphéroïdales ou cylindriques, sont bien établis et largement utilisés [27–29]. Ces modèles permettent de calculer les paramètres de rétrodiffusion et d'extinction avec une bonne précision pour les formes de particules qu'ils sont conçus pour simuler. Pour des particules de formes plus complexes, l'approximation par dipôles discrets (DDA) offre une solution de modélisation plus flexible [30].

Cette méthode, relevant du calcul par volumes discrets, permet de traiter théoriquement n'importe quelle forme de particule. Toutefois, la DDA nécessite des ressources en calcul importantes, ce qui demeure un point limitant pour son application pratique dans les méthodes d'inversion en télédétection.

Une seconde stratégie consiste à développer et à exploiter des bases de données de mesures lidar. Cette méthode implique la constitution d'un répertoire exhaustif de données issues de diverses études lidar, organisées soit sur la base d'une localisation géographique spécifique [31], soit à l'échelle globale [31–35]. L'avantage principal de cette approche réside dans sa capacité à agréger un volume substantiel de données, facilitant ainsi l'extraction et l'analyse des paramètres radiatifs des aérosols. En rassemblant des mesures issues de différents types de lidars et en augmentant la quantité de données collectées, il permet d'améliorer notre compréhension des propriétés radiatives des aérosols. Chaque ensemble de mesures contribue à enrichir la base de données, permettant une analyse plus précise et détaillée des caractéristiques optiques des particules atmosphériques. Ces bases de données permettent non seulement de contraindre les inconnues dans l'équation lidar, mais offre également une perspective sur la variabilité spatiale et temporelle des aérosols.

Une troisième méthode pour approfondir notre compréhension des propriétés radiatives des aérosols consiste à effectuer des mesures en laboratoire. Cette approche méthodologique, développée plus en détail dans le manuscrit et de la thèse, repose sur la mesure directe de certaines propriétés radiatives des aérosols au moyen d'instruments spécialement conçus à cet effet. L'avantage de cette méthode est qu'elle aide à acquérir des données précises sur la rétrodiffusion et l'extinction par les particules. Grâce à des équipements qui sont, pour certains, exclusivement dédiés à la mesure en laboratoire des propriétés lidar [36–39]. Ces instruments permettent de constituer d'importantes bases de données sur les propriétés radiatives des aérosols [40], en réalisant ces mesures dans un environnement contrôlé, ce qui contribue à minimiser les erreurs potentielles. Certains de ces instruments se concentrent sur des mesures spécifiques au lidar, telles que la dépolarisation [41,42], tandis que d'autres ajoutent des capacités de mesure uniquement possibles en laboratoire, comme l'holographie [43,44]. Cette dernière technique est particulièrement intéressante, car elle permet de mesurer les propriétés microphysiques des particules d'aérosols, ajoutant ainsi une information supplémentaire aux données qui ne peut pas être capturée lors des campagnes lidar traditionnelles. Cette approche assure non seulement de valider et d'étalonner les données obtenues par lidar, mais également d'explorer des aspects des aérosols qui resteraient autrement inaccessibles.

L'inversion du problème de diffusion, qui inclut la résolution du problème lidar par la méthode de Klett [45], est confrontée à un ensemble de défis inhérents à sa nature. Cette méthode repose sur des hypothèses spécifiques et aborde un problème intrinsèquement mal posé, caractérisé par une équation comprenant une mesure unique, mais deux inconnues principales : les coefficients d'extinction ( $\alpha$ ) et de rétrodiffusion ( $\beta$ ). Une approche pour lever cette complexité implique l'intégration de données supplémentaires, telles que la longueur d'onde et la polarisation [46], afin de fournir des contraintes supplémentaires au problème d'inversion. La dimension spectrale ou multispectrale joue un rôle déterminant dans la contrainte de l'équation lidar. Cette importance découle du fait que, bien que deux aérosols puissent présenter un coefficient

d'extinction identique à une longueur d'onde donnée, malgré leurs différences de taille et d'indice optique, par contre, leurs coefficients présentent des dispersions spectrales différenciantes. Ce phénomène est illustré par la théorie de Mie, qui démontre qu'en considérant deux particules sphériques ayant le même coefficient d'extinction à 530 nm (Figure 1), leur variation en fonction de la longueur d'onde diffère, permettant ainsi leur différenciation. L'étude de cette caractéristique multispectrale permet l'évaluation et la modélisation des propriétés optiques des aérosols sur un large éventail de longueurs d'onde [47–49]. L'exploitation de plusieurs longueurs d'onde, à travers des instruments multispectraux et hyperspectraux, facilite considérablement la restriction du problème posé par l'équation lidar. Les instruments multispectraux utilisent des longueurs d'onde discrètes pour affiner l'analyse [50], tandis que les dispositifs hyperspectraux s'appuient sur des plages continues de longueurs d'onde [51], souvent générées par des lasers à supercontinuum, pour obtenir des données plus complètes.

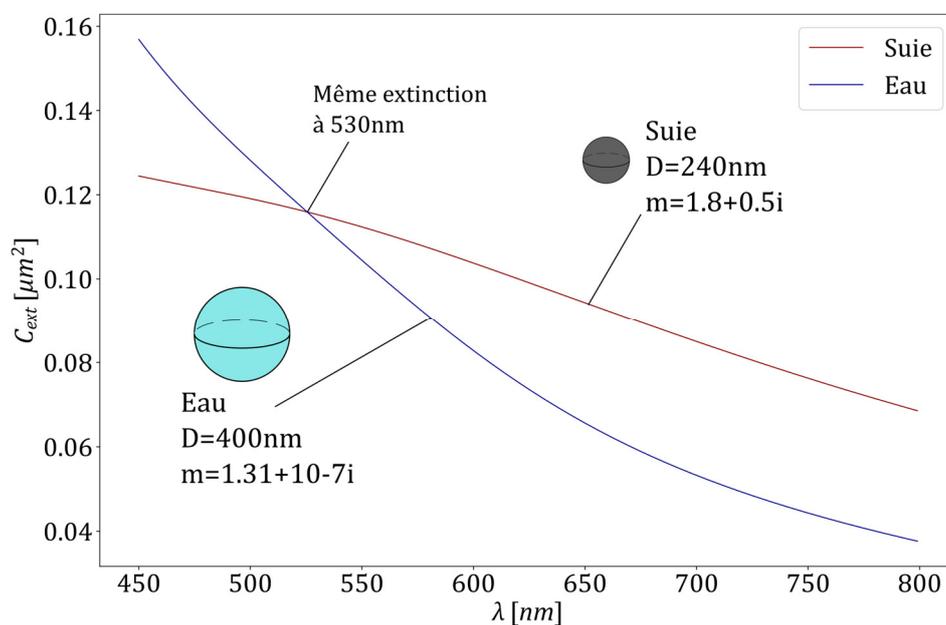


Figure 1 : Calcul du coefficient d'extinction via la théorie de Mie en fonction de la longueur d'onde pour une particule de suie de 240 nm et une gouttelette d'eau de 400 nm.

L'information polarimétrique permet, elle aussi, de restreindre l'équation lidar, en fournissant un moyen supplémentaire d'extraire des informations détaillées sur les particules atmosphériques [52–54]. Les techniques de diffusion qui considèrent autant la polarisation du faisceau laser incident que les caractéristiques de la lumière rétrodiffusée révèlent des aspects structuraux et morphologiques des particules étudiées. Les états de polarisation de la lumière diffusée dépendent étroitement de la forme, de la taille, et de la composition des particules, ce qui permet d'obtenir des indices déterminants concernant leur structure [55]. Un paramètre de polarisation particulièrement intéressant est le ratio de dépolarisation,  $\delta_L$ , qui mesure la capacité d'une particule à modifier la polarisation de la lumière incidente. La dépolarisation, phénomène largement observé et mesuré dans les domaines du lidar et des mesures expérimentales de diffusion, joue un rôle prépondérant dans la caractérisation des particules. Elle offre des informations précieuses sur la forme et la morphologie des particules qui permet ainsi de les identifier lors de mesures lidar et laboratoire. L'analyse de la dépolarisation laisse établir des

comparaisons avec les données obtenues par d'autres instruments de mesure [56]. Ce processus de validation croisée est décisif pour assurer la fiabilité et la précision des résultats apportés. En effet, la disposition à comparer et à corroborer les mesures de dépolarisation avec celles recueillies par différents dispositifs enrichit la compréhension des phénomènes étudiés et contribue à l'élaboration de modèles plus précis concernant la diffusion de la lumière par les aérosols. L'importance de la dépolarisation dans la caractérisation des aérosols souligne la nécessité d'intégrer cette mesure dans les systèmes de détection et d'analyse, tels que l'instrument spectro-polarimétrique envisagé dans cette thèse.

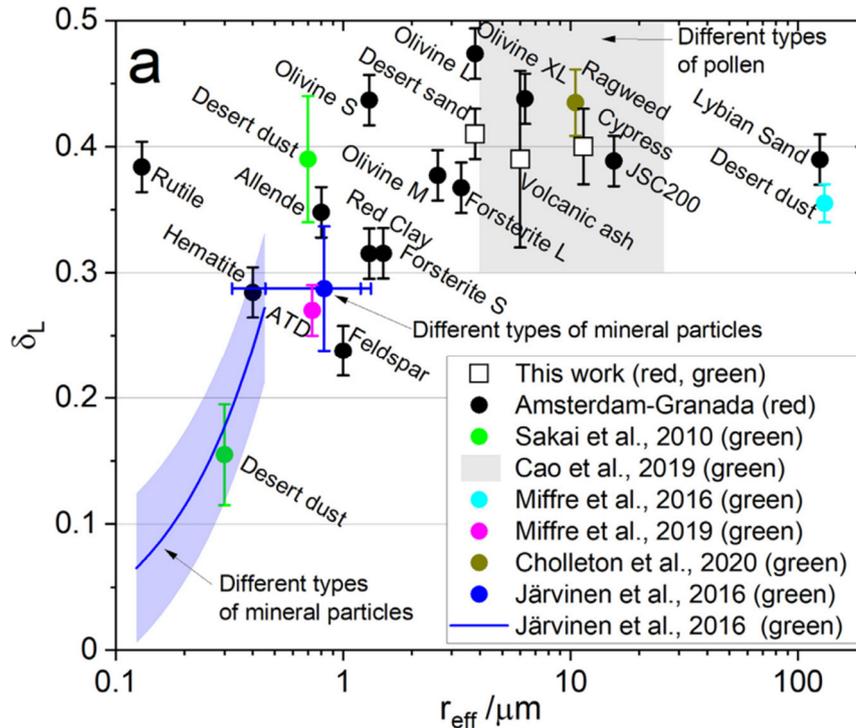


Figure 2 : Illustration de la dépolarisation linéaire ( $\delta_L$ ) de diverses particules minérales, dérivée d'une compilation de multiples mesures expérimentales. Cette figure synthétise les valeurs de dépolarisation obtenues pour une variété de particules minérales, mettant en évidence les différences intrinsèques en fonction de leur composition et forme. [56]

La question de l'intégration des mesures spectro-polarimétriques, c'est-à-dire de la capacité des instruments à évaluer simultanément la polarisation et le spectre, devient pertinente dans le contexte actuel. Bien que certains lidars intègrent déjà des principes de mesure spectro-polarimétrique, leur application se limite à de courtes plages de longueurs d'onde, voire à quelques longueurs d'onde spécifiques [50,57]. Toutefois, l'extension de ces mesures à une gamme complète de longueurs d'onde, tout en incluant une dimension de mesure de la polarisation, reste à ce jour inexplorée. C'est dans ce contexte que s'inscrit la thèse proposée, visant à développer un instrument de mesure spectro-polarimétrique pour l'analyse des aérosols, avec des applications dans le domaine lidar.

## II. Démarche

L'objectif de cette thèse vise à concevoir un instrument de mesure spectro-polarimétrique avancé. Cet outil ambitionne de raffiner les paramètres essentiels à l'exploitation et à l'analyse précise des équations lidar, s'inscrivant dans le prolongement direct des progrès techniques dans l'étude des propriétés radiatives des aérosols. Pour atteindre cet objectif, il est primordial de développer un instrument capable d'effectuer des mesures de paramètres radiatifs spécifiques aux lidars atmosphériques.

L'instrument de mesure spectro-polarimétrique développé dans cette thèse permettra de quantifier ce lien entre la microphysique de l'aérosol et ses propriétés radiatives. Une mesure complète, dans ce cadre, consiste à acquérir des données sur une gamme étendue de longueurs d'onde pour apporter une meilleure compréhension des tendances de l'évolution spectrale des paramètres radiatifs en fonction des paramètres microphysiques des aérosols. En outre, la capacité à mesurer la polarisation en rétrodiffusion est essentielle pour l'identification des aérosols dans l'atmosphère. En effet, les phénomènes de dépolarisation sont liés à la morphologie ou à la composition chimique des aérosols. Par ailleurs, l'instrument devra inclure un moyen d'examiner la morphologie des aérosols, idéalement en parallèle avec les mesures de diffusion. L'objectif est d'imager directement la structure des particules, facilitant la compréhension du lien entre la morphologie des aérosols et leur comportement en termes de diffusion de la lumière. L'holographie numérique représente une technique particulièrement adaptée de par sa simplicité d'implémentation dans un instrument de type diffusiomètre.

Pour mener à bien le développement de ce diffusiomètre spectro-polarimétrique, incluant une voie d'imagerie par holographie numérique, nous avons décliné plusieurs sous-objectifs.

**Objectif 1 :** La conception optique d'un instrument de mesure, incluant une sélection des éléments constitutifs de l'instrument et le développement d'une méthodologie originale de mesure de la diffusion avant (avec un angle de diffusion  $\theta=0$ ), la rétrodiffusion ( $\theta=180$ ), et l'imagerie par holographie.

**Objectif 2 :** La démonstration de la faisabilité de la mesure spectro-polarimétrique en diffusion avant et rétrodiffusion sur des échantillons de référence (surfaces calibrée ou particules sphériques). La faisabilité d'un tel instrument pose des questions, car la plupart des éléments optiques utilisés dans ce type d'instrument en polarisation sont dépendants de la longueur d'onde et sont donc difficilement utilisables pour du multispectral. En effet, les lames quart ou demi onde simples utilisées dans la plupart des instruments de mesures en polarimétrie sont inutilisables en multispectrale, car elles ne sont utilisables qu'à une longueur d'onde particulière. Il sera primordial de définir des éléments optiques et une de calibration spectro-polarimétrique pour prendre en compte précisément les éléments optiques.

**Objectif 3 :** La conduite de plusieurs campagnes de mesure de paramètres radiatifs sur des aérosols atmosphériques non-sphériques. Ces résultats s'accompagneront d'une analyse originale visant à mieux comprendre les phénomènes physiques expliquant le lien entre les paramètres radiatifs des aérosols et la microphysique des particules.

Le présent manuscrit de thèse sera ainsi structuré sous la forme de trois chapitres :

**Chapitre 1. État de l'art des instruments de diffusion de la lumière dans le contexte des aérosols :** Cette phase initiale consiste tout d'abord à rappeler les bases du formalisme optique et électromagnétique lié à la théorie de la diffusion de la lumière et ensuite à dresser un panorama des technologies existantes pour la mesure de la diffusion de la lumière par les aérosols. L'analyse portera sur les composants spécifiques de ces instruments de mesure, identifiant ainsi les éléments clés et les méthodologies employées pour quantifier la diffusion lumineuse. La dernière partie de ce chapitre proposera une synthèse comparative des techniques et une solution technologique pour la mesure spectro-polarimétrique de la diffusion par les aérosols, incluant la rétrodiffusion. Cela permettra de sélectionner les éléments les plus adaptés à la conception d'un instrument de diffusion de la lumière spécifiquement pour les besoins des travaux de cette thèse.

**Chapitre 2. Présentation des différentes voies de mesures, calibration et validation :** La seconde phase se concentre sur la conception proprement dite de l'instrument, en explorant différentes méthodologies de mesure de la diffusion. Les approches étudiées incluront :

- Diffusion Avant : Mesure de la diffusion à des angles proches de  $0^\circ$ , alignés sur le faisceau incident.
- Rétrodiffusion : Focalisation sur des mesures autour de  $180^\circ$ , simulant ainsi les conditions de mesure lidar, avec un intérêt particulier pour les mesures de polarisation et de dépolarisation.
- Holographie : Utilisation de l'holographie pour l'imagerie des particules, permettant de déterminer leurs propriétés morphologiques et le coefficient d'extinction, un paramètre déterminant pour l'équation lidar.

La calibration de chaque méthode de mesure sera développée en fonction de l'angle, du spectre et de la polarisation pour les mesures de diffusion, et pour l'holographie l'objectif sera de déterminer la dimension réelle d'un pixel des images générées. Ce chapitre se terminera par la validation de chaque voie de mesure à l'aide d'étalons comme les particules sphériques ou des surfaces calibrées en réflectance.

**Chapitre 3. Résultats sur des aérosols atmosphériques, analyse de l'influence de la morphologie :** Dans un premier temps, l'étude se concentrera sur la caractérisation des aérosols atmosphériques en examinant leurs morphologies à l'aide de l'holographie, ainsi qu'en mesurant leurs propriétés radiatives, déterminées par les techniques de diffusion avant et de rétrodiffusion. La seconde partie du chapitre se concentre sur l'analyse du lien entre les propriétés morphologiques des particules et leurs propriétés radiatives en rétrodiffusion. Cette analyse propose d'étudier le rapport de dépolarisation linéaire en fonction de la taille des particules et de leur morphologie. La spécificité de cette étude réside dans son champ d'application, qui englobe non seulement des aérosols atmosphériques communs tels que les poussières désertiques et les cendres volcaniques, mais également des particules moins conventionnelles, comme les régolithes lunaires.

# Chapitre 1: Formalisme et état de l'art

---

Les recherches sur la diffusion de la lumière couvrent un large éventail de domaines d'étude, chacun possédant ses spécificités. Dans ce contexte, l'objectif assigné à notre instrument est de mesurer la diffusion de la lumière par des particules sous différents angles de diffusion. Cet aspect, bien que fondamental, s'accompagne d'une dimension supplémentaire : l'analyse spectro-polarimétrique des mesures de diffusion. L'instrument envisagé intègrera une fonctionnalité d'imagerie, qui jouera un rôle clé dans l'association des caractéristiques morphologiques spécifiques des particules à leurs profils de diffusion. Cette intégration est essentielle, car elle offre la possibilité de corrélérer directement la forme et la taille avec les motifs de diffusion observés.

La mesure de la diffusion de la lumière s'avère indispensable dans la conception et l'utilisation d'instruments scientifiques variés, allant des satellites de télédétection, qui surveillent et mesurent les caractéristiques de la lumière diffusée par le Soleil et reflétée par la Terre, aux télescopes terrestres et orbitaux équipés pour l'analyse du rayonnement électromagnétique diffusé par des corps célestes. Dans le contexte spécifique des lidars atmosphériques, ces instruments se spécialisent dans la mesure de la rétrodiffusion de la lumière par des particules aérosols, fournissant des informations sur la composition, la structure et les dynamiques de l'atmosphère terrestre. Ces observations sont essentielles pour les études climatiques, la surveillance environnementale et la prévision météorologique. En outre, l'utilisation d'instruments multi-angulaires ou multispectraux en laboratoire pour la caractérisation optique des matériaux s'avère capitale. Ces dispositifs permettent de sonder les propriétés physiques des milieux diffusants en détail, facilitant ainsi la compréhension des interactions lumière-matière et le développement de nouveaux matériaux avec des propriétés optiques spécifiques. [58].

Ce chapitre est dédié à la présentation des instruments de mesure de la diffusion de la lumière, avec une attention particulière portée sur la mesure des propriétés radiatives des particules. L'objectif de ce chapitre est de :

(i) rappeler les bases du formalisme optique et électromagnétique lié à la théorie de la diffusion de la lumière,

(ii) de donner un état de l'art des techniques de mesure de diffusion de la lumière par des particules. Par la grande diversité des instruments, on se concentrera plutôt sur l'examen des différentes composantes de ces instruments, telles que les sources lumineuses, les méthodes d'échantillonnage, et les capteurs.

(iii) de proposer une synthèse comparative des techniques et une solution technologique pour la mesure spectro-polarimétrique de la diffusion par les aérosols, incluant la rétrodiffusion. Cela permettra de sélectionner les éléments les plus adaptés à la conception d'un instrument de diffusion de la lumière spécifiquement pour les besoins des travaux de cette thèse.

# I. Formalisme

## 1. Diffusion

La diffusion de la lumière est un phénomène physique très utilisé pour la caractérisation des particules de taille micrométrique, proche de la longueur d'onde. Des instruments fondés sur la diffusion de la lumière sont conçus pour mesurer l'intensité lumineuse diffusée par une ou plusieurs particules en fonction de l'angle de diffusion [59]. La diffusion élastique de la lumière constitue une technique sensible aux multiples propriétés des particules telles que leur taille, leur forme, indice de réfraction complexe, rugosité de surface et distribution de densité moléculaire. Grâce à cette sensibilité, elle est perçue comme une méthode efficace pour mesurer ces paramètres en temps réel. Ce type d'instrument mesure l'intensité lumineuse diffusée en fonction de l'angle, appelée fonction de phase ou diagramme de diffusion. Il s'agit d'une signature propre à la particule qui peut être modélisée par différentes théories électromagnétiques [60].

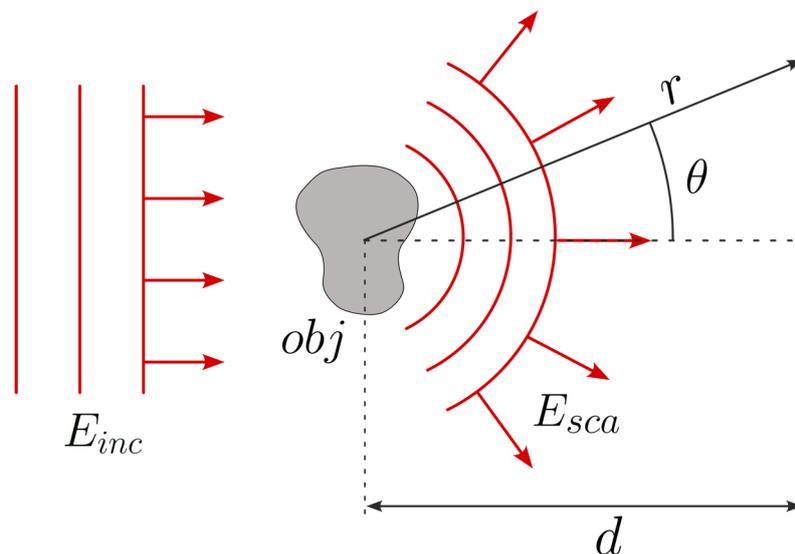


Figure 3 : Interaction entre la lumière (onde plane  $I_{inc}$ ) et un objet ( $obj$ ), Diffusion de la lumière ( $I_{scat}$ ) dans toutes les directions de l'espace avec un angle de diffusion  $\theta$

La mesure de la distribution angulaire lors de la diffusion de la lumière fournit de nombreuses informations sur les particules testées, la taille, la forme, la section efficace et la masse moléculaire [61]. La diffusion des ondes électromagnétiques par n'importe quel système est liée à l'hétérogénéité de ce système : que ce soit à l'échelle moléculaire ou à l'échelle des agrégats de particules. La matière est composée de charges électriques discrètes. Si un obstacle, qui pourrait être un seul électron, un atome ou une molécule, une particule solide ou liquide, est éclairé par une onde électromagnétique (Figure 3), les charges électriques dans l'obstacle sont mises dans un mouvement oscillant par le champ électrique de l'onde incidente. Il en résulte un champ électrique diffusé qui dépend du champ incident et de la nature de l'obstacle [62]. Pour analyser rigoureusement les ondes diffusées, il est impératif de se pencher sur les propriétés et les caractéristiques des ondes électromagnétiques concernées, ainsi que sur le cadre mathématique et physique dans lequel elles évoluent. Initialement, il convient de définir une onde électromagnétique plane progressive. Celle-ci se propage dans une direction définie par le vecteur  $\vec{r}$ , au sein d'un espace caractérisé par une base orthogonale  $(x, y)$ , laquelle est elle-même

orthogonale au vecteur de propagation  $\vec{r}$ . Le champ électrique associé à cette onde peut être décrit par son expression complexe :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{pmatrix} \quad (1)$$

$$\vec{E}^* = \begin{pmatrix} E_x^* \\ E_y^* \end{pmatrix} = e^{-i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{pmatrix} \quad (2)$$

Où  $\omega$  représente la pulsation de l'onde, en relation directe avec sa fréquence et  $k$  est le vecteur d'onde.

Ces formulations permettent de décrire avec précision les états de polarisation de l'onde électromagnétique en question. À cette fin, le vecteur de Stokes  $S$ , constitué de quatre éléments, est introduit pour représenter les différents états de polarisation en termes d'intensité [63]. Ce vecteur est défini comme :

$$S = \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_x E_x^* + E_y E_y^* \\ E_x E_x^* - E_y E_y^* \\ E_x E_y^* + E_y E_x^* \\ i(E_x E_y^* - E_y E_x^*) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} |E_x|^2 + |E_y|^2 \\ |E_x|^2 - |E_y|^2 \\ 2\text{Re}(E_x E_y^*) \\ -2\text{Im}(E_x E_y^*) \end{pmatrix} \quad (3)$$

Où  $I$  est l'intensité totale de l'onde,  $Q$  et  $U$  représentent l'intensité de la polarisation linéaire à respectivement  $0^\circ/90^\circ$  et  $45^\circ/-45^\circ$ , et  $V$  est l'intensité de la lumière polarisée circulairement. La polarisation circulaire est considérée comme positive lorsqu'elle est dans le sens inverse des aiguilles d'une montre.

Dans le contexte de la diffusion de la lumière polarisée ou partiellement polarisée, la matrice de Mueller ( $M$ ) offre un moyen de représentation simplifié. Cette matrice  $4 \times 4$ , utilisée conjointement avec les vecteurs de Stokes, permet de modéliser les intensités lumineuses dans tous les états de polarisation. Lorsqu'un faisceau lumineux initial subit une modification par un élément optique, la lumière résultante est transformée, induisant un nouveau vecteur de Stokes calculé par l'interaction entre la matrice de Mueller représentative de l'élément optique et le vecteur de Stokes initial : [63]

$$S(\theta, \phi) = M(\theta, \phi) \cdot S_0 \quad (4)$$

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix}(\theta, \phi) = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} & M_{14} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} & M_{24} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} & M_{34} \\ M_{41} & M_{42} & M_{43} & M_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_0 \\ Q_0 \\ U_0 \\ V_0 \end{pmatrix} \quad (5)$$

Où  $S_0$  est le vecteur de Stokes initial et  $M$  représente la matrice de Mueller. Cette interaction permet de déterminer le vecteur de Stokes résultant, qui est fonction des angles de diffusion, offrant ainsi une méthode pour définir la fonction de phase  $I(\theta, \phi)$ , laquelle décrit l'intensité lumineuse ( $I, Q, U, \text{ ou } V$ ) en fonction de ces angles. Figure 4.

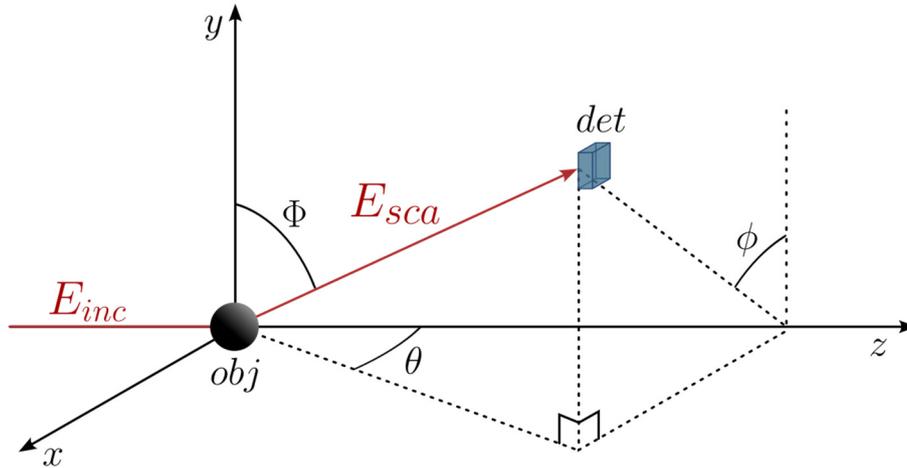


Figure 4 : Diagramme de la géométrie de diffusion,  $\theta$  l'angle de diffusion et  $\phi$  l'angle azimutale, l'angle  $\Phi$  dépend des deux autres. La détection de  $I_{scat}$  se fait au niveau du détecteur (det).

On peut aussi définir l'angle de diffusion  $\theta$  avec le vecteur de diffusion  $q$ , c'est la représentation de  $\theta$  dans l'espace du vecteur d'onde  $k$ . Il est égal à la différence entre  $k_0$  et  $k$ , et peut directement s'exprimer en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$ .

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad [m^{-1}] \quad (6)$$

Dans le contexte de la mesure de rétrodiffusion par lidar, il est important de définir le coefficient de rétrodiffusion et d'extinction ainsi que le rapport de dépolarisation linéaire  $\delta_L$  qui est un paramètre utilisé pour caractériser les aérosols par leur morphologie.

Les coefficients d'extinction  $a_{p,i}(\lambda)$  et de rétrodiffusion  $\beta_{p,i}(\lambda)$  sont deux paramètres extensifs, qui dépendent de la concentration en particules  $N_{p,i}(R) [m^{-3}]$  dans le milieu par respectivement la section efficace d'extinction  $c_{p,i}^{ext}(\lambda, R)$  et la section efficace de rétrodiffusion  $c_{p,i}^{back}$ .

$$a_{p,i}(\lambda) = \int_0^\infty N_{p,i}(R) \cdot c_{p,i}^{ext}(\lambda, R) dR ; \quad \beta_{p,i}(\lambda) = \int_0^\infty N_{p,i}(R) \cdot c_{p,i}^{back}(\lambda, R) dR \quad (7)$$

Le rapport de dépolarisation linéaire est défini comme le rapport entre l'intensité de la lumière diffusée perpendiculairement à l'orientation initiale de la polarisation et l'intensité diffusée parallèlement à cette même orientation. L'importance de ce ratio réside dans sa capacité à fournir des informations sur la morphologie et la composition des aérosols, particulièrement dans les études lidar où la mesure angulaire directe n'est pas réalisable en raison de la nature de la rétrodiffusion. Le calcul de ce rapport s'établit sur les intensités mesurées dans ces deux polarisations orthogonales.

$$\delta_L = \frac{I_{\parallel}}{I_{\perp}} = \frac{I - Q}{I + Q} \quad (8)$$

L'analyse de la diffusion de la lumière occupe une place centrale dans une multitude de disciplines scientifiques, servant de pierre angulaire à la compréhension et à l'interprétation de divers phénomènes physiques. La modélisation de cette diffusion est fondamentale pour caractériser les interactions lumière-matière et repose sur un éventail de théories qui se distinguent en fonction de la taille relative des particules diffusantes par rapport à la longueur d'onde de la lumière incidente. Cette relation est quantifiée par le paramètre de taille  $X$ , défini par l'équation :

$$X = 2\pi \frac{R}{\lambda} \quad (9)$$

Où  $R$  représente le rayon moyen de la particule et  $\lambda$  est la longueur d'onde de la lumière incidente.

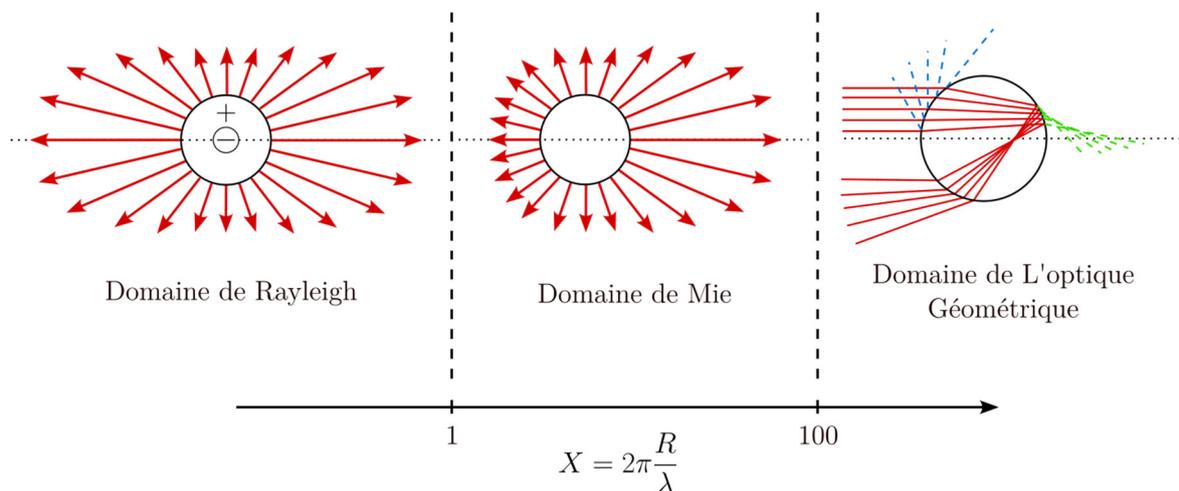


Figure 5 : Les différents domaines de diffusion en fonction du paramètre de taille : Diffusion Rayleigh (symétrique en avant et arrière), diffusion de Mie (plus prononcé vers l'avant) et optique géométrique (réflexions internes).

La Figure 5 propose une classification des régimes de diffusion se fonde sur la valeur de  $X$ . Il est possible de distinguer trois domaines principaux :

- **Diffusion de Rayleigh** ( $X \ll 1$ ) : ce régime s'applique aux particules dont le diamètre est nettement inférieur à la longueur d'onde de la lumière incidente. Il est caractérisé par une diffusion isotrope et une intensité de diffusion qui augmente avec la diminution de la longueur d'onde, ce qui explique pourquoi le ciel est bleu en journée. [64]
- **Diffusion Mie** ( $X \approx 1$ ) : ce domaine concerne les particules dont les dimensions sont comparables à celle de la longueur d'onde incidente. La théorie de Mie est principalement appliquée aux sphères, mais pour les particules non sphériques, le modèle de la T matrice est utilisé. Cette théorie est décisive pour comprendre la diffusion par des particules d'eau dans l'atmosphère, les cellules biologiques, et d'autres particules de taille similaire. [25]

- **Diffusion géométrique** ( $X \gg 1$ ) : lorsque les particules sont beaucoup plus grandes que la longueur d'onde de la lumière incidente, la diffusion dépend essentiellement de la géométrie des particules. Ce régime est semblable à la réflexion et la réfraction classiques décrites par les lois de l'optique géométrique. [65]

### 1.1. Régime de Rayleigh

Lorsque la longueur d'onde d'une onde électromagnétique est beaucoup plus élevée que la taille des particules diffusantes ( $X \ll 1$ ), on considère le champ électromagnétique à l'intérieur de la particule constant. La particule est donc considérée comme un dipôle oscillant capable de rayonner dans toutes les directions.

L'intensité lumineuse diffusée,  $I_d$ , va alors pouvoir s'écrire en fonction de l'angle de diffusion  $\Phi$ . D'après la théorie de Rayleigh, l'intensité s'écrit comme ceci [64] :

$$I_d = I_0 \frac{k^4 \alpha^2}{r^2} \sin^2(\Phi) \quad (10)$$

$I_0$  est l'intensité incidente du rayon,  $\alpha$  est le tenseur de polarisabilité de la particule, le plus souvent le matériau est isotrope et ce tenseur peut s'écrire comme un scalaire.  $r$  est la distance entre le point de diffusion et le point d'observation.  $k$  est le vecteur d'onde et s'écrit comme ceci :

$$k = \frac{2\pi n}{\lambda} \quad (11)$$

Avec  $n$  l'indice de réfraction du milieu de propagation et  $\lambda$  la longueur d'onde du laser incident. On peut relier l'angle  $\Phi$  aux deux autres angles par la formule suivante (Voir Figure 4) :

$$\sin^2(\Phi) = 1 - \cos^2(\theta) \sin^2(\phi) \quad (12)$$

La diffusion de Rayleigh joue un rôle prépondérant dans l'étude de la diffusion atmosphérique de la lumière, particulièrement dans l'application des lidars Rayleigh. Ces instruments sont spécifiquement conçus pour mesurer des paramètres atmosphériques tels que la température et la vitesse du vent, en se focalisant sur les interactions lumière-matière avec les molécules présentes dans l'atmosphère. Dans ce contexte, les lidars Rayleigh exploitent le phénomène de diffusion de Rayleigh pour détecter et analyser les molécules atmosphériques. La lumière diffusée par ces particules moléculaires fournit des informations sur la composition, la température et les mouvements de l'air dans l'atmosphère. Par exemple, en mesurant le décalage Doppler des signaux diffusés, il est possible de déduire la vitesse des masses d'air [66].

### 1.2. Régime de Mie

#### a. Cas sphérique

Une solution généralisée et valable pour n'importe quel diamètre de particule est la théorie de Lorentz-Mie. Celle-ci s'applique avec certaines hypothèses au préalable :

- La lumière incidente est monochromatique.
- La particule est sphérique de rayon  $R$ , homogène, isotrope, d'indice  $m_p = n_p + i n_p'$ .

- Le milieu de dispersion est non absorbant d'indice  $m_d = n_d$
- La diffusion se fait par une particule unique.

En conservant le même système de coordonnées que pour la diffusion de Rayleigh, la théorie de Lorentz-Mie montre que les intensités partielles diffusées sur les axes  $\theta$  et  $\phi$  sont [25] :

$$\begin{pmatrix} I_\theta \\ I_\phi \end{pmatrix} = \frac{1}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} |S_1|^2 \cos^2(\phi) \\ |S_2|^2 \sin^2(\phi) \end{pmatrix} \quad (13)$$

Les fonctions  $S_i$  s'écrivent :

$$S_1 = \sum_{j=1}^{\infty} \frac{2j+1}{j(j+1)} [a_j \pi_j(\cos\theta) + b_j \tau_j(\cos\theta)] \quad (14)$$

$$S_2 = \sum_{j=1}^{\infty} \frac{2j+1}{j(j+1)} [a_j \tau_j(\cos\theta) + b_j \pi_j(\cos\theta)] \quad (15)$$

a et b sont des coefficients de diffusion dépendant de la longueur d'onde, du diamètre de la particule et de l'indice de la particule.  $\tau_j$  et  $\pi_j$  sont des fonctions définies en fonction des polynômes associés de Legendre [25].

$$\pi_j(\cos\theta) = \frac{P_j^1(\cos\theta)}{\sin\theta} \quad (16)$$

$$\tau_j(\cos\theta) = \frac{d}{d\theta} P_j^1(\cos\theta) \quad (17)$$

### **b. Cas non sphérique**

La méthode de la matrice de transition, communément désignée par le nom T-matrix, constitue une approche analytique avancée pour modéliser la diffusion de la lumière par des particules non sphériques, spécifiquement des sphéroïdes. Un sphéroïde peut être décrit comme une ellipse qui, lorsqu'elle est révolutionnée autour de l'un de ses axes, génère une forme tridimensionnelle, appelée ellipsoïde, caractérisée par un petit et un grand axe. Cette technique permet d'élaborer les champs électriques incidents et diffusés avec les fonctions d'onde vectorielle sphérique (Spherical Vector Wave Functions, SVWF). Ces fonctions trouvent également leur application dans la théorie de la diffusion de Mie, soulignant la présence de deux ensembles de solutions linéairement indépendantes, désignées par les paires (M1, N1) et (M3, N3), respectivement identifiées comme les SVWF régulières et les SVWF propagatrices [26]

Mathématiquement, le champ électrique incident,  $E^{inc}(R)$ , et le champ électrique diffusé,  $E^{sca}(R)$  peuvent être exprimés comme suit :

$$E^{inc}(R) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [a_{mn} M_{mn}^1(kR) + b_{mn} N_{mn}^1(kR)] \quad (18)$$

$$E^{sca}(R) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [p_{mn} M_{mn}^3(kR) + q_{mn} N_{mn}^3(kR)] \quad (19)$$

où les coefficients  $a_{mn}$ ,  $b_{mn}$ ,  $p_{mn}$  et  $q_{mn}$  sont reliés par la matrice T selon l'équation suivante :

$$\begin{pmatrix} a_{mn} \\ b_{mn} \end{pmatrix} = T \begin{pmatrix} p_{mn} \\ q_{mn} \end{pmatrix} \quad (20)$$

Cette relation illustre le principe fondamental de la méthode T-matrix, qui étend la théorie de Mie aux particules sphéroïdales. L'avantage principal de cette méthode réside dans sa capacité à être déterminée uniquement par la forme et le matériau des particules, nécessitant un unique calcul par particule [26]. Cette caractéristique distingue avantageusement la T-matrix d'autres approches, telles que la théorie généralisée de Lorentz-Mie (GLMT), qui requiert des expansions complètes du champ électromagnétique pour chaque particule [67]. Actuellement, la méthode T-matrix facilite le développement de nouvelles techniques de modélisation et permet d'intégrer la non-sphéricité des particules dans les modèles lidar, une amélioration significative par rapport aux méthodes traditionnelles basées principalement sur la simplification géométrique de la théorie de Mie [68,69].

En parallèle, la méthode d'approximation des dipôles discrets (Discrete Dipole Approximation, DDA) représente une technique de simulation numérique plus généralisée pour la diffusion de la lumière par des objets de formes arbitraires. Cette méthode relève de l'approche par éléments finis, qui divise la géométrie d'un objet en un ensemble fini de volumes (tels que des tétraèdres ou des cubes) et modélise le comportement de chaque élément de manière discrète. Spécifiquement dans le contexte de la DDA, la géométrie d'une particule est subdivisée en dipôles qui interagissent avec la lumière, nécessitant la résolution des équations de Maxwell pour chaque dipôle et la propagation des faisceaux diffusés aux dipôles adjacents. Il est important de noter que l'efficacité de cette méthode est inversement proportionnelle au nombre de dipôles, rendant son application idéale pour les particules de petit diamètre ou dans le cadre de ressources de calcul substantielles [30,70].

### 1.3. Régime de l'optique géométrique

Lorsque la particule a une taille bien plus grande que la longueur d'onde du faisceau incident, le régime de diffusion associé est celui de l'optique géométrique. Ce domaine va traiter la diffusion comme un phénomène de réflexion/réfraction multiple au sein de la particule en appliquant les équations de réflexion/réfraction de l'optique géométrique. Ici, les faisceaux sont traités de manière purement géométrique et non pas ondulatoire comme pour le domaine de Rayleigh ou Mie. Pour simplifier les explications, ici, nous allons développer les calculs pour une particule sphérique, car la géométrie de la particule est bien connue et les réflexions internes peuvent facilement être considérées. Pour simplifier les équations, on ne va parler que de l'angle de diffusion  $\theta$  et donc se placer dans un domaine géométrique en deux dimensions. Pour le développement théorique, nous allons nous inspirer de l'article de W. Glantschnig portant sur le calcul théorique de la diffusion par des gouttelettes d'eau dans le domaine de l'optique géométrique [65].

Considérons un faisceau incident heurtant une sphère avec un angle d'incidence  $\theta_i$ , ce même faisceau est donc partiellement réfléchi et réfracté de manière répétée au sein de la sphère. Pour décrire ces multiples transformations, on va associer un angle de réfraction  $\theta_N(\theta_i)$  dépendant de l'angle d'incidence du faisceau incident avec N correspondant à la N-ième interface d'interaction entre le faisceau et l'interface air-sphère.

$$\theta_N(\theta_i) = 2(N - 1)\theta_r - 2\theta_i - (N - 2)\pi \quad (21)$$

Les lois de Snell-Descartes s'appliquent, on a donc  $\sin(\theta_i) = m \cdot \sin(\theta_r)$  ou m correspond à l'indice de réfraction du matériau de la sphère.

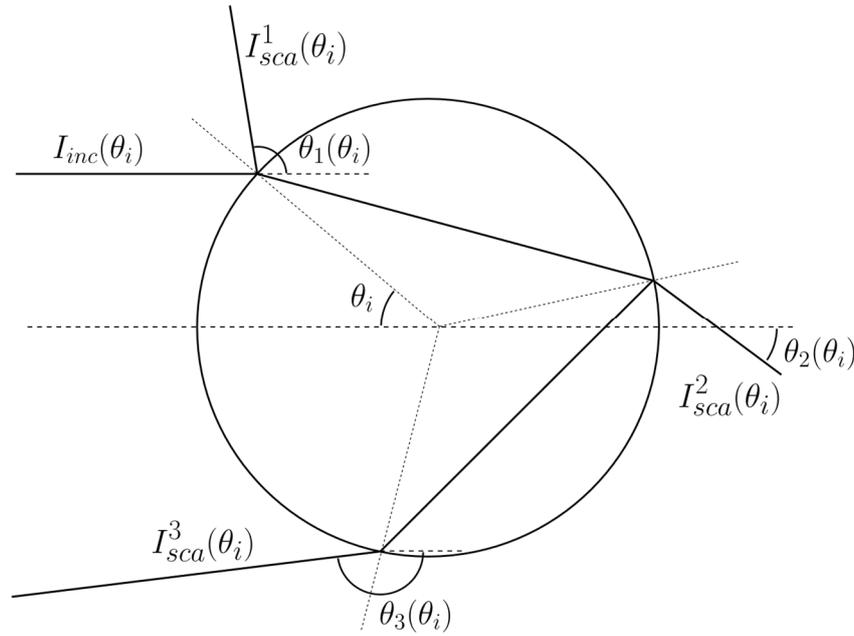


Figure 6 : Schéma des réflexions et réfractions multiples au sein d'une interface air-sphère avec un faisceau incident  $I_{inc}(\theta_i)$ .

On va donc pouvoir par la suite définir l'intensité d'un faisceau sortant de la sphère à la N-ième interface, dépendant de  $I_0$  l'intensité initiale,  $R/d$  le rapport du rayon de la sphère et la distance d'observation, de l'indice de réfraction de la sphère  $m$  et de l'angle d'incidence  $\theta_i$ .

$$I_{sca,j}^{(N)}(I_0, R/d, m, \theta_i) = I_0 \left(\frac{R}{d}\right)^2 \alpha_j^{(N)}(m, \theta_i) G^{(N)}(m, \theta_i) \quad (22)$$

Ici  $j$  représente la polarisation du faisceau 1 pour la polarisation horizontale et 2 pour la verticale.  $G^{(N)}(m, \theta_i)$  est la divergence et considère l'influence de la forme sur la dispersion angulaire des faisceaux. Dans notre cas :

$$G^{(N)}(m, \theta_i) = \frac{\sin \theta_i \cos \theta_i}{\sin \theta_N(\theta_i)} \times \left| \frac{\sqrt{m^2 - \sin^2 \theta_i}}{2[(N - 1)\cos \theta_i - \sqrt{m^2 - \sin^2 \theta_i}]} \right| \quad (23)$$

Bien entendu, chaque faisceau perd en puissance à chaque réflexion/réfraction sur l'interface sphère-air et cela est estimé avec les coefficients  $\alpha_j^{(N)}(m, \theta_i)$

$$\begin{aligned} \alpha_1^{(1)} &= r_1^2 && \text{for } N = 1, \\ \alpha_2^{(1)} &= r_2^2 \\ \alpha_1^{(N)} &= [(1 - r^2)(-r_1)]^{(N-2)/2} && \text{for } N \geq 2, \\ \alpha_2^{(N)} &= [(1 - r^2)(-r_2)]^{(N-2)/2} \end{aligned} \quad (24)$$

Avec  $r_1$  et  $r_2$  les coefficients de réflexion de Fresnel :

$$r_1 = \frac{\cos \theta_i - m \cos \theta_r}{\cos \theta_i + m \cos \theta_r}, \quad r_2 = \frac{m \cos \theta_i - \cos \theta_r}{m \cos \theta_i + \cos \theta_r} \quad (25)$$

Ce calcul de  $I_{\text{scat},j}^{(N)}$  doit être fait pour beaucoup de faisceaux incidents et plusieurs réflexions doivent être prises en compte pour bien déterminer la fonction de phase sur tous les angles de diffusion, on peut donc imaginer que cette technique de calcul en optique géométrique reste très couteuse en termes de calculs, et ainsi de temps de calculs. De plus, ici, le développement n'a été réalisé que pour une sphère. Cependant, un calcul de « lancer de rayon » pour des objets complexe 3D peut aussi être réalisé [71]. Les méthodes de modélisation optique, fondées sur les principes de l'optique géométrique, se révèlent particulièrement pertinentes pour l'analyse de particules de grande taille, dont le diamètre excède largement la longueur d'onde de la lumière incidente. Dans le contexte spécifique du lidar atmosphérique, les cristaux de glace représentent une catégorie de particules d'un intérêt majeur en raison de leurs propriétés physiques et de leur rôle dans les processus atmosphériques. Ces cristaux, se formant au sein des nuages, contribuent à des formations nuageuses spécifiques, telles que les cirrus et les cirrostratus, caractérisées par leur haute altitude et leur composition principalement glacée. L'étude des cristaux de glace dans l'atmosphère terrestre est déterminante, notamment en raison de leur capacité à influencer le bilan radiatif de la planète. En effet, ces particules jouent un rôle significatif dans le phénomène de piégeage des radiations infrarouges émises par la surface terrestre, un processus fondamental dans la dynamique du système climatique global. De plus, les cristaux de glace sont à l'origine de phénomènes optiques particuliers, tels que les halos, résultant de la diffusion de la lumière à travers ces particules. L'analyse lidar des cristaux de glace contribue de manière significative à notre compréhension des processus climatiques et atmosphériques [72,73].

## 2. Holographie numérique

L'holographie est une méthode de mesure d'interférence par un objet et une onde de référence. Contrairement aux méthodes d'imageries classiques, qui ne permettent d'enregistrer que l'intensité lumineuse en provenance d'un objet, l'holographie permet non seulement de connaître l'amplitude, mais également la phase de l'onde diffusée par l'objet. Cette méthode a été inventée par Dennis Gabor en 1948 [74] et est constituée de deux étapes différentes, une partie enregistrement de l'hologramme et une étape de reconstruction de l'image de l'objet diffusant.

Initialement développée avec l'ambition de permettre l'enregistrement d'objets tridimensionnels sur une surface bidimensionnelle, cette technologie visait également à

reconstruire ces objets pour une observation postérieure de leur représentation virtuelle. L'objectif principal était donc de capturer la complexité d'un objet en trois dimensions sur un plan, tout en offrant la possibilité d'une visualisation ultérieure détaillée et précise. L'avènement et la démocratisation des capteurs numériques ont marqué un tournant pour l'holographie, lui permettant de dépasser les limitations précédemment rencontrées. Grâce à ces progrès technologiques, l'holographie numérique a trouvé une application dans le domaine de la mesure microscopique. Cette nouvelle méthode, caractérisée par l'absence d'optique avec un champ de vision extrêmement réduit, a ouvert la voie à des avancées significatives. Elle a notamment facilité l'analyse dans des domaines spécialisés tels que la microfluidique et l'étude de particules [75–79].

## 2.1. Construction de l'hologramme d'une particule

La première étape consiste à enregistrer l'interférence entre une onde diffusée par la particule et l'onde transmise qui n'a pas interagi avec celui-ci. Cet enregistrement peut se faire grâce à un capteur matriciel (CCD, CMOS...), on parlera ainsi d'holographie numérique. Une fois l'hologramme enregistré, l'image de l'objet peut être reconstituée en éclairant à nouveau la plaque photosensible avec l'onde de référence, dans le cas de l'holographie classique, pour l'holographie numérique cette étape se fait uniquement par le calcul pour retrouver l'intensité et la phase de l'onde projetée par l'objet. Pour mesurer un hologramme, il faut tout d'abord deux ondes de mêmes longueurs d'onde, préférablement issues de la même source, l'onde diffusée par l'objet  $E_S(x, y)$  et l'onde de référence  $E_R(x, y)$  qui n'a pas interagi avec celui-ci. Ces deux ondes vont ainsi créer des interférences lorsqu'elles se rencontrent après diffusion. Ces interférences sont directement enregistrées sur un capteur matriciel placé derrière l'objet, on parle d'holographie en transmission lorsque l'onde de référence est orthogonale au capteur et est la partie transmise qui n'a pas interagi avec l'objet.

Le champ électromagnétique total au niveau du plan de l'hologramme s'écrit comme ceci :

$$E_{holo}(x, y) = E_R(x, y) + E_S(x, y) \quad (26)$$

Ainsi, l'intensité enregistrée par le capteur s'écrit :

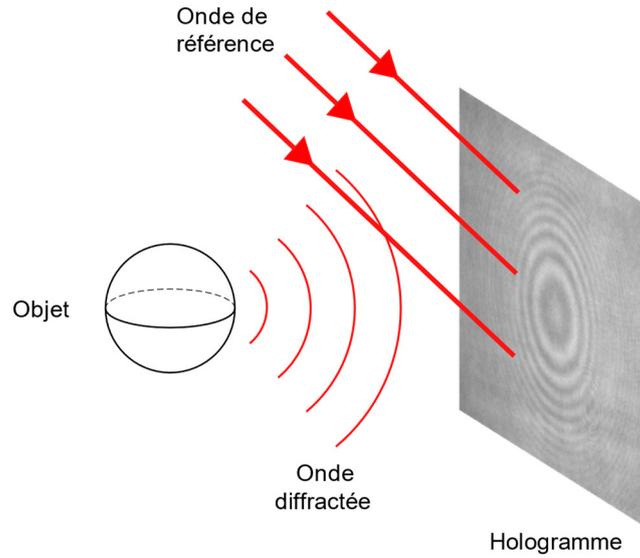


Figure 7 : Enregistrement de l'hologramme qui est le résultat de l'interférence entre l'onde de référence et l'onde diffractée par l'objet

$$I_{holo}(x, y) = |E_R(x, y) + E_S(x, y)|^2 = [E_R(x, y) + E_S(x, y)][E_R(x, y) + E_S(x, y)]^* \quad (27)$$

Avec les intensités de chaque partie de l'onde diffusée et de référence, on peut développer l'expression comme :

$$I_{holo}(x, y) = I_R(x, y) + I_S(x, y) + E_R(x, y)E_S^*(x, y) + E_S(x, y)E_R^*(x, y) \quad (28)$$

$$\text{Avec} \quad I_R(x, y) = |E_R(x, y)|^2 \quad \text{et} \quad I_S(x, y) = |E_S(x, y)|^2 \quad (29)$$

Ici l'information de phase n'est présente que dans les termes croisés  $E_R(x, y)E_S^*(x, y)$  et  $E_S(x, y)E_R^*(x, y)$  puisqu'ils sont proportionnels aux champs  $E_S$  et à son complexe  $E_S^*$ . En holographie en ligne classique, les termes croisés se superposent et ne permettent donc pas une extraction des informations sur la phase. Une méthode permet de séparer ces deux termes, l'holographie hors axe qui sépare ces éléments spatialement sur l'hologramme.

## 2.2. Reconstruction numérique de l'image d'une particule

Une fois l'hologramme enregistré sur la plaque photosensible ou le capteur matriciel, il est nécessaire d'éclairer cette surface avec l'onde de référence initiale en simulant cet éclairage par le calcul. C'est le principe de l'holographie numérique. Le support photosensible a mesuré les variations d'intensités dues aux interférences entre l'onde transmise et diffusée. Sa transmission  $T$  est donc proportionnelle au faisceau de référence original et s'écrit alors comme ceci :

$$T(x, y) \propto I_S(x, y) + I_R + E_S(x, y)E_R^* + E_S^*(x, y)E_R \quad (30)$$

Pour simplifier l'écriture,  $I_R$  et  $E_R$  ne sont plus dépendants des coordonnées  $(x,y)$  car l'onde de référence est considérée comme plane et homogène, cette hypothèse nécessite tout de même la calibration avec une image d'un objet étalon car l'onde n'est jamais parfaitement plane. Pour reconstituer l'image de l'objet diffusant, il est nécessaire d'éclairer l'hologramme avec la même source, la source de référence  $E_R$ . L'hologramme va agir comme un réseau de diffraction sûr  $E_R$  et va générer trois ordres :

$$E_H(x, y) = T(x, y) \times E_R = \underbrace{(I_S(x, y) + I_R)E_R}_{\text{ordre 0}} + \underbrace{E_S(x, y)|E_R|^2}_{\text{ordre +1}} + \underbrace{E_S^*(x, y)E_R^2}_{\text{ordre -1}} \quad (31)$$

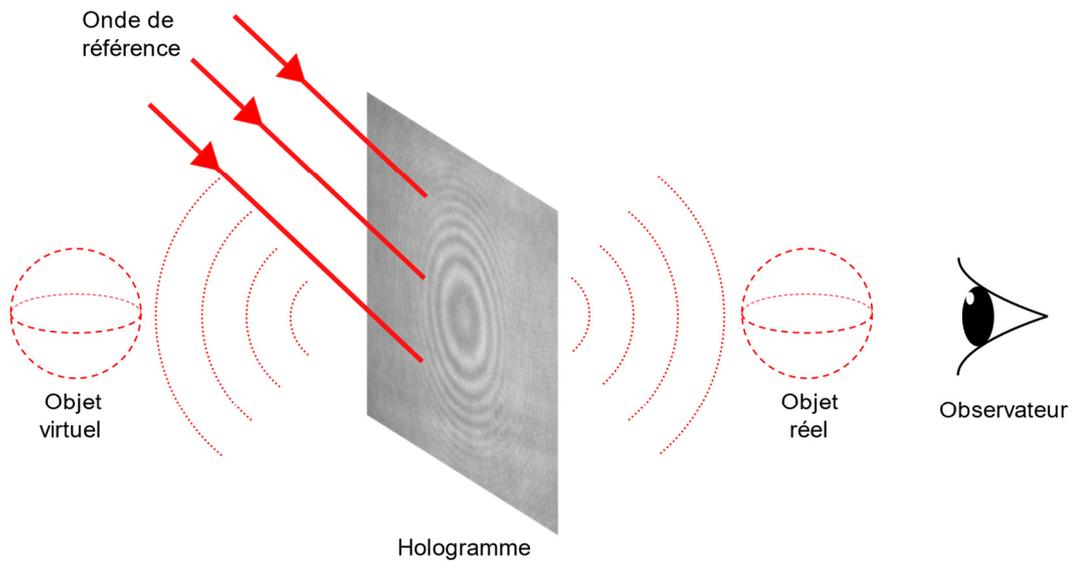


Figure 8 : Formation de l'image de l'objet en rééclairant l'hologramme avec l'onde de référence

L'ordre 0 est le champ de référence modulé par  $I_S$  et  $I_R$ , l'ordre +1 est proportionnel au champ  $E_S$  encapsulant ainsi les informations relatives à l'intensité et à la phase de l'objet observé. C'est précisément cet ordre de diffraction qui permet à un observateur, positionné face à l'onde incidente, de percevoir l'image virtuelle de l'objet diffusant. Cette caractéristique est fondamentale pour la visualisation et l'analyse holographique, permettant de recréer une représentation tridimensionnelle de l'objet. L'ordre -1, proportionnel à  $E_S^*$ , génère une image symétrique à celle de l'ordre +1 dans le plan de l'objet. Cette symétrie se manifeste au niveau de la position originelle de l'objet lors de l'enregistrement holographique, offrant ainsi une perspective inversée de la scène capturée. Dans la configuration de Gabor ou in-line holography (éclairage orthogonal à la surface photosensible), les trois ordres se superposent. Cela peut être un problème si on ne souhaite observer que l'ordre +1. Une configuration avec un éclairage de référence oblique (Figure 8) hors de l'axe optique existe et permet de séparer spatialement les trois ordres de diffraction.

La reconstruction numérique consiste à simuler l'éclairage de l'hologramme, tout d'abord enregistré en tant qu'image numérique. Pour réaliser la propagation de l'onde lumineuse, on utilise l'équation de Rayleigh-Sommerfeld qui permet de connaître l'intensité lumineuse au niveau d'un plan  $E(x, y, z)$  (champ électrique au point  $z$ ) si on connaît le champ au niveau du plan initial  $E(x', y', 0)$  (Figure 9). En d'autres termes cette équation permet de simuler la propagation d'une onde d'un plan à un autre, les équations détaillées sont expliquées dans l'ouvrage de J. W Goodman [80].

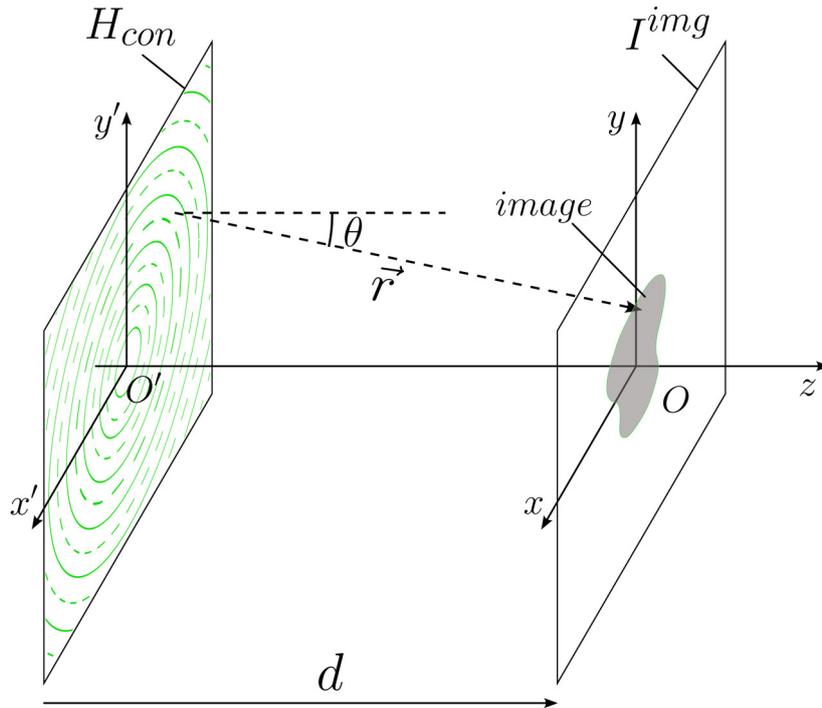


Figure 9 : Calcul de l'image de la particule en  $(x,y,d)$  à partir de l'hologramme de contraste  $H_{con}$  en  $(x',y',0)$ . Chaque point de l'image de  $H_{con}$  est transposé en  $d$  avec l'équation 32 pour former l'image de la particule.

$$E(x, y, z) = \frac{1}{i\lambda} \iint_{\Sigma} E(x', y', 0) \frac{e^{ikr}}{r} K(\theta) dx' dy' \quad (32)$$

$K(\theta)$  est l'angle entre le vecteur  $\vec{r}$  et l'axe  $\vec{O}_z$  et est appelé le facteur d'obliquité. Dans l'approximation de Rayleigh-Sommerfeld,  $K(\theta) = \cos(\theta)$  [80] et en considérant que  $d$  est très grand  $\cos(\theta) \approx 1$ .

L'équation (32) peut être résolue comme telle, mais cela peut être coûteux en temps de calculs, des méthodes ont été développées pour reconstruire un hologramme à partir de cette équation, et donc générer une image des intensités lumineuses à partir du champ électrique connu et éloigné d'une distance  $d$  du plan de reconstitution.

Nous allons maintenant présenter les méthodes de reconstruction, visant à optimiser le traitement des données tout en minimisant les coûts computationnels associés. L'objectif de ces méthodes est de résoudre efficacement l'équation 32. Dans ce contexte, deux approches principales ont été développées, chacune adaptée à des contraintes spécifiques liées à la distance séparant l'objet de l'hologramme du capteur :

### **Méthode transformation de Fresnel :**

- Cette technique tire parti de l'approximation de Fresnel pour simplifier le processus de reconstruction, le capteur est considéré comme éloigné de l'objet pour simplifier le calcul de la distance  $\vec{r}$ .
- **Avantages :** Particulièrement bien adaptée pour les configurations dans lesquelles la distance entre l'objet et le capteur est grande [81].
- **Limites :** Approximation sur la distance  $r$  ne fonctionne pas lorsque le capteur est trop proche de l'objet étudié.

### **Méthode du spectre angulaire :**

- La seconde méthode abordée est la reconstruction par spectre angulaire, cette technique s'appuie sur la décomposition d'une onde en somme d'ondes planes.
- **Avantages :** Cette technique n'utilise pas d'approximations sur la distance  $\vec{r}$ . Très adaptée aux distances capteur/objet faible.
- **Limites :** Une grande distance de reconstruction est impossible. En effet, l'échantillonnage de la fonction de transfert peut introduire des erreurs significatives dans ces cas [82], restreignant ainsi l'applicabilité de cette approche à des scénarios dans lesquels l'objet et le capteur sont relativement proches l'un de l'autre.

#### ***a. Méthode de Fresnel***

La première méthode de reconstruction est établie sur une approximation de la distance  $r$ , pour se faire la première approximation est d'estimer que le capteur est éloigné de l'objet diffractant pour estimer que la taille du capteur est petite devant cette distance, et donc  $z$  est très grand devant  $x$  et  $y$ . Plus précisément, la distance devant respecter cette inéquation [83] :

$$z^3 \gg \frac{1}{8\lambda} [(x - x')^2 + (y - y')^2]_{max}^2 \quad (33)$$

Si cette condition est respectée, on peut écrire  $r$  sous la forme d'une série de Taylor d'après [84] :

$$r \simeq z \left( 1 + \frac{1}{2} \left[ \left( \frac{x - x'}{z} \right)^2 + \left( \frac{y - y'}{z} \right)^2 \right] \right) \quad (34)$$

Ensuite, on remplace  $r$  dans l'équation 32 de manière à obtenir l'équation suivante :

$$E(x, y, z) = \frac{\exp(i2\pi z/\lambda)}{i\lambda z} \cdot E_0 \cdot \iint_{-\infty}^{\infty} H^{con}(x', y') \exp\left\{\frac{i\pi}{\lambda z} [(x - x')^2 + (y - y')^2]\right\} \quad (35)$$

Ici,  $H^{con}(x', y')$  est l'hologramme de contraste, la différence entre l'image enregistrée avec particule  $I^{holo}$  et la référence sans particule  $I^{ref}$ ,  $H^{con}(x', y')$  l'image mesurée représentant  $E(x', y', 0)$ . En suivant [84] on peut définir E sous forme d'une convolution :

$$E(x, y, z) = E_0 \cdot [H^{con} \otimes h](x, y, z) \quad (36)$$

Avec

$$h(x, y, z) = \frac{\exp(i2\pi z/\lambda)}{i\lambda z} \exp\left\{\frac{i\pi}{\lambda z} [x^2 + y^2]\right\}. \quad (37)$$

D'après le théorème de convolution, l'équation 32 peut être calculée avec la transformée de Fourier inverse du produit des transformés des deux fonctions.

$$E(x, y, z) = E_0 \cdot \mathcal{F}^{-1}[\mathcal{F}(H^{con}) \cdot \mathcal{F}(h)](x, y, z) \quad (38)$$

Ces méthodes sont principalement établies à partir des calculs de « fast Fourier transform » FFT qui permet de calculer des transformées de Fourier de manière discrète et optimisée permettant de réduire considérablement le temps de calcul [85], [86].

### **b. Méthode du spectre angulaire**

La reconstruction par spectre angulaire représente une approche différente dans le domaine de l'holographie numérique, se démarquant par son absence d'approximation, contrairement à la méthode de Fresnel. Cette technique s'appuie sur le principe du spectre d'onde plane, une méthode qui postule qu'une onde arbitraire peut être décomposée en une somme d'ondes planes. Cette méthode est axée sur la fréquence angulaire [83,87] contrairement à la précédente, axée sur la fréquence spatiale. Cette dernière est essentiellement représentée par les cosinus directeurs, intégrés dans la formulation du vecteur d'onde suivant :

$$\vec{k} = \frac{2\pi}{\lambda} (\cos \varphi \sin \theta, \sin \varphi \cos \theta, \cos \theta) \quad (39)$$

Dans un espace de Fourier, les coordonnées peuvent se décrire ainsi

$$\cos \varphi \sin \theta = \lambda u \quad (40)$$

et

$$\sin \varphi \cos \theta = \lambda v \quad (41)$$

L'onde de sortie complexe issu de l'hologramme est propagée jusqu'au plan de reconstruction en partant de l'équation 32 et en appliquant la nouvelle formulation de  $k$  dans l'espace de Fourier, eq. 38.

$$E(x, y) = \mathcal{F}^{-1}\{\mathcal{F}[H^{con}(x', y')]\exp[-\frac{2\pi iz}{\lambda}\sqrt{1 - (\lambda u)^2 - (\lambda v)^2}]\} \quad (42)$$

À noter que

$$(\lambda u)^2 + (\lambda v)^2 \leq 1 \quad (43)$$

L'équation 43 nous indique que les fréquences dans l'espace de Fourier ne peuvent pas dépasser une certaine valeur et cela agit donc comme un filtre passe bas lors de la reconstruction de l'hologramme.

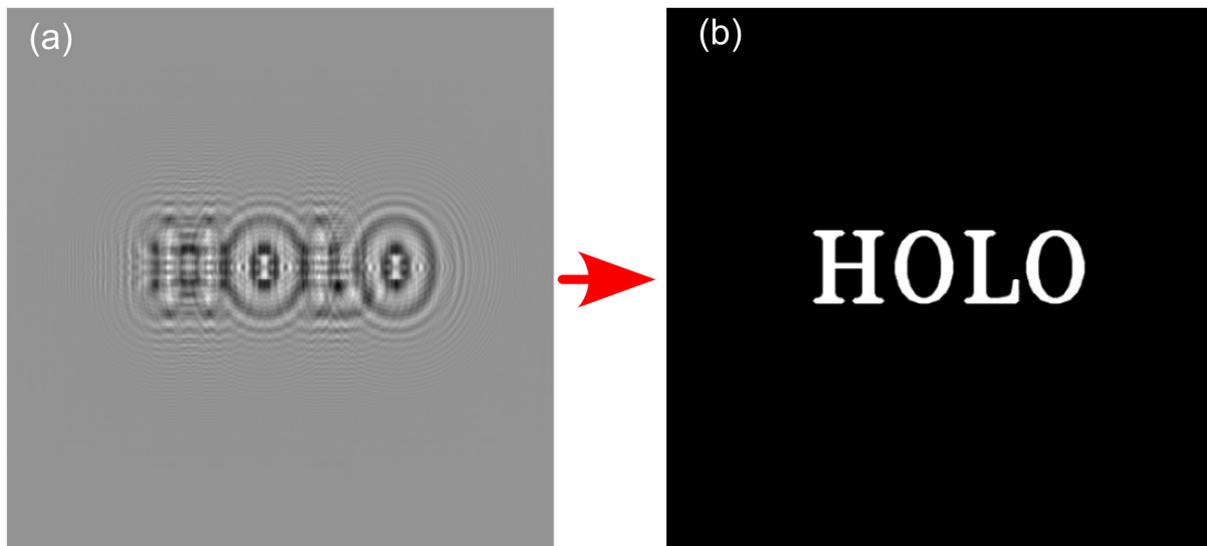


Figure 10 : Hologramme simulé du mot « HOLO » (a) et sa reconstruction (b) avec le modèle de spectre angulaire.

## II. État de l'art sur les dispositifs de mesure

### 1. Diffusion

L'objectif est ici de proposer un état de l'art sur les divers instruments de mesure de la diffusion de la lumière, aussi appelé diffusiomètre ou *scatterometer* en anglais. On retrouve aussi le terme de néphélogétries dans la littérature en référence aux instruments de diffusion angulaire.

Comme introduit précédemment, la variété des fonctionnalités de ces instruments est vaste. Par conséquent, cet état de l'art se focalisera sur les aspects distinctifs de ces instruments : les sources, l'échantillonnage et les capteurs. Ces trois éléments constituent les composantes fondamentales de tout instrument de mesure de diffusion, encapsulant les phases critiques du processus de mesure. Dans la section dédiée aux sources, l'attention sera portée sur les systèmes de génération de lumière, en mettant l'accent sur les gammes de longueurs d'onde exploitées. Cette exploration permettra de comprendre comment les différentes sources lumineuses

influencent les capacités et les limites des mesures de diffusion. Concernant l'échantillonnage, l'analyse se penchera sur la préparation et la manipulation des particules pour leur étude. Cette étape est importante pour garantir la fiabilité et la précision des mesures, et différentes méthodologies d'échantillonnage seront examinées pour identifier les meilleures pratiques en fonction des objectifs de recherche spécifiques. Enfin, la partie consacrée aux capteurs examinera les divers types de détecteurs utilisés pour capturer les données de diffusion. Cette section mettra en lumière les contextes d'utilisation de chaque capteur, offrant ainsi une vue d'ensemble des outils disponibles pour la mesure de la diffusion lumineuse et permettant de sélectionner le plus adapté en fonction de la nature de l'expérience.

### 1.1. Sources lumineuses

Dans le domaine de la diffusion de lumière par les particules, la sélection des sources lumineuses est déterminante, car elle détermine les observations spécifiques à réaliser. Par exemple, différentes longueurs d'onde permettent d'observer des phénomènes distincts, tels que la diffusion liée à la dimension de particules ou de groupes de particules [88]. À la fois, l'emploi de longueurs d'onde plus courtes, comme les rayons X, s'avère utile pour évaluer les propriétés des nanoparticules [89], ou encore les caractéristiques internes des particules, telles que leur composition [90].

#### *a. Sources non cohérentes*

Avant l'invention des lasers, les sources non cohérentes étaient largement utilisées. Parmi celles-ci, les lampes à vapeur, telles que la lampe à vapeur de mercure, pouvaient fournir une source lumineuse monochromatique non cohérente [91]. L'introduction des lasers dans les expérimentations scientifiques a progressivement remplacé ces lampes, en raison de leur puissance accrue et de leur capacité à fournir une lumière monochromatique. Toutefois, l'utilisation de lampes dans les études de diffusion de lumière, bien que réduite, demeure présente dans la littérature scientifique. Contrairement aux lasers, ces lampes offrent l'avantage de produire une lumière blanche sur un spectre étendu. À titre d'exemple, les lampes halogènes émettent de la lumière via la température élevée de la source [92], tandis que les lampes à arc électrique génèrent une lumière blanche en ionisant du xénon à l'aide d'un champ électromagnétique [93]. Les sources halogènes sont aussi utilisées pour de l'émission infrarouge avec un spectre s'apparentant à un corps noir [94]. Les méthodes d'analyse des longueurs d'onde émises par de telles sources incluent l'utilisation de spectromètres ou de systèmes de roue à filtres pour filtrer la lumière avant diffusion, permettant ainsi de sélectionner six longueurs d'ondes. Une autre source non cohérente notable est la diode électroluminescente, qui produit une lumière monochromatique, faiblement puissante et non cohérente temporellement, disponible dans une variété de longueurs d'onde. Certains néphélomètres utilisent ce type de source pour leur compacité et leur capacité à effectuer des mesures à diverses longueurs d'onde avec plusieurs LED [95].

#### *b. Lasers*

Les lasers représentent les sources lumineuses les plus couramment employées dans les études sur la diffusion de lumière. Ils offrent l'avantage de générer une lumière d'intensité élevée, fortement monochromatique, avec une dispersion spectrale minimale. Dans le spectre visible, les lasers à 532 nm sont largement utilisés [96], ainsi que les lasers à 633 nm [97,98]. D'autres

longueurs d'onde dans l'UV [42,99] ou l'infrarouge proche [100] sont également exploitées. Le choix de la longueur d'onde d'un laser dépend du paramètre de taille des particules observées et du régime de diffusion souhaité (Rayleigh, Mie ou géométrique) afin d'étudier divers paramètres physiques. Les lasers monochromatiques, grâce à leur puissance, sont essentiels pour définir les domaines de validité des instruments.

Une source d'éclairage alternative qui peut être comparée aux lasers est le laser supercontinuum [101,102]. Ce type de source est caractérisé comme un laser dont le spectre est élargi pour couvrir une gamme spectrale étendue, s'étendant de l'ultraviolet (UV) à l'infrarouge (IR). La génération d'un tel laser nécessite l'induction d'un effet supercontinuum sur une source monochromatique, le laser de pompe. Les effets supercontinuum, relevant de l'optique non linéaire, permettent d'élargir le spectre de la source de pompe grâce à divers phénomènes tels que la dispersion, l'auto modulation de phase, le mélange à quatre ondes et le décalage Raman. La combinaison de ces effets contribue à élargir le spectre initial du laser, résultant en une source à large bande couvrant l'ensemble du domaine optique, et dans certains cas, s'étendant de l'UV à l'IR.

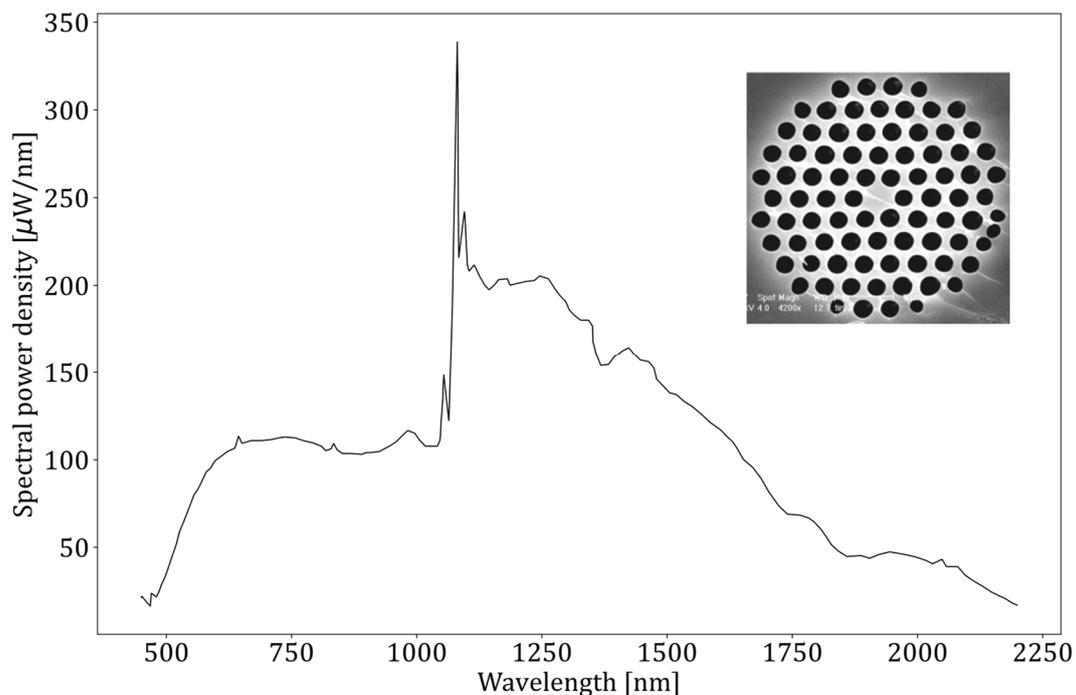


Figure 11 : Spectre produit par le laser supercontinuum, Leukos Samba-450, capable d'émettre sur une large plage spectrale allant de 450 à 2000 nm. Un exemple spécifique de fibre à cristaux photoniques, qui étend le spectre initial de 1064 nm, est illustré dans l'encart.

La technique la plus couramment employée pour générer ces effets dispersifs repose sur l'utilisation de fibres à cristaux photoniques [103]. Ces fibres se distinguent par un noyau composé de multiples micro-trous, dont la taille et l'espacement sont soigneusement définis pour produire la dispersion spectrale désirée. Aujourd'hui, des sources supercontinuum couvrant diverses gammes spectrales et offrant différentes puissances sont disponibles, ouvrant de nouvelles perspectives pour le développement d'instruments de mesure et l'étude de la diffusion lumineuse [104]. Dans le contexte des expériences de diffusion de la lumière, l'introduction du

laser supercontinuum marque une avancée notable, car il offre la possibilité de générer un spectre ciblé sur une gamme spécifique, facilitant ainsi l'analyse spectrale de la diffusion. Bien que ce type de laser maintienne une cohérence spatiale, il perd en cohérence temporelle, ce qui limite son utilisation dans des applications d'interférométrie. Néanmoins, il trouve son utilité dans diverses applications de diffusion de surface, notamment en médecine, où il présente un intérêt particulier pour la détection de cellules cancéreuses. Ces cellules, étant plus déformées que les cellules saines, offrent une signature spectrale de diffusion distincte.

Les futures applications de ce laser se concentrent principalement sur la détection de cellules cancéreuses. Dans ce cadre, l'usage du supercontinuum est couplé à un spectromètre pour capturer le spectre rétrodiffusé par les cellules analysées [105–107]. Cette approche, requérant l'analyse à de multiples longueurs d'onde, nécessite un système capable d'analyser précisément ces longueurs, tel qu'un spectromètre, ou bien l'utilisation de filtres à la source pour isoler et scanner sélectivement les longueurs d'onde désirées. Un exemple de ce dernier système est l'emploi d'un AOTF (acousto-optic tunable filter ou filtre acousto-optique ajustable) dans l'étude des cellules cutanées. Le supercontinuum, associé à un AOTF, permet de filtrer des longueurs d'onde spécifiques grâce à un cristal en vibration. La fréquence de vibration de ce cristal détermine la longueur d'onde transmise, offrant également la possibilité de modifier rapidement la longueur d'onde sélectionnée en ajustant cette fréquence [108].

## 1.2. Échantillonnage des particules

L'échantillonnage ou le conditionnement des particules est primordial dans les expériences de diffusion de la lumière. Les précédés sont dépendants du type de particules ou aérosols. Dans cette partie de l'état de l'art, seulement les aérosols seront étudiés, car c'est aussi le type de particule étudié durant la thèse. Beaucoup d'expériences concernant la diffusion de la lumière étudient les aérosols et on peut y distinguer quatre façons spécifiques de mettre en forme les échantillons.

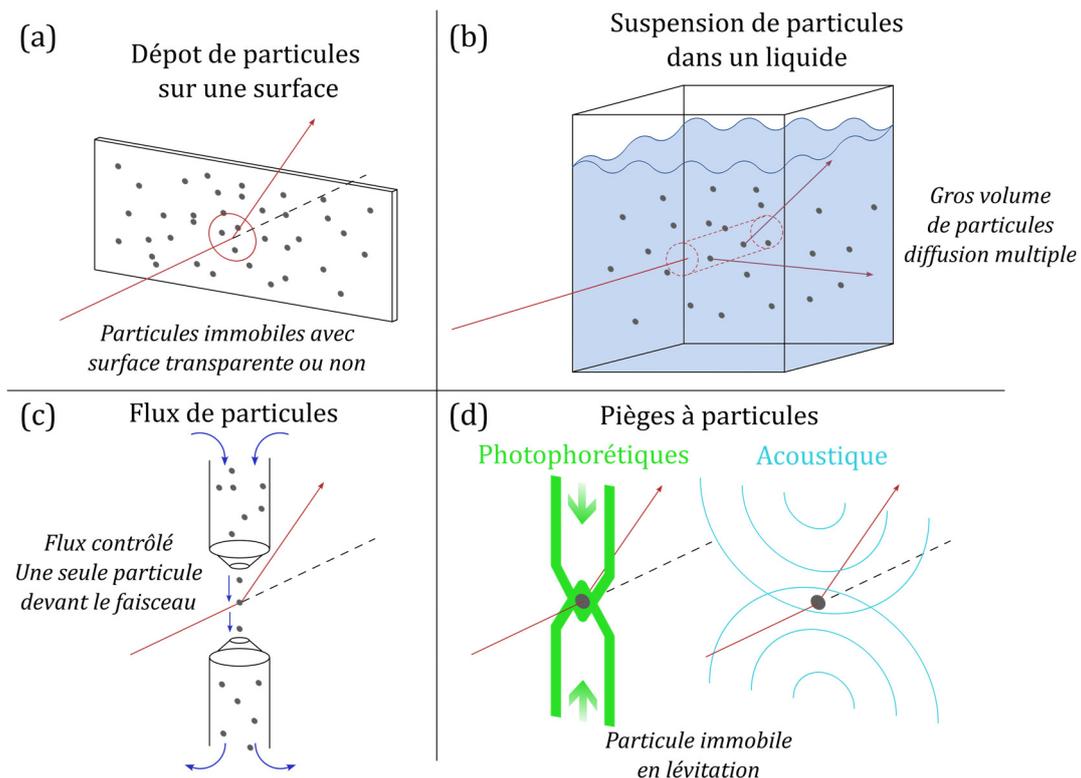


Figure 12 : Types d'échantillonnages pour l'observation de la diffusion de particules. (a) expose le dépôt de particules, (b) la suspension de particules, (c) le flux de particules et (d) les moyens de piéger/faire léviter une particule.

### a. Particules déposées

La première façon d'échantillonner les particules est de les déposer sur un substrat, une vitre de microscope ou une plaque métallique par exemple. C'est une méthode simple à mettre en place, car il suffit de déposer les particules sur une surface, dans certaines expériences l'ensemble particules/substrat est enrobé par une couche d'or pour observer l'action de l'interaction surface/particule sur la diffusion de la lumière et sur la dépolarisation des rayons [109,110]. Ces deux expériences tendent à déterminer la diffusion de la lumière par une surface rugueuse, le fait de déposer des particules permet de contrôler la rugosité de la surface. La mesure ce fait grâce à un photomultiplicateur, pour avoir l'intensité de la lumière en fonction de l'angle de diffusion, c'est la plaque d'échantillon qui tourne sur elle-même pour modifier cet angle. Ces deux expériences détectent la diffusion d'une surface bien que générée par des particules, cela a pour conséquence de ne rendre observable que la rétrodiffusion. Concernant la diffusion avant, peu d'expériences sont faites avec la méthode du dépôt de particules sur des surfaces. On peut tout de même noter cette expérience dans le domaine de l'holographie où une seule particule est déposée sur une vitre de microscope et la diffusion avant de la lumière est étudiée en plus de la reconstitution de la forme de la particule par son image holographique [44]. Ici, pour étudier l'intensité en fonction de l'angle de diffusion, un capteur CCD est utilisé. Cette technique sera mieux décrite dans une partie ultérieure, cela permet à chaque pixel de capter une valeur d'intensité pour un angle précis donné.

### **b. Suspensions de particules**

L'analyse de la diffusion de la lumière par des particules en suspension constitue une approche méthodologique permettant l'étude des interactions lumière-particule dans des milieux fluides. Cette technique repose sur l'utilisation de particules de diamètre micrométrique dispersées dans une solution. La dimension réduite de ces particules réduit considérablement leur sensibilité à la gravité, permettant ainsi leur maintien en suspension au sein du liquide. L'implémentation de cette méthode offre plusieurs avantages, notamment sa simplicité d'exécution et la possibilité de contrôler précisément l'environnement dans lequel les particules évoluent. Un facteur déterminant dans l'analyse de la diffusion de la lumière est l'indice optique du milieu, qui influence directement les équations régissant ce phénomène. Avec un milieu aux propriétés optiques bien définies et constantes, on minimise les erreurs attribuables aux variations de l'indice optique qui surviennent lorsque les particules sont en contact avec différents substrats ou interfaces. Cette approche est particulièrement avantageuse comparée aux situations où les aérosols sont déposés sur une surface, introduisant une discontinuité dans les indices optiques des milieux adjacents. Cependant, cette méthode présente également des désavantages, particulièrement concernant l'observation et l'analyse de particules individuelles. Puisque les particules restent en mouvement perpétuel au sein de la solution, il devient complexe d'isoler et d'étudier une particule unique sans qu'elle soit influencée par les mouvements des particules adjacentes. Si le fluide utilisé est de l'eau, l'application de mesure de diffusion dans le visible semble aussi compromise à cause de sa forte dispersion et absorption spectrale sur un large domaine (400-1000 nm).

Pour remédier aux limitations associées à l'analyse de particules en solution, les protocoles expérimentaux font appel à un système d'éclairage étendu, capable d'illuminer simultanément plusieurs particules au sein de la solution [111]. Cette méthode repose sur l'utilisation d'un faisceau collimaté, dont la largeur est suffisamment importante pour couvrir une zone étendue de la solution. À la suite de cette étape d'illumination, une lentille est positionnée derrière la solution en diffusion, dans le but de placer le détecteur au niveau du plan de Fourier de la diffusion. L'impact de cette configuration est double, d'une part, elle permet d'effectuer des mesures dans l'espace de Fourier associé à la diffusion lumineuse, facilitant ainsi la séparation des différents angles de diffusion sur l'image capturée. D'autre part, cette approche offre la possibilité d'obtenir une moyenne de l'intensité lumineuse diffusée en fonction de l'angle de diffusion pour l'ensemble des particules présentes dans la solution.

Il est possible aussi d'étudier la diffusion d'une seule particule en solution [112], cette méthode repose sur l'utilisation d'un faisceau laser concentré sur une zone spécifique de la solution, avec un détecteur positionné pour mesurer exclusivement la rétrodiffusion à un angle déterminé. Lorsqu'une particule traverse le faisceau laser, le détecteur enregistre des variations temporelles de l'intensité lumineuse, permettant ainsi d'analyser l'intensité de diffusion de la particule. De plus, cette technique capte le mouvement brownien des particules en solution. L'exploitation de ces données pour calculer le diamètre moyen des particules et leur indice optique est essentielle, car elle permet d'intégrer ces mesures aux équations de diffusion lumineuse pour une caractérisation optique précise.

### **c. Flux de particules dans un jet**

La méthode la plus adoptée lorsqu'il s'agit de mesurer la diffusion de la lumière sur une seule particule est la méthode du flux de particules. Cette technique consiste à émettre un jet de particules dans une direction donnée, souvent perpendiculaire au faisceau incident. Ce jet est totalement contrôlé et permet de connaître le débit de particules, et donc de savoir la fréquence à laquelle les particules interceptent le faisceau laser. Le flux de particules est fréquemment conçu pour émettre un jet d'aérosols de manière à ce qu'elles arrivent une par une sur la zone de diffusion [113,114]. Ce type d'expérience permet d'étudier les aérosols. Ce système est plus complexe à mettre en œuvre que les deux précédents, car il peut nécessiter une technologie supplémentaire qui permet de détecter lorsqu'une particule passe devant le faisceau. La plupart du temps, un photomultiplicateur est ajouté pour mesurer des intensités lumineuses de diffusion à un angle particulier [115,116]. Parfois, une seconde source lumineuse est ajoutée avec un photomultiplicateur sensible à sa longueur d'onde pour déclencher le laser et la capture des données de diffusion [117].

Certains systèmes n'utilisent pas de mode de déclenchement et capture les données en continu. Pour cela, il faut que la probabilité de rencontre entre la particule et une pulsation de la source soit faible et permette de capturer des données à faible fréquence [113]. La seconde solution est d'avoir un débit élevé de particules, avec ce système les données mesurées sont stationnaires, mais ne permettent pas d'isoler une particule [114]. On a donc une moyenne des différentes particules passant devant le faisceau lumineux. Le flux de particules est une méthode très appropriée pour mesurer la diffusion de la lumière sur des particules uniques, car il n'y a aucun élément optique qui pourrait perturber la mesure, mais c'est un système complexe qui peut difficilement être applicable dans certains domaines.

### **d. Pièges à particules**

Les pièges à particules permettent d'observer un échantillon dans un médium continu comme l'air ou une solution. L'utilisation de pièges a pour avantage de faire léviter la particule dans son milieu, ainsi l'observation est simplifiée et il n'y a pas d'erreur ou de bruit généré par un outil permettant de faire tenir la particule comme une plaque de verre par exemple. Il existe trois types de pièges à particules :

(i) les pièges *électromagnétiques*, la condition préalable est que la particule cible soit chargée, ou dans le cas d'une goutte de liquide, que les molécules constitutives soient de nature polaire. Le fonctionnement de ces pièges s'appuie sur l'utilisation conjointe de deux types de champs électriques : un champ électrique continu (DC) et un champ électrique alternatif (AC). L'interaction de la particule avec ces champs entraîne son oscillation autour d'un point d'équilibre, résultant ainsi dans son piégeage effectif [118].

(ii) les pièges *optiques*, ils fonctionnent grâce à la forte variation d'intensité lumineuse au sein d'un faisceau focalisé. La particule se retrouve piégée dans la zone où le rayon est focalisé. Cette technique fonctionne sur des particules très peu absorbantes, donc avec un indice optique imaginaire quasiment nul. Dans les expériences de diffusion de la lumière, cela nécessite ainsi deux lasers, un pour stabiliser et manipuler la particule étudiée et un pour mesurer les paramètres de diffusion. Pour focaliser le faisceau à très courte distance, un oculaire de microscope est

souvent utilisé [119,120]. Lorsque la particule devient trop absorbante, un piège optique classique comme décrit précédemment ne peut pas fonctionner dû à l'effet de photophorèse. Cet effet est causé par une température non uniforme au sein de la particule et génère une force qui peut sortir la particule d'un piège optique classique. Pour pallier ce problème, des pièges photophorétiques existent, il s'agit de créer une « capsule optique », la particule est située dans une zone sombre et est complètement entourée par une zone lumineuse [92]. Le piège est réalisé avec deux faisceaux annulaires focalisés autour d'une petite zone pour former une surface lumineuse en forme de double cône. Ce type d'expérience est complexe à mettre en œuvre et ne s'applique qu'à certains types de particules, de plus, il ne permet pas d'analyser un grand nombre de particules. Mais, ce système trouve son avantage dans la manipulation très précise des particules et les fait qu'une longue analyse peut être faite sur une même particule pour des raisons de fort temps d'intégration des données ou de scan en longueur d'onde [92] par exemple.

(iii) les pièges acoustiques représentent une autre catégorie de dispositifs de piégeage, exploitant les propriétés des ondes ultrasonores. Ce système utilise des émetteurs ultrasoniques disposés face à face, qui, lorsqu'ils opèrent à la même fréquence, génèrent des interférences, créant ainsi des zones de pression acoustique nulles entourées de zones de forte vibration. Cette configuration induit la lévitation de l'objet ciblé, permettant son maintien en position sans contact physique. Cette technique est particulièrement adaptée pour stabiliser des particules en lévitation durant les mesures de diffusion lumineuse, offrant une stabilité remarquable [121]. Néanmoins, le principal inconvénient de ce dispositif réside dans sa limitation aux particules de taille relativement grande, typiquement de l'ordre de plusieurs centaines de microns, et dans le fait qu'il ne facilite pas la mise en rotation de la particule. Une grande partie des méthodes d'échantillonnage a été décrite dans ces paragraphes, mais pour avoir une vision complète des expériences de diffusion de la lumière, il nous faut pouvoir définir les différents capteurs utilisés.

### 1.3. Configurations multi-angulaires

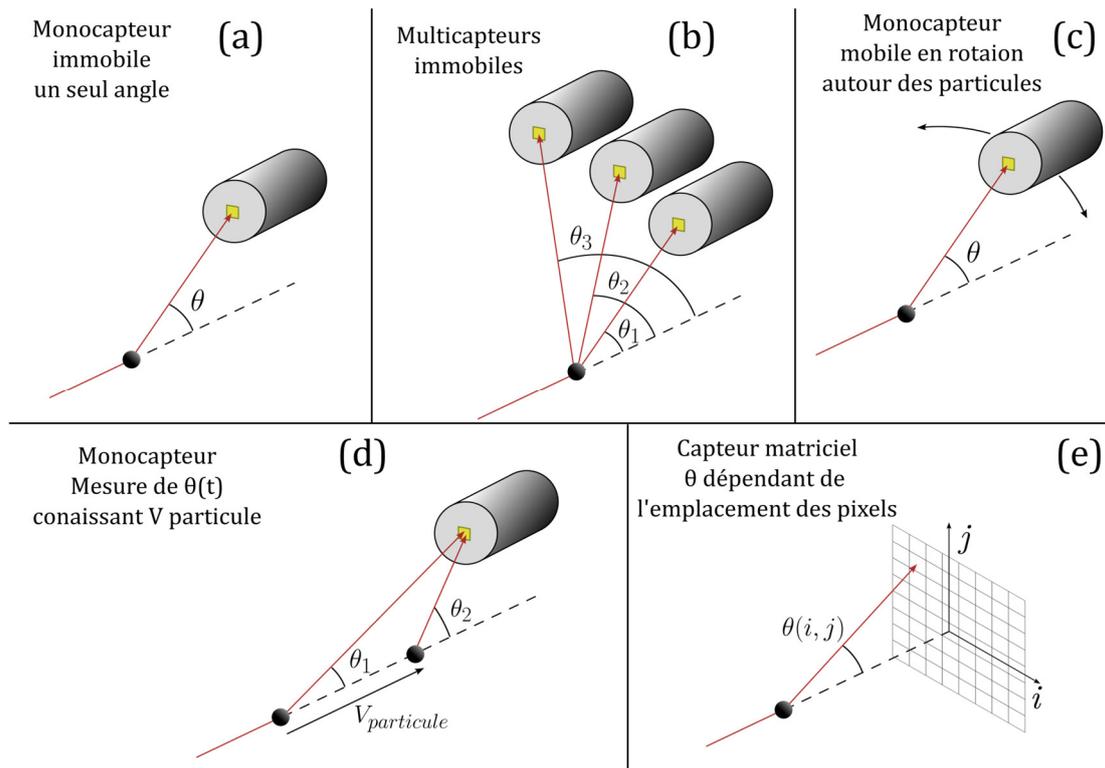


Figure 13 : méthodes employées pour l'étude de la diffusion de la lumière, où chaque sous-section (a), (b), (c), (d), et (e) démontre différentes approches utilisant un ou plusieurs capteurs pour mesurer un ou plusieurs angles de diffusion.

Les capteurs dans ce type d'expérience sont l'élément le plus important, ils permettent de transformer l'intensité d'une onde électrique en signal pouvant être lu et interprété. Pour mesurer la diffusion, les capteurs utilisés sont principalement les photomultiplicateurs et les photodiodes, et ce qui concerne la mesure d'un signal unique, des matrices CCD et CMOS sont utilisées pour étudier des signaux 2D, faire une image de la diffusion. Chaque capteur, que ce soit un mono capteur (photodiode, photomultiplicateur, APD ...) ou un pixel d'une caméra, va intégrer un signal d'intensité lumineuse sur un certain angle, solide dépendant de la configuration de l'expérience (taille du capteur, distance, échantillon capteur et éléments optique présent après la diffusion).

Tous ces capteurs peuvent être utilisés dans des conditions différentes, la méthode la plus simple qui consiste à effectuer une seule mesure pour un angle de diffusion particulier. Ces expériences peuvent paraître simples, mais avoir un signal pour un seul angle de diffusion suffit rarement à interpréter les résultats, pour avoir plus de données dans ce type d'instrument, on peut, par exemple, faire évoluer la longueur d'onde de la source, soit grâce à plusieurs lasers [122] ou une source blanche de type lampe halogène [92] ou supercontinuum [123]. Dans le cas des sources blanches, le détecteur est un spectromètre permettant de directement réaliser le graphique d'intensité en fonction de la longueur d'onde. Ces expériences sont peu courantes, car il est souvent plus simple de réaliser des mesures à différents angles de diffusion avec un laser monochromatique. En effet, une telle mesure permet de déterminer certains paramètres comme l'asphéricité des particules ou le degré de polarisation linéaire, ce qui est difficilement faisable avec une mesure unique à un angle de diffusion.

Pour déterminer la fonction de phase d'un échantillon, il faut pouvoir mesurer l'intensité lumineuse en fonction de l'angle de diffusion. Pour cela, il y a plusieurs méthodes, la première est de placer plusieurs capteurs à différents angles de diffusions connus. Cette méthode est simple, mais nécessite un étalonnage précis de chaque capteur et elle peut devenir couteuse en fonction du type de capteurs utilisés. Beaucoup de capteurs peuvent être répartis sur un même plan de diffusion pour reconstituer la fonction de phase, de 20 à 30 capteurs par plan de diffusion, donc autant de point dans la fonction de phase mesurée [124–126] (Figure 14).

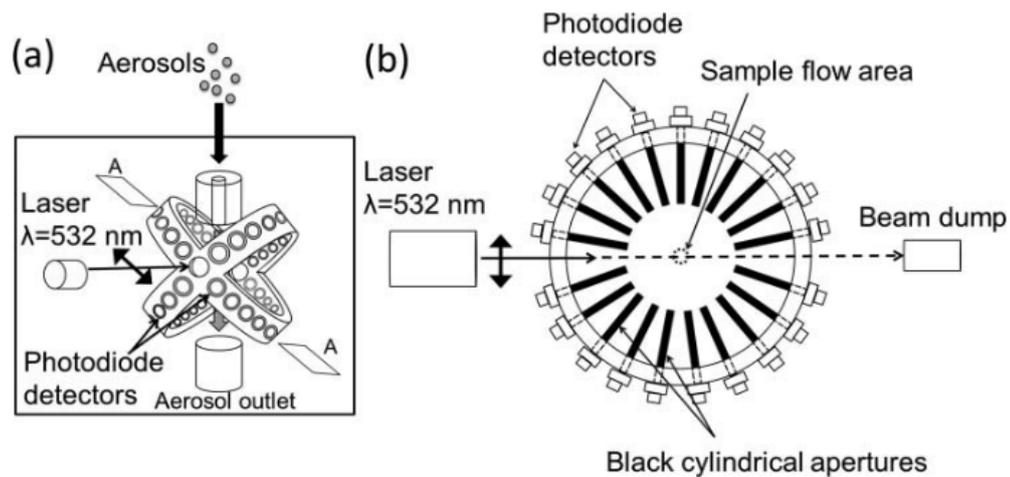


Figure 14 : Multiples photodiodes pour une mesure de fonction de phase avec différents angles de diffusion sur deux plans de diffusion différents [126]

L'intérêt des instruments multi-capteurs est la vitesse d'acquisition de la fonction de phase est quasi instantanée, et permet donc de capter un large domaine angulaire de diffusion sur des particules en mouvement. D'autres expériences utilisent le fait d'avoir plusieurs capteurs en diffusion comme l'utilisation de deux filtres de champ sombre pour n'avoir qu'un angle de diffusion particulier à mesurer pour chacun des deux capteurs [127]. Ou alors l'utilisation de deux lasers de longueur d'onde différente couplés à l'utilisation de miroirs dichroïques pour pouvoir mesurer la diffusion avant et arrière à deux longueurs d'ondes [128]. Deux capteurs sont utilisés pour la diffusion avant et deux pour la diffusion arrière à chaque fois pour les deux longueurs d'ondes initiales. Cependant, ces techniques sont limitées en résolution due aux capteurs placés de manière discrète sur une partie de la fonction de phase. La méthode la plus courante pour augmenter la résolution lors de la mesure de la fonction de phase est d'utiliser un seul photomultiplicateur monté sur un bras. Permettant ainsi de déplacer le capteur autour de l'échantillon, et donc de mesurer, et ainsi de connaître l'angle de diffusion en fonction de l'orientation du bras, les toutes premières expériences de diffusion de la lumière étaient montées de cette manière [91]. Cette façon d'étudier la diffusion de la lumière demande peu de signal dû à l'utilisation d'un photomultiplicateur et peut avoir une très bonne résolution angulaire dépendant du moteur qui fait tourner le bras [121]. Le défaut de cette expérience est le temps d'acquisition d'une seule fonction de phase qui est très lent, car il faut laisser le bras se déplacer autour de l'échantillon. Il est donc impossible d'étudier des particules en mouvement ou des changements de fonction de phase dans le temps.

Ce problème de temps d'acquisition peut être réduit grâce à des systèmes qui utilisent d'autres parties amovibles à la place du bras. Certaines expériences utilisent une roue avec une ouverture circulaire placée entre l'élément diffusant et le détecteur permettant de sélectionner l'angle de diffusion en fonction de l'orientation de cette roue [116,119]. Pour d'autres, l'élément amovible est un miroir qui en fonction de son orientation va réfléchir les rayons diffusés pour un seul angle de diffusion [129]. Ces deux méthodes permettent d'étudier des particules en mouvement et sont donc assez rapides tant que le temps de passage des particules devant le faisceau est plus court que le temps de scan de l'élément en mouvement. Enfin, une dernière méthode avec un seul détecteur consiste à mesurer la fonction de phase directement grâce au mouvement de la particule [130] (Figure 15). Un faisceau laser illumine un flux de particule dans la même direction de déplacement des particules. Les particules diffusent donc tout le long de leur trajet et un miroir sphérique permet de sélectionner l'angle de diffusion en fonction de la position de la particule le long du trajet. Il suffit de connaître précisément la vitesse des particules et ainsi, il est possible de faire correspondre le temps de trajet à l'angle de diffusion. Cette technique permet, elle aussi, de mesurer une fonction de phase pour des particules en mouvement avec un seul détecteur.

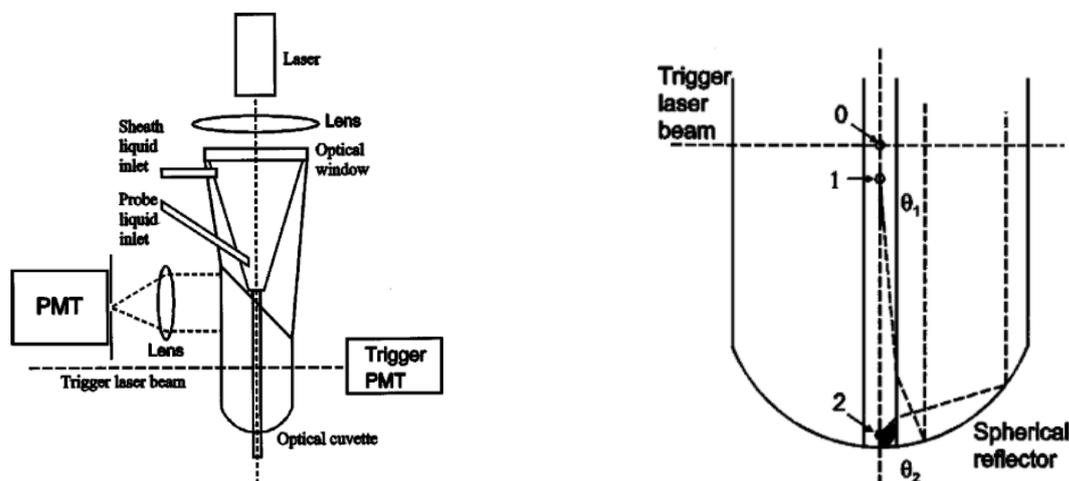


Figure 15 : Mesure de la fonction de phase avec l'angle de diffusion variant en fonction de la position de la particule dans le tube. La vitesse de la particule étant connue [130]

Les expériences mentionnées précédemment se limitent à mesurer la fonction de phase d'une particule uniquement dans un seul plan, ce qui est suffisant pour l'observation de particules sphériques ou quasi sphériques. Cependant, pour l'étude de particules non sphériques, il devient nécessaire d'observer la diffusion lumineuse hors du plan d'incidence afin de caractériser leur asphéricité [131,132]. La méthode la plus couramment utilisée pour réaliser une observation bidimensionnelle de la fonction de phase repose sur l'emploi de capteurs CCD ou CMOS. Ces dispositifs se composent de matrices de capteurs individuels (pixels) agencés sur une surface plane, généralement rectangulaire. Les capteurs CMOS, en particulier, sont dotés d'une architecture avec laquelle chaque pixel intègre une photodiode et un amplificateur, permettant ainsi la conversion des photons en charge électrique, puis en tension. À l'inverse, les capteurs CCD se caractérisent par une connexion commune de tous les pixels à un même substrat de silicium,

avec un transfert de charge électrique d'un pixel à l'autre. Un avantage notable des capteurs CMOS réside dans leur compatibilité avec divers semi-conducteurs autres que le silicium, ce qui les rend aptes à détecter des longueurs d'onde situées au-delà du spectre visible. Cette particularité est très utile dans le contexte de la diffusion de la lumière, où la source lumineuse employée peut ne pas se situer dans le spectre visible. L'utilisation de ces capteurs permet de couvrir une large gamme d'angles de diffusion, en fonction de la configuration optique établie entre l'échantillon et le capteur. Les dimensions des matrices CCD/CMOS, souvent fixées par le fabricant, imposent une limitation sur la résolution angulaire qui peut être atteinte : un domaine angulaire étendu se traduira par une résolution diminuée, et vice versa. Il est donc déterminant de bien connaître les particules à analyser pour optimiser le domaine angulaire et obtenir la meilleure résolution possible.

De nombreux dispositifs se concentrent généralement sur la diffusion de la lumière aux petits angles : *Small Angle Light Scattering* (SALS). Ces expériences sont économiquement avantageuses, car elles requièrent peu ou ne requièrent pas d'éléments optiques supplémentaires. Pour un domaine angulaire restreint (environ  $15^\circ$  pour l'angle de diffusion maximal), la déviation des rayons diffusés nécessite assez peu d'éléments optiques [114,133,134], voire aucun dans certains cas [97]. Lorsque l'analyse nécessite l'étude de la diffusion de la lumière sous des angles plus étendus, l'emploi d'éléments optiques possédant une longue focale et un large diamètre devient indispensable pour dévier efficacement les rayons diffusés vers les angles les plus larges. Pour surmonter ces défis, le recours à un miroir ellipsoïdal est fréquemment adopté en raison de sa capacité à mesurer des angles de diffusion s'étendant de  $28^\circ$  à  $140^\circ$  [115]. Dans des configurations spécifiques où le faisceau incident n'atteint pas le centre du miroir, il est possible d'élargir le domaine de diffusion observable, allant de  $12^\circ$  à  $168^\circ$ , ce qui inclut la diffusion avant et arrière désaxées sur l'image capturée [135] (Figure 16).

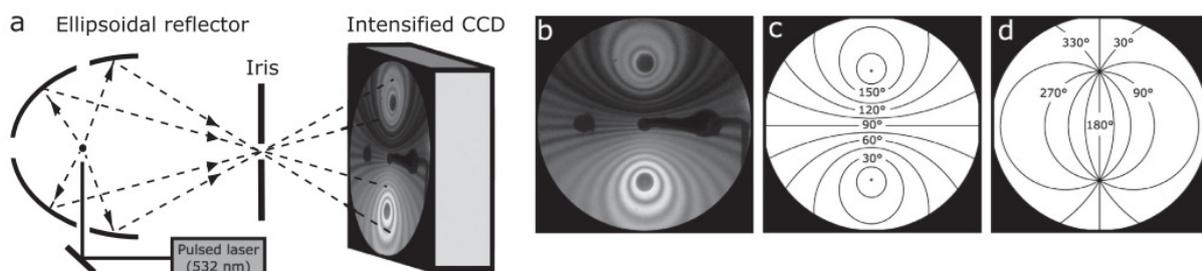


Figure 16 : Diffusion avant et rétrodiffusion sur le même capteur CCD Grâce à un miroir ellipsoïdale de courte focale [135]

#### 1.4. Configurations dédiées à la rétrodiffusion

Le domaine de la rétrodiffusion est particulièrement sensible à la morphologie des particules, mais aussi aux hétérogénéités de surface, y compris leur rugosité. Ce domaine angulaire de diffusion, bien que complexe à mesurer et à interpréter, se révèle très riche en information sur les milieux diffusants. En télédétection, la technique Lidar tire profit de cette richesse en exploitant la rétrodiffusion pour identifier les caractéristiques microphysiques des aérosols comme leur taille ou leur morphologie. Par exemple, les lidars atmosphériques sensibles à la polarisation sont capables de détecter la présence de poussières minérales (désertiques ou volcaniques) dans l'atmosphère [136,137]. Ils opèrent via des mesures de rétrodiffusion en polarisation pour distinguer les aérosols non-sphériques des aérosols sphériques, tels que les micro gouttelettes d'eau. Cependant, l'inversion du signal lidar est complexe. Il s'agit d'un processus visant à déduire les propriétés microphysiques des aérosols à partir du signal lidar. Cela implique l'utilisation de méthodes d'inversion qui nécessitent la connaissance de paramètres initiaux relatifs aux aérosols étudiés.

Ces méthodes recourent à une connaissance *a priori* des paramètres radiatifs des aérosols tels que leur rapport de dépolarisation linéaire ou leur section efficace de rétrodiffusion. Ce besoin a motivé le développement d'instruments de laboratoire dédiés à la mesure de la rétrodiffusion de particules. Ces dispositifs se concentrent principalement sur la mesure de la polarisation et de l'intensité du signal de rétrodiffusion à  $180^\circ$ , voire à des angles proches de cette valeur précise. Une mesure importante dans l'étude des aérosols atmosphériques est le rapport de dépolarisation linéaire ( $\delta_L$ ) des particules. Ce rapport, déterminé par le rapport entre l'intensité de la rétrodiffusion perpendiculaire et parallèle au plan de polarisation du laser, sert de méthode de caractérisation des aérosols. Il permet, en effet, d'évaluer la non-sphéricité des particules, ce qui est directement lié à leurs propriétés physiques et à leur comportement dans l'atmosphère. De nombreux instruments de laboratoire adoptent une configuration semblable à celle du LIDAR pour analyser précisément le signal de rétrodiffusion et extraire des données pertinentes. Cette section vise à explorer les techniques de mesure de la rétrodiffusion lumineuse par les aérosols.

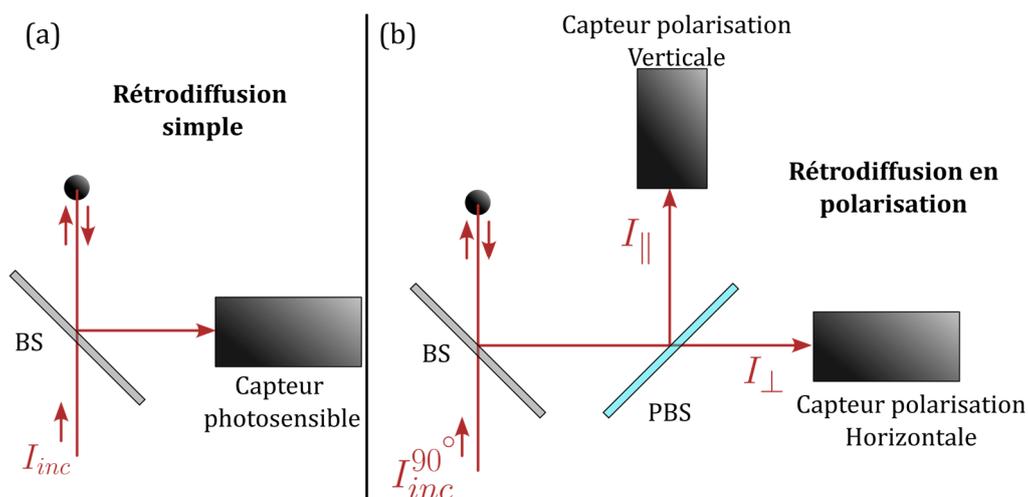


Figure 17 : dispositifs de mesure utilisés pour la rétrodiffusion exacte : (a) présente la rétrodiffusion simple à l'aide d'un séparateur de faisceau non polarisant (BS), tandis que (b) illustre un système de mesure de dépolarisation équipé de deux capteurs et d'un séparateur de faisceau polarisant (PBS).

Les instruments conçus pour mesurer la rétrodiffusion en configuration lidar visent spécifiquement à quantifier l'intensité lumineuse rétrodiffusée par une ou plusieurs particules à l'angle exact de  $180^\circ$ . L'objectif est de recueillir des informations précises sur l'angle de rétrodiffusion et, pour certains appareils, sur d'autres angles proches. La présence du faisceau initial, traversant le même point que le faisceau rétrodiffusé, représente un obstacle technique. Pour surmonter cette difficulté, un élément optique spécifique est nécessaire : le diviseur de faisceau ou *beam splitter*. Ce composant optique est conçu pour réfléchir une partie de la lumière tout en transmettant une autre. Les diviseurs de faisceau sont caractérisés par leur rapport de transmittance/réflexion, exprimé en pourcentage de lumière transmise et réfléchi. Les modèles 50/50 sont fréquemment utilisés pour équilibrer la répartition entre la lumière réfléchie et transmise, facilitant ainsi l'analyse précise de la rétrodiffusion à l'angle souhaité.

Lorsque la polarisation n'est pas un critère d'intérêt, la mise en place d'un instrument de mesure se simplifie considérablement, nécessitant seulement l'usage d'un diviseur de faisceau (*beam splitter*) classique, comme mentionné auparavant. Un exemple de cette simplicité est illustré dans le système optique d'un instrument de rétrodiffusion élémentaire, équipé d'un diviseur de faisceau non polarisant et d'un capteur en réseau de photodiodes (PDA, Photodiode Array) [39]. L'objectif de ces instruments, semblables à ceux utilisés pour la diffusion avant ou à des angles larges, consiste à mesurer une information angulaire. Ainsi, le capteur utilisé pour évaluer cette fonction de phase est généralement un capteur matriciel, tel que le PDA pour l'instrument illustré ou des capteurs 2D CMOS/CCD [138]. L'analyse de la fonction de phase fournit des données précieuses sur la taille des particules et sur leur indice de réfraction, en faisant la comparaison avec la théorie de Mie. Cette approche repose sur le fait que l'intensité rétrodiffusée à l'angle exact est particulièrement sensible à l'indice de réfraction, permettant ainsi une caractérisation détaillée des particules en fonction de leurs propriétés optiques. Bien que ces capteurs matriciels offrent une sensibilité inférieure par rapport à des dispositifs de détection plus simples, tels que les photomultiplicateurs, cette caractéristique entraîne la nécessité d'un échantillonnage de particules fixes dans le cas d'études portant sur des particules isolées, afin de prolonger le temps d'acquisition. Pour les recherches centrées sur des particules en mouvement, notamment dans des flux de particules, il devient indispensable d'employer des caméras dotées d'une sensibilité supérieure à celle des capteurs matriciels standards. À cette fin, la majorité des instruments utilisant ce type de technologie s'appuient sur des caméras CCD intensifiées.

Cette approche matricielle est particulièrement avantageuse, car la fonction de phase en rétrodiffusion révèle des informations relatives à leur rugosité de surface [139] et aux intensités de polarisation en 2D [138]. En outre, l'utilisation de caméras CCD enrichit l'analyse en fournissant des données additionnelles : contrairement à une mesure effectuée sur un unique plan, la diffusion est évaluée tout autour de l'angle azimutal  $\varphi$  (Figure 18), offrant ainsi une perspective complète et détaillée sur la diffusion des particules. Comme mentionné plus haut, ces instruments trouvent un intérêt particulier dans les mesures lidar atmosphériques, où la polarisation joue un rôle d'intérêt. Pour les dispositifs les plus élémentaires effectuant des mesures strictement en rétrodiffusion directe, un capteur simple est positionné juste derrière le diviseur de faisceau à l'angle exact de rétrodiffusion. Ces configurations, se limitant à un unique capteur, sont conçues pour réaliser des analyses du ratio de dépolarisation, qui vise à évaluer

l'intensité lumineuse rétrodiffusée en polarisations verticale et horizontale par rapport à la polarisation initiale du laser.

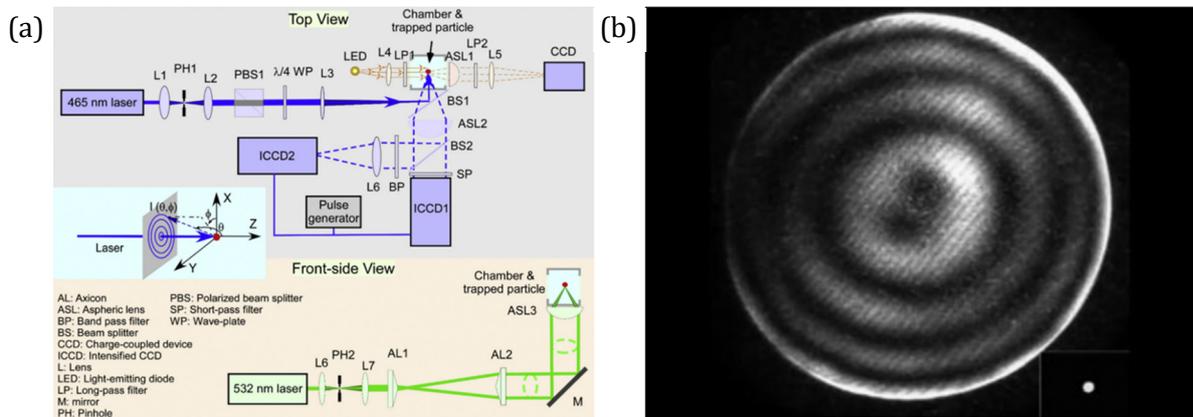


Figure 18 : Configuration pour capturer figure de rétrodiffusion en deux dimensions avec une caméra CCD [139]

Pour déterminer précisément cette valeur, il est essentiel de contrôler rigoureusement la polarisation du faisceau incident et de garantir que seule la polarisation verticale ou horizontale atteigne le capteur. Deux approches sont envisageables pour atteindre cet objectif, la plus simple reposant sur l'utilisation de polariseurs linéaires. Ces derniers permettent de réguler à la fois la polarisation du faisceau initial et celle du faisceau diffusé, le polariseur dédié au faisceau diffusé étant désigné sous le terme d'analyseur. Cette technique, facile à implémenter, ne nécessite qu'un seul capteur [36]. Néanmoins, elle présente l'inconvénient majeur d'exiger deux configurations distinctes pour l'analyseur afin de mesurer la dépolarisation, impliquant par conséquent au moins deux prises de mesure. Ainsi, les particules analysées doivent être statiques ou alors la mesure doit être effectuée sur une période d'intégration suffisamment longue pour obtenir une moyenne fiable. La seconde approche pour mesurer la polarisation implique l'utilisation d'un diviseur de faisceau polarisant ou d'un prisme de Wollaston, qui a la particularité de transmettre uniquement la polarisation horizontale tout en réfléchissant uniquement la polarisation verticale [41,140]. L'avantage principal de cette méthode réside dans sa capacité à fournir des mesures instantanées, offrant ainsi immédiatement des informations sur les intensités des deux polarisations. Par conséquent, ces instruments peuvent être synchronisés avec un déclencheur pour réaliser des mesures sur des particules uniques. Néanmoins, cette technique requiert l'utilisation concomitante d'un diviseur de faisceau non polarisant, qui présente un rapport de transmittance/réfléctance variant selon la polarisation, nécessitant donc une calibration supplémentaire. Un autre désavantage est la nécessité d'employer deux capteurs différents, impliquant également une calibration additionnelle. Pour surmonter les limitations associées aux diviseurs de faisceau et à la calibration, une méthode plus robuste peut être envisagée. Cette dernière est celle initialement proposée par Hunt et Huffman [141], qui suggère l'utilisation d'une lame biréfringente pour moduler la polarisation, et ainsi déterminer la matrice de Mueller du milieu diffusant. Toutefois, il est important de noter que la configuration présentée dans leurs travaux n'est pas axée sur la rétrodiffusion. Dans les instruments en rétrodiffusion employant une lame biréfringente, une lame quart d'onde est combinée à un diviseur de faisceau polarisant. La

polarisation initiale du faisceau incident est modifiée par cette lame quart d'onde, dépendant ainsi de l'orientation de l'axe rapide de la lame. Cette modification de la polarisation permet une modulation précise du signal émis et reçu, facilitant la mesure exacte de la dépolarisation à  $180^\circ$  [42].

## 2. Holographie

Dans le cadre de cette étude, nous examinerons les méthodes et les instruments de mesure holographique « in-line », utilisé dans l'étude des particules, avec un accent particulier sur les techniques permettant de caractériser les particules et les aérosols. L'holographie est une technique très prisée pour la caractérisation des particules dans le domaine de l'étude des aérosols. Un hologramme contient les informations essentielles permettant de remonter aux paramètres spécifiques des aérosols, tels que leur taille et leur morphologie. Cette technique offre l'avantage significatif de permettre des mesures microscopiques avec des résolutions sub-microniques pour certains instruments, tout en simplifiant considérablement l'appareillage optique nécessaire. En effet, les configurations les plus élémentaires requièrent uniquement un faisceau laser et une caméra, facilitant ainsi l'observation de particules en mouvement dans un milieu, la réalisation d'observations tridimensionnelles du déplacement de particules, ou encore la modélisation de rotations particulières en 3D. Nous aborderons plus en détail ces différentes méthodologies de mesure et présenterons des exemples d'instruments spécifiques ultérieurement.

L'holographie nécessite une interférence entre l'onde diffusée ou diffractée par l'objet d'intérêt et un faisceau de référence [142]. Cette interférence peut être générée de diverses manières, notamment à l'aide de diviseurs de faisceau, qui séparent le faisceau interagissant avec la particule ou les particules et le faisceau de référence. Contrairement à l'usage de microscopes, cette technique permet de réaliser des mesures 3D via l'interférométrie holographique [143]. Elle permet aussi d'avoir un champ de vue bien plus grand grâce à l'absence d'optique de très forte ouverture numérique.

### 2.1. Holographie off-line

Un autre mode de mesure, l'holographie dite "off-axis", utilise également des diviseurs de faisceau pour séparer un faisceau de référence d'un faisceau interagissant avec une ou plusieurs particules, mais dans ce cas, le faisceau de référence est décalé par rapport aux ondes diffusées. Cette méthode, applicable en transmission, s'avère avantageuse pour l'analyse particulière [144]. Les instruments off-axis ont l'avantage de séparer les trois ordres de l'onde résultante de l'hologramme, comme décrit dans l'équation 31. Le seul ordre d'intérêt pour l'holographie est l'ordre -1. En isolant ces trois ordres, il est possible de reconstituer uniquement l'image d'intérêt, éliminant ainsi tout halo résiduel lors de la reconstruction. Cette séparation est illustrée dans la figure associée à la mesure de l'hologramme off-axis.

### 2.2. Holographie in-line

La seconde méthode présentée, nettement plus aisée à implémenter, repose sur l'utilisation d'un faisceau de référence large et transmis, qui n'a pas interagi avec la particule. Cette technique est désignée sous le terme d'holographie *in-line*, en contraste avec l'holographie off-line. Sa

simplicité d'exécution réside dans le fait qu'elle ne requiert aucun dispositif optique spécifique, hormis une caméra et un faisceau large. Un des avantages notables de l'holographie in-line est sa capacité à réaliser de l'holographie non cohérente. En effet, pour cette méthode, la cohérence temporelle n'est pas une condition primordiale ; seule une cohérence spatiale suffisante du faisceau est nécessaire, ce qui permet l'émergence de systèmes utilisant des LED comme source lumineuse [145,146]. Ainsi, un simple faisceau lumineux de largeur adéquate, permettant l'interaction entre la lumière transmise et diffusée, associé à un capteur matriciel tel qu'une caméra CCD ou CMOS, est suffisant. Néanmoins, cette méthode comporte un inconvénient majeur : la perte des informations de déphasage, caractéristique des techniques employant un diviseur de faisceau. De plus, la séparation des trois ordres de diffraction n'est pas réalisable, ce qui résulte en la présence de halos autour des objets reconstitués dans les images. Ce problème peut toutefois être partiellement résolu par l'acquisition préalable d'images de référence sans particules. Ces images de référence sont ensuite soustraites de l'hologramme pour obtenir une image représentant uniquement l'interférence, sans le faisceau de fond issu du faisceau de référence.

Dans la suite de notre discussion, nous approfondirons l'exploration des différentes applications de l'holographie pour la mesure de particules, en mettant un accent particulier sur la méthode d'holographie in-line [76], qui représente l'approche la plus largement adoptée dans la littérature scientifique pour la caractérisation des aérosols. Cette méthode sera également celle privilégiée pour notre futur instrument. L'holographie in-line se divise en deux catégories distinctes, différenciées par la configuration de la source lumineuse. On distingue ainsi deux types d'instruments : le premier utilise un faisceau collimaté, produisant une onde plane, tandis que le second emploie des ouvertures circulaires ou des fibres monomodes, générant une onde sphérique assimilable à une source ponctuelle. L'utilisation d'une onde sphérique présente l'avantage notable d'améliorer la résolution grâce à l'effet d'agrandissement qu'elle induit sur la particule, contribuant ainsi à une augmentation significative de la résolution [147]. L'enregistrement de l'hologramme via une onde sphérique permet, lors de la reconstruction effectuée avec une onde plane, de générer un agrandissement de l'image résultante. Toutefois, il est impératif que tous les paramètres initiaux soient précisément connus afin d'optimiser la distance entre l'objet et le capteur, dans le but d'atteindre la meilleure résolution possible. Les distances optimales, désignées par  $L$  (distance entre la source ponctuelle et le capteur) et  $d_0$  (distance optimisée entre l'objet et le capteur), doivent être calculées selon une méthodologie définie dans l'article de W. Zhang [148], pour garantir l'efficacité de la méthode.

$$\frac{Nd_{pix}}{NA_{illu}} \leq L \leq \frac{Nd_{pix}^2}{\sqrt{10}\lambda} \quad (44)$$

Et

$$d_0 = L - \frac{L^2\lambda}{Nd_{pix}^2} \quad (45)$$

Les équations (44) et (45) définissent les conditions optimales de distance pour la capture holographique grâce à une onde sphérique pour l'enregistrement et une onde plane pour la

reconstruction, où  $N$  représente le nombre de pixels du capteur,  $d_{pix}$  la dimension d'un pixel,  $NA_{illu}$  l'ouverture numérique de l'onde sphérique et  $\lambda$  la longueur d'onde d'illumination. Selon W. Zhang, le grandissement de l'hologramme obtenu, lorsque l'on utilise une onde plane, est donné par :

$$m = \frac{L}{L - d} \quad (46)$$

L'emploi d'une onde plane pour la reconstruction, en dépit de l'utilisation initiale d'une onde sphérique pour l'enregistrement de l'hologramme, ne présente pas d'obstacle. Cependant, cette méthode impose une distance de reconstruction précise. Pour une même image, chaque distance de reconstruction différente ( $d$ ) définit un nouveau grandissement, ce qui complique la gestion des particules situées dans un large éventail d'espaces avec des distances de reconstruction variées. C'est pourquoi l'utilisation d'une onde plane pour la reconstruction est également privilégiée pour sa simplicité et sa flexibilité en termes de distances de reconstruction.

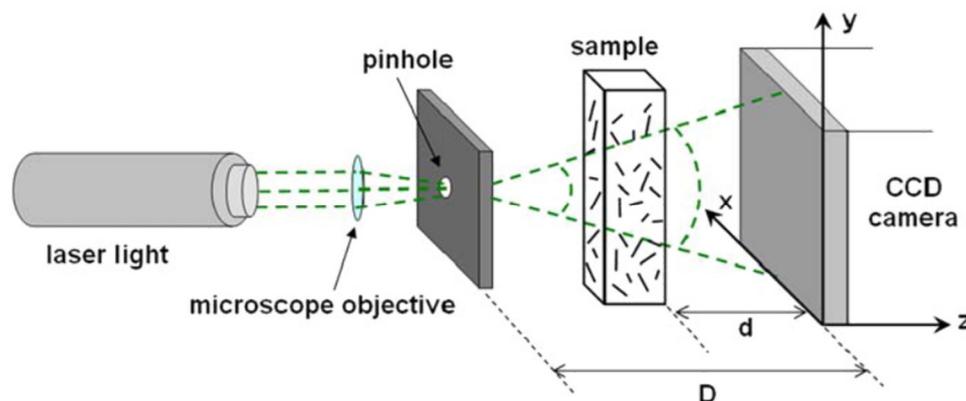


Figure 19 : Exemple d'instrument de mesure holographique in-line avec onde sphérique [147]

L'un des principaux domaines d'application de l'holographie dans l'étude des particules concerne la mesure de leur position en trois dimensions au sein d'un milieu spécifique, permettant ainsi de suivre leurs mouvements [149–151]. Ces mesures sont particulièrement prisées dans le domaine de la mécanique des fluides, de la microfluidique et des études de mouvement des particules, telles que les mouvements browniens ou l'analyse dynamique des fluides. En effet, l'observation des mouvements des particules dans un fluide en mouvement offre des informations sur la mécanique de déplacement du fluide lui-même. Un autre champ d'application significatif de l'holographie réside dans l'étude de la granulométrie et de la distribution des particules. Dans ce contexte, l'objectif de l'holographie n'est pas d'observer le mouvement des particules, mais plutôt d'examiner leur morphologie. Cette approche est couramment utilisée dans le domaine de l'étude des aérosols, où la forme des particules dans l'atmosphère influence leurs propriétés de diffusion [43,77,147,152,153]. Il est important de noter que la caractérisation de la taille des particules ne se limite pas aux aérosols ; elle est également appliquée à l'étude des particules océaniques [154] et en micro fluidique [77]. Des méthodes simplifiées pour l'échantillonnage ont été développées, notamment dans l'étude menée par T. Khanam, où des particules sont déposées sur un support rotatif pour mesurer leurs dimensions dans les trois axes [155].

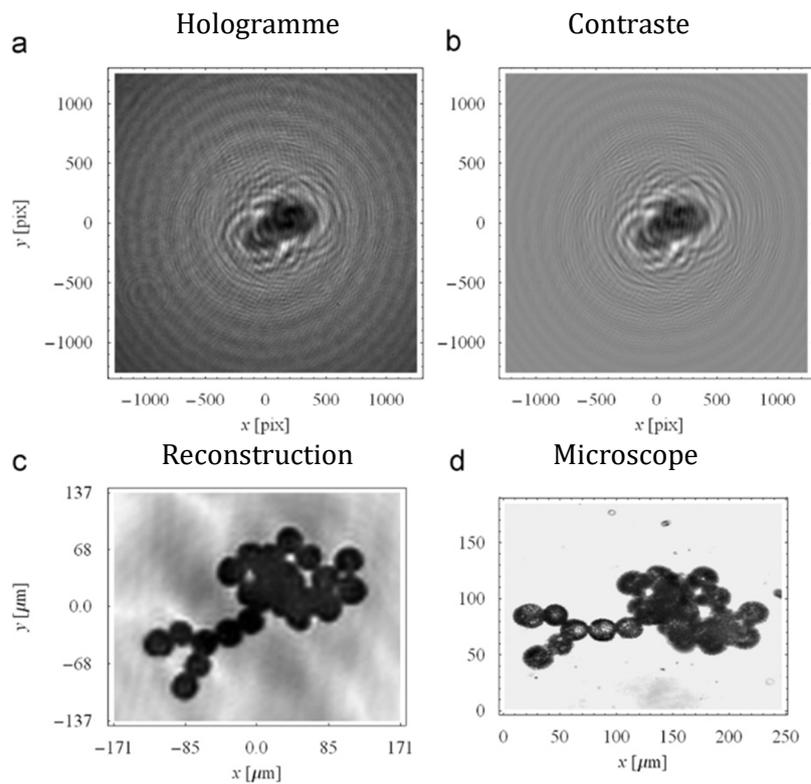


Figure 20 : Reconstruction sur un agglomérat de particules sphérique. Les images (a) et (b) montrent respectivement l'image  $I^{holo}$  et  $H^{con}$  des particules. (c) est la reconstruction à partir de  $H^{con}$  et (d) l'image au microscope de ces mêmes particules [43].

Ces techniques, capables de traiter des images contenant une multitude de particules et d'utiliser des algorithmes pour distinguer les aérosols, facilitent la mesure des distributions de particules (Figure 21) [147] et permettent même de déterminer la position tridimensionnelle de particules en suspension [156]. Au-delà des caractéristiques morphologiques, l'holographie peut également être utilisée pour mesurer des paramètres tels que le coefficient d'extinction des particules directement à partir de l'hologramme, en intégrant les franges d'interférence associées à chaque particule [157].

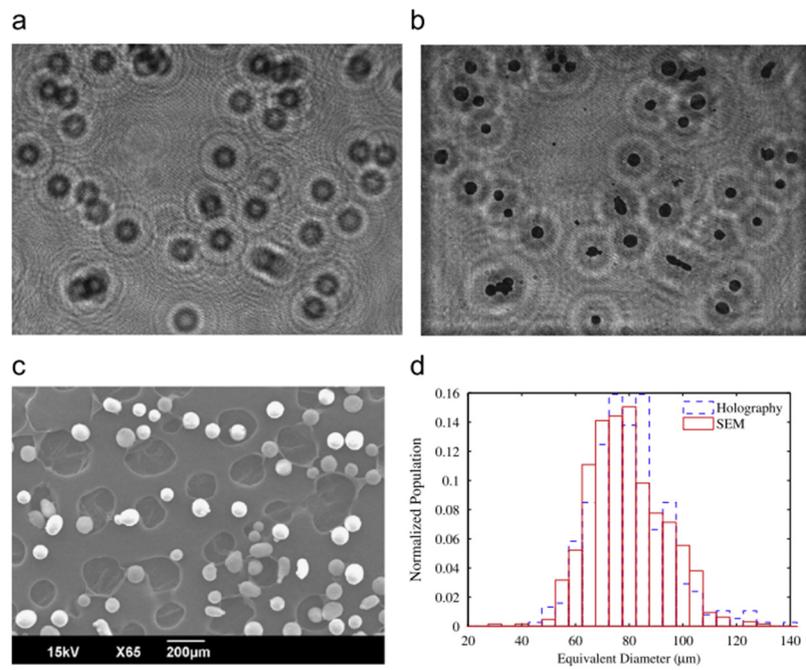


Figure 21 : (a) Hologramme enregistré sur un capteur CCD, (b) Reconstitution de l'image à partir de l'hologramme, (c) Image MEB des particules, (d) Distribution en taille des particules étudiées [147]

### **III. Analyse comparative**

Dans cette section, nous proposons une analyse comparative des diverses solutions envisagées pour la sélection optimale des composants nécessaires à la conception d'un instrument destiné à la mesure de la diffusion de la lumière par des particules. Cette démarche implique l'analyse des options disponibles pour chaque composant de l'instrument (source lumineuse, échantillon, capteur, et éléments optiques), en évaluant leurs avantages et inconvénients par rapport aux spécifications requises pour l'instrument envisagé.

Le but de cette analyse comparative établie sur l'état de l'art, présenté plus haut, est de proposer une démarche pour l'élaboration du diffusiomètre spectro-polarimétrique développé dans la thèse. Cette démarche méthodologique s'appuiera sur une analyse comparative minutieuse des diverses techniques et approches disponibles pour chaque composante de l'instrument en question, à savoir la source lumineuse, le capteur, ainsi que les méthodes d'échantillonnage employées. Afin de procéder à cette analyse comparative, il sera mis en place un système d'évaluation fondé sur un tableau de scores. Ce tableau permettra de classer chaque solution potentielle selon plusieurs critères prédéfinis, qui comprennent la facilité de mise en œuvre, l'applicabilité aux analyses de particules, la cohérence avec les objectifs spécifiques de la thèse, ainsi que la compatibilité avec la source lumineuse pour les autres composant hors source. Les critères seront évalués sur une échelle de trois points, où chaque option sera notée de -1 (moins favorable) à 1 (plus favorable), en passant par 0 pour les options neutres. Cette méthodologie d'évaluation multicritère permettra non seulement d'identifier les options les plus prometteuses pour chaque partie de l'instrument, mais également de faciliter la prise de décision quant au choix définitif des composantes à intégrer. Le cumul des scores attribués à chaque solution envisagée pour les différentes parties de l'instrument fournira une base quantitative solide pour orienter ces choix, en alignement avec les exigences scientifiques et techniques du projet de recherche.

## 1. Tableau de synthèse

	Facilité de Mise en Œuvre	Applicabilité à l'Analyse de Particules	Cohérence avec le Sujet de Thèse	Compatibilité avec la source	Score
Source blanche incohérente	-1	+1	+1		1
	Optiques supplémentaires nécessaires	Puissance adéquate	Adaptée aux mesures multispectrales		
Source mono incohérente	0	-1	-1		-2
	Optiques supplémentaires nécessaires	Convient pour certaines analyses	Pas adaptée aux mesures multispectrales		
Source mono chromatique cohérente	+1	+1	-1		1
	Peu d'optiques requises	Faisceau fin et puissance idéale	Pas de multispectrales		
Laser super continuum	+1	0	+1		2
	Optiques minimisées	Puissance modérée	Mesures multispectrales		
Capteur simple mobile	0	-1	+1	+1	1
	Encombrement modéré	Mesure très lente	Multispectrale adapté	Très sensible	
Capteurs multiples immobiles	-1	+1	0	+1	1
	Coût élevé, installation complexe	Très sensible et réactif	Pas assez de points de mesure	Capteurs sensibles	
Capteur matriciel	+1	0	+1	0	2
	Installation simplifiée	Limité en angles	Multispectral et polarisation	Fonctionne en multispectral	
Particules déposées	+1	-1	+1	+1	2
	Simple et économique	Effet de la vitre inconnu, permet une longue pose	Aérosols déposés	Idéale pour une faible puissance	
Suspension dans un liquide	+1	0	-1	0	0
	Mise en œuvre facile	Analyses de turbidités	Pas d'aérosol observable	Gestion de la concentration	
Flux de particules	0	+1	+1	-1	1
	Nécessite un équipement spécifique	Idéale pour l'analyse dynamique	Aérosols en conditions réelles	Pas de pose longue, très sensible	
Piège à particules	-1	+1	+1	+1	2
	Coûteux et complexe	Particules isolées	Parfait pour le lidar	Stabilité de la particule	

## 2. Sources

Le choix de la source lumineuse à intégrer dans l'instrument est un choix structurant, car il influencera aussi la sélection du capteur et la méthode d'échantillonnage. Trois critères principaux guident ce choix : la facilité de mise en œuvre, l'applicabilité à l'analyse de particules, et la conformité avec le sujet de recherche. Pour la facilité de mise en œuvre, nous considérons les facteurs tels que le coût et le nombre d'éléments optiques nécessaires pour obtenir un faisceau collimaté de faible diamètre. Concernant l'applicabilité à l'analyse de particules, il est essentiel que la source soit suffisamment puissante pour rendre visible la diffusion de la lumière par les particules sur le capteur. Si le capteur sélectionné n'est pas un analyseur de spectre, comme un spectromètre, il devient nécessaire d'utiliser une source monochromatique, ou une source lumineuse blanche filtrée pour obtenir un faisceau quasi monochromatique en sortie. La conformité avec le sujet de thèse exige l'utilisation de sources lumineuses adaptées à des mesures multispectrales, c'est-à-dire capables de fonctionner à différentes longueurs d'onde. Les options se limitent ainsi à des lampes blanches telles que les lampes halogènes ou au xénon, ou encore à des lasers supercontinuum filtrés. Les lampes blanches présentent l'inconvénient d'une divergence significative, nécessitant un nombre important d'optiques pour collimater le faisceau. En revanche, les lasers supercontinuum apparaissent comme la solution la plus adaptée pour générer une source lumineuse blanche et puissante, avec l'avantage d'un faisceau déjà collimaté à la sortie et ne requérant pas d'optiques supplémentaires. De plus, la société Leukos, spécialisée dans le développement de lasers à supercontinuum, propose également une solution de filtrage des longueurs d'onde souhaitées en sortie du laser avec le filtre Beebop, un aspect que nous détaillerons ultérieurement dans la section dédiée à l'instrumentation en rétrodiffusion.

**Naturellement, le choix d'un laser supercontinuum couplé à un système de filtration pour ne sélectionner qu'une longueur d'onde semble judicieux, car il permet de réaliser toutes les mesures voulues à n'importe quelle longueur d'onde dans le visible tout en conservant une puissance suffisante et en gardant la cohérence spatiale d'un laser.**

## 3. Configuration capteurs

Après avoir défini la source lumineuse, le choix du type de capteur constitue la seconde étape clé dans la conception de l'instrument de mesure. Ce choix intègre un critère supplémentaire : la compatibilité avec la source supercontinuum, afin d'assurer une synergie optimale entre la source et le capteur. Dans le cadre des mesures lidar, l'usage d'un capteur unique positionné à un angle spécifique est généralement réservé à la configuration de rétrodiffusion. Cette configuration emploie un diviseur de faisceau pour mesurer précisément l'angle de rétrodiffusion. Bien que cette approche soit efficace pour effectuer des mesures de dépolarisation à un angle de  $180^\circ$ , elle ne prend pas en considération la diffusion angulaire, ni ne permet d'évaluer une fonction de phase associée aux particules étudiées. Par ailleurs, dans le cas des lidars à courte portée, l'instrument possède un champ de vue qui capte non seulement l'intensité rétrodiffusée exactement à  $180^\circ$ , mais aussi celle diffusée autour de cet angle. La configuration avec un mono capteur ne permet donc pas de tenir compte de ce champ de vue étendu, limitant ainsi la portée des informations collectées lors de l'analyse lidar.

L'approche mono-capteur, monté sur un bras mobile, bien que flexible, présente des contraintes significatives. Il nécessite un espace conséquent pour son installation, ce qui peut être problématique dans le contexte de l'analyse de particules. De plus, sa compatibilité avec les exigences du sujet de recherche est limitée, notamment en raison de l'impossibilité de mesurer la rétrodiffusion exacte à  $180^\circ$ , le bras du capteur interférant avec le faisceau incident. Ce type de capteur exige également un balayage complet sur tous les angles de diffusion, ce qui est incompatible avec l'utilisation d'une source à multiples longueurs d'onde. Quant aux capteurs multiples immobiles, ils se révèlent complexes et onéreux à implémenter, en raison du nombre important de capteurs nécessaires. Cette configuration est cependant couramment utilisée compte tenu de sa réactivité et de sa sensibilité, permettant la génération d'une fonction de phase pour les particules en mouvement dans un flux.

L'approche capteur matriciel, en revanche, offre la possibilité de capturer un grand nombre de points dans une direction donnée. Compte tenu de l'orientation de la thèse sur la diffusion aux petits angles, ce type de capteur est particulièrement pertinent pour générer une fonction de phase sur une gamme limitée de longueurs d'onde, tout en fournissant des informations sur tous les plans de diffusion. L'utilisation d'un capteur matriciel, contrairement à celle d'un capteur unique, offre une flexibilité notable dans la prise en compte du champ de vue lors des mesures lidar. Cette caractéristique permet une adaptation aisée à différents types de lidars, facilitant ainsi la collecte d'informations sur une gamme étendue d'angles de diffusion. Sa popularité croissante pour l'étude de la diffusion de particules, notamment à petits angles, souligne son adéquation pour cet usage. Toutefois, en termes de compatibilité avec la source, les capteurs matriciels présentent une sensibilité inférieure à celle des photodiodes ou des photomultiplicateurs. La puissance réduite de la source lumineuse filtrée à une longueur d'onde spécifique peut donc poser des défis de sensibilité de la caméra et nécessitera certainement un long temps d'acquisition. Les problèmes relatifs à la puissance et à la sensibilité du capteur devront être abordés lors de la conception de la méthode d'échantillonnage.

**Pour la suite des travaux, le capteur matriciel est choisi, car il permet une caractérisation complète aux petits angles et permet de réaliser des mesures en dehors du plan d'incidence, très riches en information pour la caractérisation d'aérosols non-sphériques particulièrement.**

#### **4. Conditionnement des particules**

Cette section examine les différentes approches d'échantillonnage pour positionner les particules face au faisceau laser dans le cadre de la mesure de leur diffusion de la lumière. Nous explorerons quatre méthodes principales, allant de la plus simple à la plus complexe : les particules déposées, la suspension dans un liquide, le flux de particules, et le piégeage électromagnétique ou ultrasonique. L'échantillonnage par des particules déposées sur une lame de verre est une méthode simple et efficace. Elle permet de tester facilement différents échantillons en changeant simplement les particules déposées. Cette méthode est particulièrement avantageuse en cas de faible puissance du faisceau laser, car les particules restent immobiles, permettant ainsi un temps d'acquisition prolongé. Cependant, l'impact de la lame de verre sur la diffusion de la lumière reste encore mal compris, constituant alors le principal

inconvenient de cette approche. Bien que la suspension de particules dans un liquide soit une alternative envisageable, elle présente des limitations significatives en rapport avec le sujet de cette thèse. En effet, avec une source lumineuse de faible puissance, il est nécessaire d'avoir une concentration élevée de particules, augmentant de même le risque de diffusion multiple, ce qui s'éloigne des conditions optimales pour notre étude. Cependant, cette méthode reste pertinente dans l'étude de la diffusion en milieux turbides. L'échantillonnage par un flux de particules, en raison du mouvement constant des particules face au faisceau laser, requiert un temps d'intégration très court. Cette caractéristique le rend incompatible avec notre configuration source/capteur. Le piégeage de particules via des méthodes électromagnétiques ou ultrasoniques représente une solution idéale, en théorie. Cette technique permet de maintenir une particule en place pour un temps d'exposition suffisant et élimine les interactions avec une surface, offrant des avantages notables pour l'analyse de la diffusion de la lumière. Cependant, la mise en œuvre d'une telle méthode est trop complexe pour être intégrée dans le cadre de cette thèse, bien qu'elle constitue une piste prometteuse pour l'amélioration future de l'instrument.

**La méthode d'échantillonnage par dépôt de particules est choisie comme la plus adaptée pour notre étude. Cette technique offre une flexibilité notable, permettant des ajustements aisés, ce qui en fait une option privilégiée, surtout compte tenu de sa simplicité de mise en œuvre par rapport aux autres méthodes examinées.**

## IV. Conclusion

Les composantes de l'instrument de mesure ont été soigneusement choisies pour répondre aux exigences spécifiques définies par le projet de thèse et par les objectifs de l'étude de la diffusion de la lumière sur des particules. La prochaine étape sera le développement de cet instrument, impliquant une présentation détaillée des travaux de conception et de calibration. Ce processus inclura également une exposition des améliorations apportées à l'instrument au cours de la période de thèse. En résumé, le développement de l'instrument sera abordé de manière exhaustive, depuis sa conception initiale jusqu'aux ajustements finaux, illustrant le processus dynamique d'amélioration continue.



## Chapitre 2: Diffusiomètre spectropolarimétrique

---

Une des motivations principales de la thèse est de mesurer en laboratoire les paramètres radiatifs d'intérêt pour l'inversion du problème lidar à rétrodiffusion élastique. Cette technique, rencontre un obstacle majeur : la complexité inhérente à l'inversion du signal constituant un problème mathématiquement mal posé. L'objectif principal de ce chapitre est de présenter le développement d'un instrument de laboratoire permettant de mesurer les propriétés radiatives des aérosols, telles que la rétrodiffusion ou l'extinction, à travers une approche à la fois spectrale et polarimétrique. Cette approche sera appelée spectro-polarimétrique par la suite. En outre, un autre objectif de cet instrument est de pouvoir relier les propriétés radiatives des aérosols d'étude à leurs caractéristiques microphysiques, principalement leur diamètre équivalent ( $D_{eq}$ ) et leur rapport d'aspect ( $a/b$ ). Ce dernier paramètre indique une caractéristique morphologique d'une particule et définit son élongation, plus le rapport est grand et plus la particule est allongée, au contraire si le rapport est égal à 1 la particule est sphérique. La mesure simultanée des propriétés radiatives et microphysiques (taille, forme) permettra de proposer des lois de corrélation entre ces propriétés : une démarche inédite par rapport aux capacités d'analyse lidar classiques. Ces lois de corrélations quantifieraient l'impact de la microphysique des aérosols sur leurs propriétés radiatives, enrichissant ainsi les produits issus des méthodes d'inversion des lidars à rétrodiffusion élastique.

Ce chapitre est consacré à l'exposé des diverses méthodes de mesure élaborées lors de la thèse, avec un accent mis sur la calibration et la validation de ces méthodes. Il vise à :

(i) décrire les différentes méthodes de mesure, en soulignant leurs particularités techniques ainsi que la manière dont les mesures sont effectuées et interprétées.

(ii) expliquer la calibration de chaque méthode de mesure en fonction de l'angle, du spectre et de la polarisation pour les mesures de diffusion, et établir la dimension d'un pixel en holographie.

(iii) valider chaque méthode de mesure à l'aide de données issues de sources bien caractérisées en termes de diffusion, telles que les particules sphériques ou les spectralons pour la dépolarisation.

## I. Présentation générale

Le protocole de mesure envisagé pour atteindre les objectifs décrits en introduction inclut l'analyse de la diffusion de la lumière aux petits angles, aussi bien en diffusion avant qu'en rétrodiffusion, avec en parallèle l'implémentation d'une mesure par holographie numérique pour imager les particules. Cette dernière voie offre une caractérisation détaillée de leurs caractéristiques microphysiques. Ce couplage des mesures de diffusion spectro-polarimétrique avec une mesure holographique tend à lever les ambiguïtés liées à l'interprétation des données lidar et d'ouvrir la voie à une analyse plus complète des propriétés des aérosols atmosphériques.

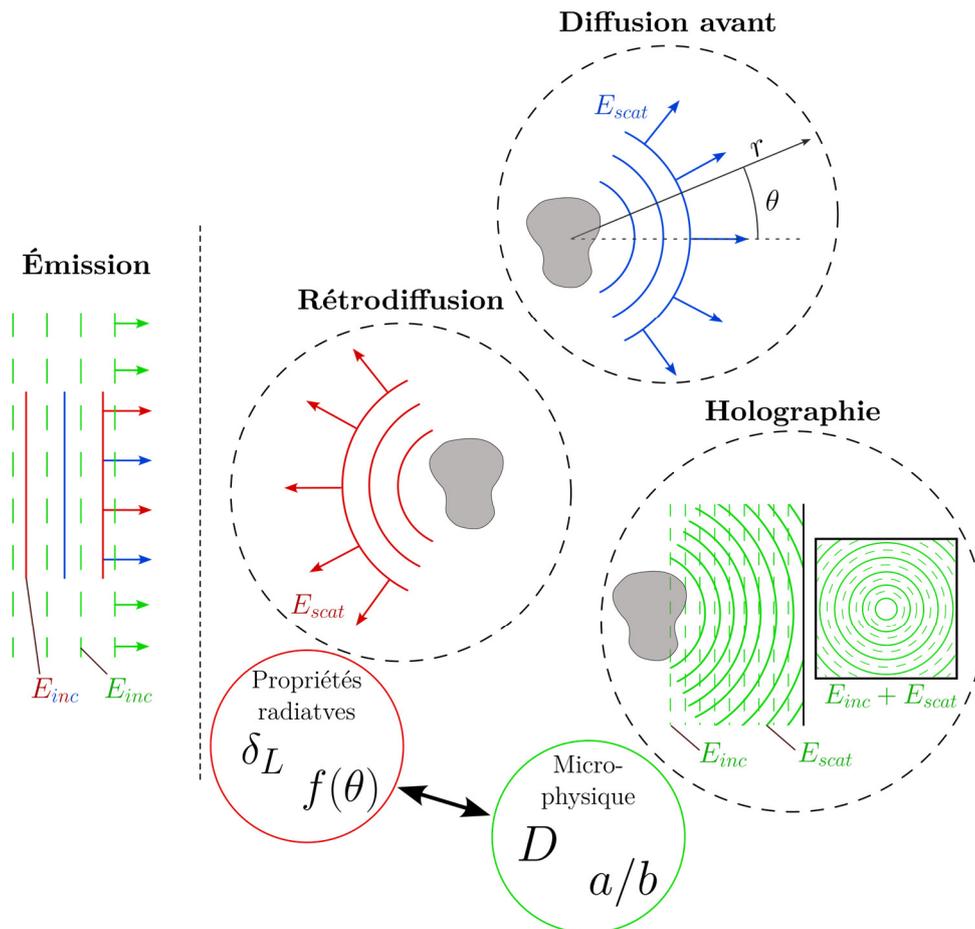


Figure 22 : Schéma de principe de l'instrument de mesure de diffusion spectro-polarimétrique et d'holographie numérique. La partie émission se compose de deux sources, une pour la diffusion (rouge et bleu) et une pour l'holographie (vert). L'instrument est divisé en trois voies de mesure distincte, une voie de rétrodiffusion, une voie de diffusion avant et une voie holographique.

Dans cette première partie, il est proposé de décrire le fonctionnement général de l'instrument SOPHOS, SpectrO Polarimetric and HOlographic Scaterometer.

(i) *Emission*. La partie liée à l'émission nécessite une source laser combinée à une sélection spectrale. Comme décrit dans le Chapitre 1(3.1.1), cette partie repose sur l'utilisation d'un laser supercontinuum couplé à un système de filtrage spectral. Ce choix technologique permet d'exploiter un large spectre de la lumière pour une analyse des propriétés radiatives des aérosols, en fonction de différentes longueurs d'onde.

(ii) *Voie rétrodiffusion.* La première voie concerne la rétrodiffusion. Cette mesure est réalisée au moyen d'un système de séparation de faisceau (séparateur de faisceau) associé à un dispositif de polarisation comprenant des polariseurs linéaires doubles.

(iii) *Voie diffusion avant.* La seconde voie se focalise sur la diffusion avant. Cette mesure est effectuée à l'aide d'une caméra et de miroirs paraboliques, avec le même laser que celui employé pour les mesures de rétrodiffusion.

(iv) *Holographie.* Intégrée sur le même chemin optique que la diffusion avant, elle est réalisée grâce à une nouvelle source lumineuse monochromatique émettant un faisceau large. Cette approche vise à mesurer les motifs d'interférence générés par les aérosols, permettant ainsi une caractérisation détaillée de leur morphologie.

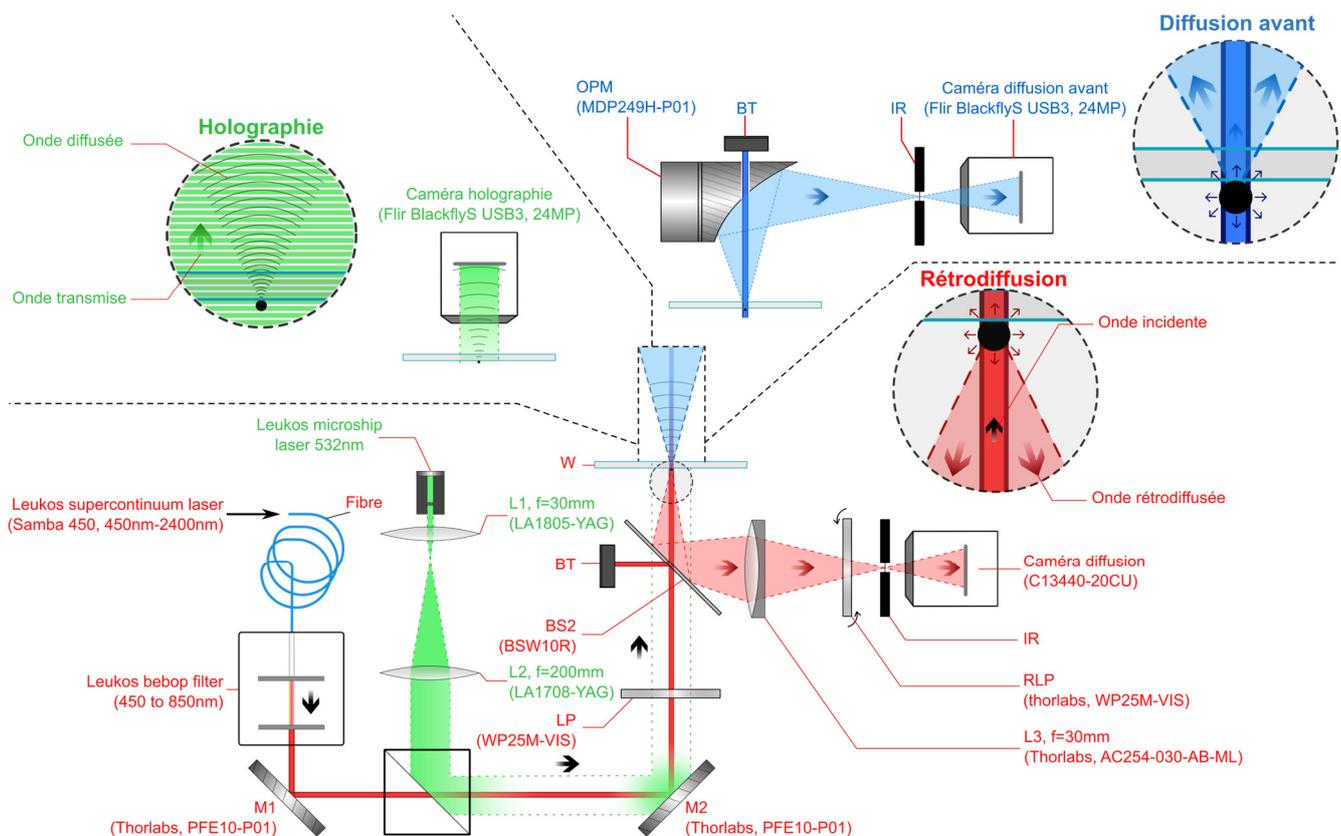


Figure 23 : Configuration optique pour l'instrument SOPHOS. Un laser supercontinuum émet un faisceau de lumière blanche (480-1000 nm) filtré spectralement (de 450 à 850 nm) qui éclaire des particules stationnaires sur une fenêtre (W). La lumière rétrodiffusée par les particules est projetée sur un capteur, fournissant le motif d'intensité rétrodiffusée selon des angles polaires et azimutaux. Un autre laser monochromatique (532 nm) éclaire les particules avec un faisceau élargi où la lumière diffusée et non diffusée interfèrent pour produire un hologramme en ligne sur un second capteur, le capteur d'holographie. Les images des particules peuvent ensuite être obtenues par reconstruction à partir de l'hologramme numérique enregistré.

## II. Voie diffusion avant

Cette section est consacrée à la mesure en diffusion avant, qui, lors de cette thèse, a été le sujet d'un développement d'instrument spécifique en première année de thèse. L'objectif de cet instrument était de mesurer la fonction de phase en deux dimensions (2D) pour la diffusion avant, et ce, à travers tout le spectre visible. La diffusion avant est particulièrement informative, car elle fournit une fonction de phase caractéristique des particules étudiées. La non-sphéricité de ces particules est directement quantifiable grâce à l'asymétrie de la fonction de phase observée dans ce type de diffusion. L'utilisation de cet instrument permet non seulement de visualiser directement les effets de la non-sphéricité sur la fonction de phase, mais également de déterminer l'extinction due à la diffusion avant. Cette capacité rend cet outil particulièrement adapté pour l'étude des propriétés optiques et physiques des particules, permettant une analyse détaillée et quantifiée de leur comportement radiatif.

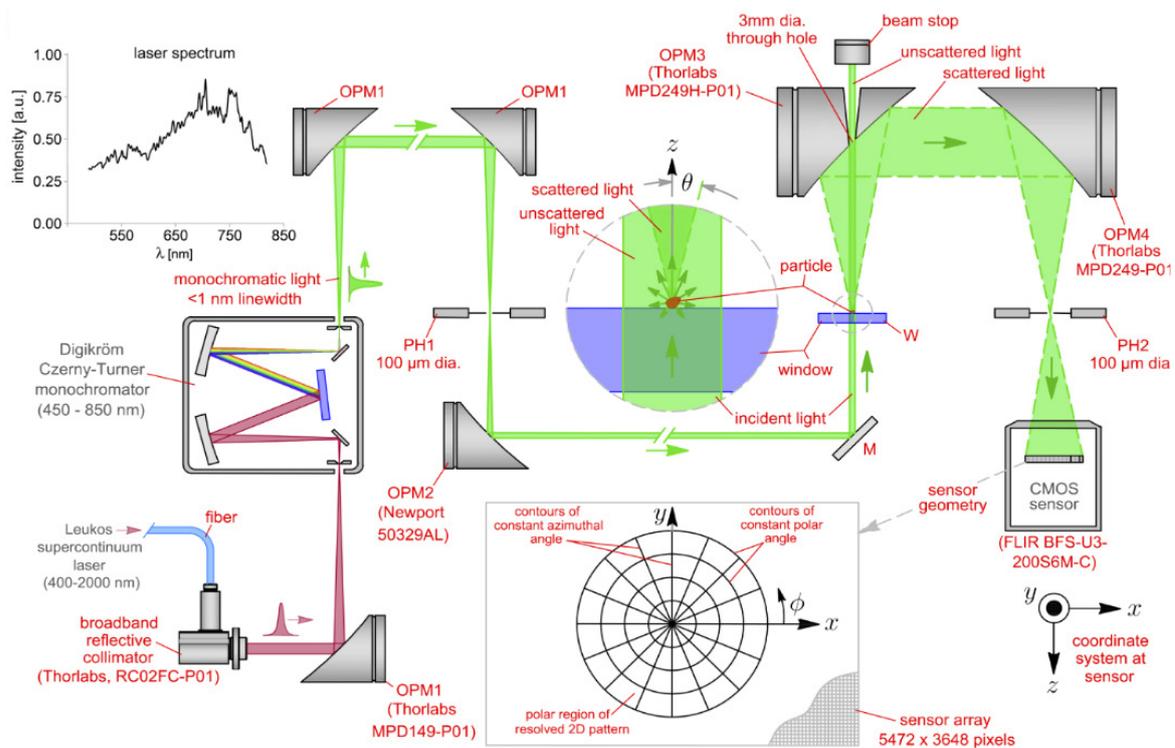


Figure 24 : Schéma optique de l'instrument de mesure en diffusion avant, utilisation d'un laser supercontinuum couplé avec un monochromateur. La séparation entre le faisceau transmis et la partie diffusée par la particule est réalisée par un miroir parabolique troué en son centre (OPM3).

Le dispositif expérimental, exposé en détail à la Figure 24, débute par l'utilisation d'un laser à supercontinuum émettant un spectre  $\lambda=400-2000$  nm. Ce laser est couplé à un collimateur réfléchissant à large bande, dont la sortie est focalisée à l'aide d'un miroir parabolique hors axe en argent (OPM1) à l'entrée d'un monochromateur de type Czerny-Turner. Une sortie monochromatique, caractérisée par une largeur de raie inférieure à 1 nm, est déterminée, comportant 13 longueurs d'onde discrètes sélectionnées dans la plage  $\lambda=450-850$  nm. La sortie du monochromateur est collimatée par un second OPM1, puis relayée vers un OPM1 subséquent

qui focalise la lumière dans une ouverture circulaire de faible diamètre appelé « pinhole » de 100  $\mu\text{m}$  de diamètre (PH1). Ce dernier, positionné dans l'espace de Fourier du miroir (OPM1), élimine les composantes indésirables issues du monochromateur. Un miroir parabolique de focale faible (OPM2) est utilisé pour collimater et réduire le diamètre du faisceau à environ 1 mm, qui est ensuite dirigé, par le biais d'un miroir (M), vers la particule d'intérêt. Cette dernière est positionnée sur une fenêtre en verre à revêtement antireflet (W). Le faisceau diffusé est représenté dans l'encart central de la Figure 24. En raison de la dimension réduite de la particule, la majeure partie du faisceau demeure non perturbée. La fraction infime du faisceau diffusé, conjointement avec la portion non diffusée, est dirigée vers OPM3, présentant une ouverture centrale de 3 mm de diamètre. Dans ce contexte, le faisceau non diffusé franchit l'ouverture, alors que la lumière diffusée divergente est collimatée par le miroir, puis redirigée vers un miroir similaire (OPM4), dépourvu d'une ouverture centrale. Au niveau d'OPM4, la lumière diffusée est focalisée dans un autre « pinhole » de 100  $\mu\text{m}$  de diamètre pour filtrer spatialement la lumière. Finalement, la lumière diffusée est captée par un capteur d'image CMOS. L'axe z, représentant la direction de propagation de la lumière non diffusée, est explicitement défini dans l'encart central de la Figure 24. La lumière diffusée remplit un motif bidimensionnel dans le plan x-y du capteur, comme indiqué dans l'encart inférieur. Pour analyser ce diagramme de diffusion, une grille polaire présentant des angles polaires (de diffusion)  $\theta$  et des angles azimutaux  $\phi$  est déployée, comme détaillé dans l'encart. Cette approche permet d'acquérir des diagrammes de diffusion 2D-SALS (2D Small Angle Light Scattering) sur des plages angulaires spécifiques,  $\theta \in [0, 90^\circ ; 6, 7^\circ]$  et  $\phi \in [0^\circ, 360^\circ]$ , sans subir l'influence de la portion intense non diffusée du faisceau d'éclairage. Il est à noter que l'ouverture centrale d'OPM3 définit l'angle polaire résolu le plus restreint,  $\theta_{\text{hole}}$ , tandis que le diamètre du miroir (50,8 mm) définit l'angle résolu le plus étendu,  $\theta_{\text{max}}$ .

Nous allons définir les différents angles caractérisant la diffusion avant d'expliquer comment nous avons mesuré la fonction de phase à partir d'un diagramme de diffusion. La fonction de phase est l'intensité diffusée en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  qui est l'angle entre le vecteur d'onde incident et le vecteur d'onde diffusé. La matrice de diffusion représente l'intensité diffusée par une particule en 2D. Chaque pixel représente donc une donnée d'espace (angle de diffusion  $\theta$  et angle azimutal  $\phi$ ) et une donnée d'intensité. Si la distance entre la caméra et le diaphragme ( $d$  sur la Figure 25) sont connus, on peut retrouver l'angle  $\theta$  et l'angle  $\phi$  qui correspondent à chaque pixel. Dans un premier temps, nous déterminons la distance  $r$  entre le centre de l'image et le pixel étudié.

Pour mesurer les fonctions de phase angulaire, il est nécessaire d'associer à chaque pixel deux angles de diffusion ( $\theta, \phi$ ) tels que :

$$\theta(i, j) = \tan^{-1} \left( \frac{r(i, j)}{d} \right) \quad (47)$$

Où

$$r(i, j) = \sqrt{(i \cdot a)^2 + (j \cdot a)^2} \quad (48)$$

$$\phi(i, j) = \begin{cases} \tan^{-1}\left(\frac{j}{i}\right) & \text{pour } i > 0 \text{ et } j \geq 0 \\ \tan^{-1}\left(\frac{j}{i}\right) + 2\pi & \text{pour } i > 0 \text{ et } j < 0 \\ \tan^{-1}\left(\frac{j}{i}\right) + \pi & \text{pour } i < 0 \\ \frac{\pi}{2} & \text{pour } i = 0 \text{ et } j > 0 \\ \frac{3\pi}{2} & \text{pour } i = 0 \text{ et } j < 0 \end{cases} \quad (49)$$

Avec  $i$  et  $j$  sont le nombre de pixels respectivement dans les directions horizontale et verticale à partir du centre de l'image (Figure 25) et  $a$  est la distance entre deux pixels adjacents. Pour cette voie de mesure,  $d$  correspond à la distance « pinhole » capteur comme les deux miroirs paraboliques ont la même focale ou RFL.

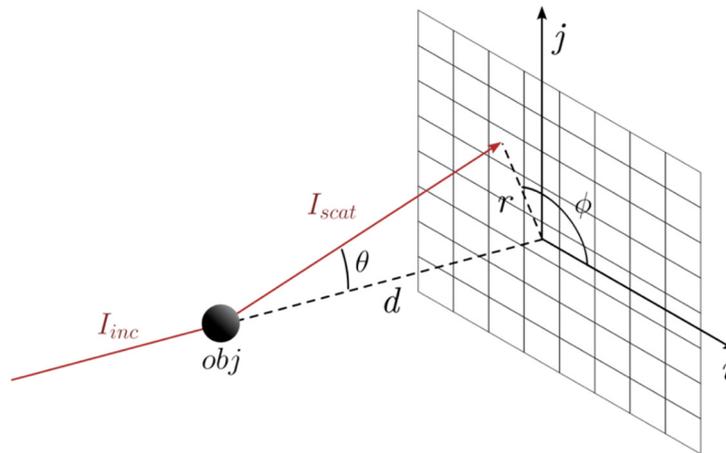


Figure 25 : Angles et distance décrivant le faisceau diffusé sur la matrice d'image ( $d$  : distance entre le centre de l'image et le point de convergence du faisceau diffusé,  $r$  : distance entre le centre de l'image et un pixel,  $\phi$  : angle azimutal autour du centre de l'image,  $\theta$  : angle de diffusion)

La distance  $d$  ne peut pas être déterminée précisément. C'est pour cela que nous allons procéder à une méthode de calibration angulaire fondée sur l'utilisation d'un objet de référence. La calibration des pixels du capteur avec des angles  $(\theta, \phi)$  est réalisée de manière rigoureuse en introduisant une ouverture circulaire de  $50 \mu\text{m}$  de diamètre à la même position que la particule. Cela induit la projection du motif de diffraction d'Airy sur le capteur, défini comme

$$I_{Airy}^{sca}(\theta, \phi) = I_0 [2J_1(kR_{ph} \sin \theta) / (kR_{ph} \sin \theta)]^2 \quad (50)$$

où  $I_0$  représente l'intensité de la lumière incidente,  $J_1(\dots)$  la fonction de Bessel du premier ordre, et  $R_{ph}$  le rayon de l'ouverture circulaire. Cette mesure est effectuée pour  $\lambda=632$  nm. OPM3 possède une ouverture en son centre, ce qui résulte par l'absence de la composante à  $\theta = 0^\circ$  du pic de diffraction, offrant ainsi une méthode de centrage du motif. La comparaison entre le motif d'Airy mesuré et sa forme théorique permet d'établir une cartographie précise de chaque pixel vers la paire  $(\theta, \phi)$ , comme décrit dans [100,158]. Le résultat, présenté en échelle logarithmique à la Figure 26, met en évidence la direction exacte de la diffusion vers l'avant comme point central de la grille polaire. La partie manquante du motif, due au perçage d'OPM3, est représenté par le disque noir central.

L'analyse de l'intégration angulaire du motif 2D suivant l'angle azimutal  $\phi$  permet d'obtenir la fonction de phase polaire  $I_{exp}^{sca}(\theta)$ , soit :

$$I_{exp}^{sca}(\theta) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} I_{exp}^{sca}(\theta, \phi) d\phi \quad (51)$$

La courbe résultante est ensuite comparée à  $I_{Airy}^{sca}(\theta)$  afin de réaliser une cartographie précise des pixels vers l'angle de diffusion  $\theta$ . Les résultats, présentés à la Figure 26 en échelle log-log, incluent une comparaison avec la courbe d'Airy. Il est à noter que toutes les courbes sont normalisées à l'intensité maximale mesurée  $I_{max}^{sca}$  au niveau de la courbe moyennée.

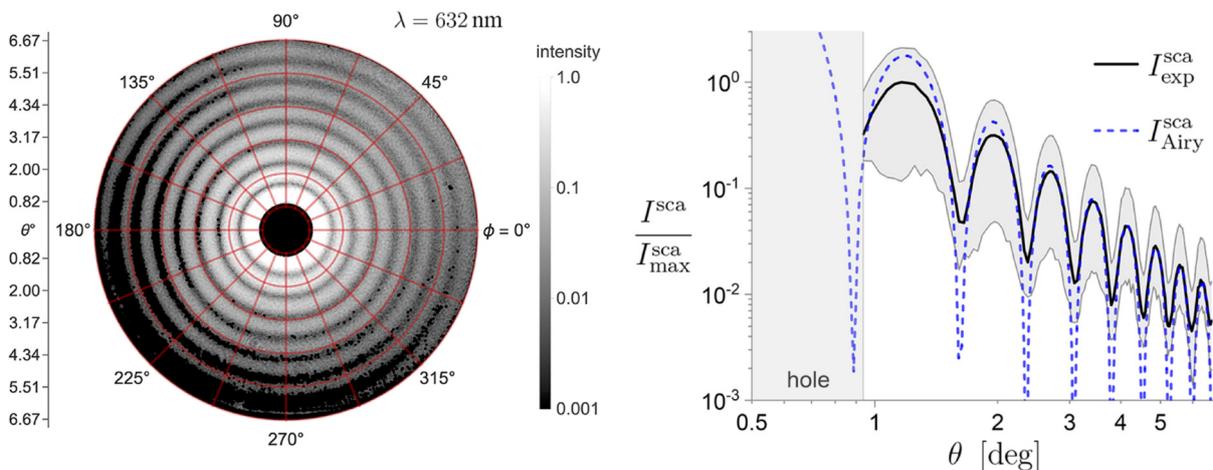


Figure 26 : Mesure de diffraction obtenue avec un « pinhole » de  $50 \mu\text{m}$  sur l'instrument décrit précédemment. L'image de gauche est la figure acquise directement depuis la caméra, diffusion 2D du « pinhole ». L'image de droite est la fonction de phase en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  moyenné autour de l'angle azimutal  $\phi$ , la mesure est comparée à la fonction de phase théorique apportée avec le modèle d'Airy.

La Figure 26 illustre le diagramme de diffraction résultant pour une ouverture de  $50 \mu\text{m}$  soumise à une longueur d'onde de  $632$  nm. Le phénomène observé, connu sous le nom de figure d'Airy, se caractérise par une série d'anneaux circulaires. Ces anneaux sont le résultat de la diffraction de la lumière à travers l'ouverture spécifiée. L'analyse détaillée de cette figure révèle une certaine distorsion ; les anneaux apparaissent plus resserrés à un angle azimutal de  $45^\circ$  et plus espacés à  $225^\circ$ . Cette distorsion démontre l'importance d'une calibration angulaire via la

méthode de diffraction d'Airy. En effet, cette calibration considère le fait que chaque angle de diffusion, mesuré depuis le centre de la figure, varie en fonction de l'angle azimutal.

L'ajustement de la calibration en tenant compte de ces distorsions permet, comme le montre l'analyse de la figure de diffusion moyennée, une correspondance entre les résultats expérimentaux et les prédictions théoriques établies sur l'équation 50. Cette correspondance se manifeste tant au niveau des angles de diffusion, où les minimums de diffraction des deux courbes se superposent, qu'au niveau des intensités normalisées, où l'on observe une décroissance logarithmique similaire dans les résultats mesurés et théoriques.

Il convient de noter que, bien que l'exemple présenté se concentre sur une longueur d'onde de 632 nm, cette méthodologie de calibration est appliquée à toutes les longueurs d'ondes étudiées. L'objectif est de garantir la précision de l'instrument sur l'ensemble du domaine d'observation. Par ailleurs, cette technique de calibration est également mise en œuvre dans le cadre de mesures en rétrodiffusion, utilisant un étalon différent. Les spécificités de cette méthode seront exposées en détail lors de la présentation de l'instrument dédié à la rétrodiffusion.

### III. Voie rétrodiffusion

Cette section est consacrée à la mesure en rétrodiffusion qui a fait l'objet d'un instrument de mesure à part entière combinant rétrodiffusion et holographie présenté ultérieurement, cet instrument a été développé durant les trois années de thèses, car il répond aux objectifs de la thèse dans le domaine du lidar. L'objectif est de réaliser en laboratoire des mesures spectro-polarimétrique en rétrodiffusion des aérosols. Ces données sont nécessaires à l'inversion des données lidar, qui se basent principalement sur la rétrodiffusion. Cette méthode vise à évaluer la fonction de phase rétrodiffusée en 2D, en fonction de la longueur d'onde et de la polarisation mesurée. Les mesures en polarimétrie sont d'autant plus importantes, car elles permettent de mesurer des données telles que la dépolarisation, paramètre très essentiel en lidar atmosphérique, car il est directement influencé par la morphologie et la composition des particules diffusantes. Ces capacités de mesure en polarisation à toutes les longueurs d'onde du visible rendent cet instrument particulièrement adapté à l'étude de la diffusion dans le domaine lidar par ces capacités de mesure sur des aérosols de paramètre majeurs pour les équations lidar.

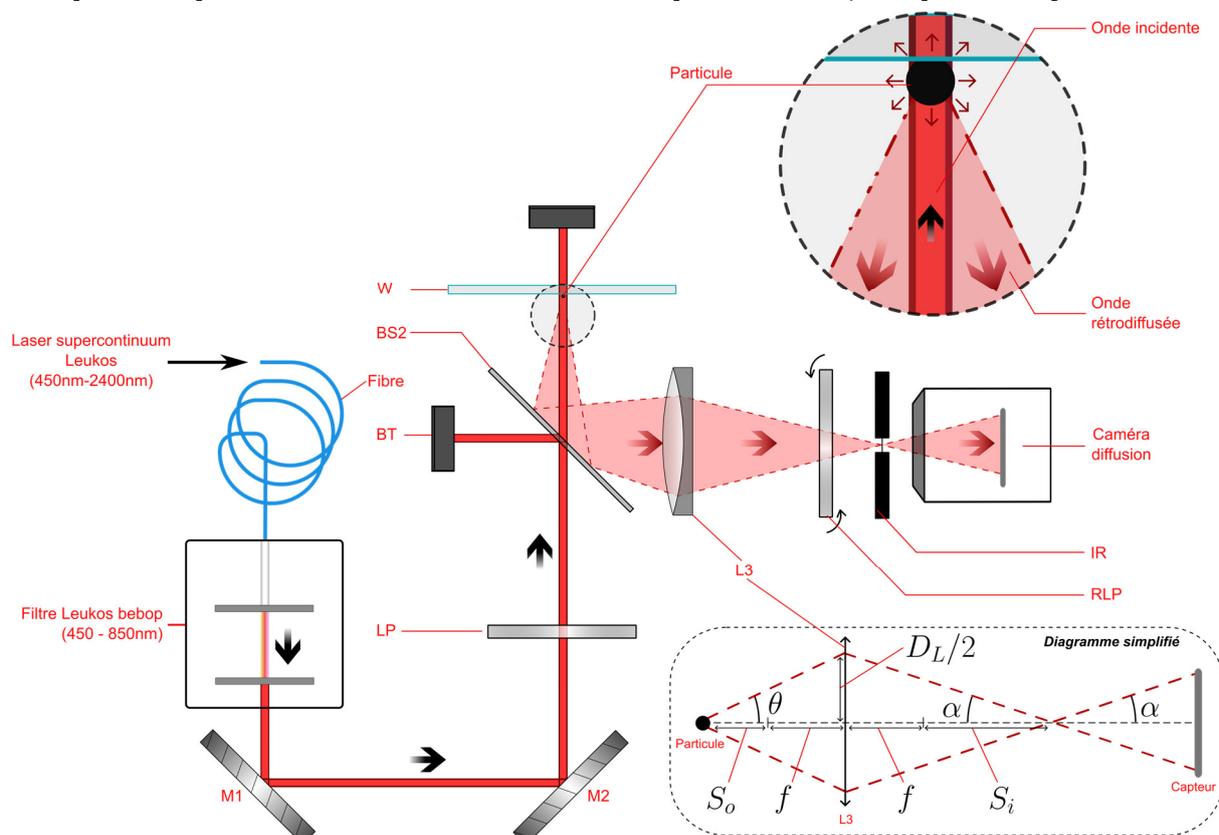


Figure 27 : Configuration optique pour l'instrument SOPHOS (Spectro-Polarimetric and Holographic Scaterometer). Un laser à supercontinuum émet des impulsions de lumière à longueur d'onde ajustable qui éclairent des particules stationnaires sur une fenêtre (W). La lumière rétrodiffusée par les particules est projetée sur un capteur, fournissant le motif d'intensité rétrodiffusée selon des angles polaires et azimutaux.

La configuration de rétrodiffusion spectro-polarimétrique illustrée en détail par la Figure 27, la source utilisée est un laser à supercontinuum (LEUKOS, Samba 450) qui émet un spectre allant de  $\lambda=450$  nm à  $\lambda=2400$  nm, le laser est associé à un collimateur (lentille achromatique) pour générer un faisceau d'environ 2 mm de diamètre avec une divergence très faible. Celui-ci est

ensuite couplé à un filtre ajustable (Leukos, BEBOP), composé de deux filtres, passe-bas et passe-haut, permettant de sélectionner une longueur d'onde unique entre  $\lambda=450$  nm et  $\lambda=850$  nm. À la sortie de ce filtre, on a donc un faisceau collimaté à la longueur d'onde voulue, il est ensuite réfléchi par une série de miroirs servants à rendre l'instrument plus compact. Il passe ensuite à travers un polariseur linéaire (LP: Thorlabs, WP25M-VIS) permettant de définir la direction de polarisation, ici la polarisation choisie est verticale, donc normale à la table optique, c'est un choix arbitraire souvent donnée en mesure lidar. Le faisceau passe ensuite à travers un diviseur de faisceau non polarisant (BS2: Thorlabs, BSW10R) et atteint l'échantillon constitué d'une multitude de particules déposées sur une fenêtre en verre légèrement inclinée (W) pour éviter toute réflexion directe. La portion de lumière rétrodiffusée par les particules est réfléchi via le diviseur de faisceau BS2 vers une lentille achromatique (L3: Thorlabs, AC254-030-AB-ML) de distance focale  $f=30$  mm.

Le rôle de la lentille est double : elle élargit la plage angulaire résolue par le capteur et refocalise la lumière diffusée pour minimiser la lumière parasite à l'aide d'un diaphragme (IR). L'angle de diffusion maximal, noté  $\theta_m$ , est déterminé par le diamètre  $D_L$  de la lentille et la distance entre les particules et la lentille,  $s_o + f$  comme donné par :

$$\theta_m = \tan^{-1} \left[ \frac{D_L}{2(s_o + f)} \right], \quad (52)$$

Où  $s_o$  représente la distance objet dans la formule de la lentille mince et correspond à la distance entre la particule et L3 via la réflexion depuis BS2 moins  $f$ . Un analyseur, c'est-à-dire un polariseur linéaire rotatif (RLP: Thorlabs, WP25M-VIS), est positionné entre L3 et IR pour résoudre l'état de polarisation de la lumière rétrodiffusée. L'analyseur est monté sur un étage de rotation motorisé, permettant d'orienter son axe de polarisation à un angle  $\psi$  de 0 à 180°.

La lumière rétrodiffusée est ensuite captée par le capteur de diffusion, un sCMOS à faible bruit (Hamamatsu, 13440), avec une résolution de 2048×2048 pixels, une taille de pixel de 2,4  $\mu\text{m}$ , une fréquence de 40 images par seconde, un obturateur global et un niveau de bruit électronique de 1 électron par pixel, réduisant significativement le bruit présent dans les mesures. Chaque pixel du capteur  $p$  correspond à une direction de diffusion spécifique, décrite par les angles polaires et azimutaux  $\phi$ ,  $\theta$ , respectivement. Comme illustré dans la Figure 25 et la Figure 27, l'angle de diffusion polaire  $\theta$  pour un pixel donné dépend de la position du pixel selon les axes  $x$  et  $y$  du capteur :

$$\theta(i, j) = \tan^{-1} \left[ \frac{(s_o + f)p(i, j)}{(s_i + f)d} \right] \quad (53)$$

Dans l'équation (53),  $p(i, j)$  représente le pixel dans le réseau de capteurs numéroté par les indices  $i$  et  $j$  le long des axes  $x$  et  $y$  du capteur,  $s_i$  est la distance d'image de la lentille, et  $d$  est la distance entre le plan d'image de la lentille et le plan du capteur.

La mise au point de la voie de rétrodiffusion a été le résultat d'un processus itératif, ayant abouti à plusieurs prototypes avant d'arriver à la conception finale multispectrale. Il est essentiel de noter que, préalablement à l'adoption de l'approche multispectrale, une phase de tests

préliminaires a été réalisée avec un laser monochromatique. Cette étape tendait à vérifier la faisabilité d'une mesure de rétrodiffusion grâce à un capteur CMOS. Le signal de rétrodiffusion, caractérisé par sa faible intensité, pose un défi significatif en termes de détection. Le choix initial d'un laser monochromatique, intrinsèquement plus puissant qu'un laser supercontinuum filtré, a été fait dans un premier temps. Cette décision visait à pallier les limites associées à la faible puissance lumineuse inhérente au laser supercontinuum lorsqu'il est filtré pour obtenir une lumière monochromatique, qui, en sortie de filtre a une puissance variant entre 25 et 150 $\mu$ W. Le tout en prenant en compte les contraintes liées à l'usage d'un capteur CMOS (moins sensible qu'une photodiode ou photomultiplicateur). Durant cette phase expérimentale, il a également été décidé de recourir à des miroirs paraboliques, comme pour les mesures de diffusion avant et ayant démontré leur efficacité dans cette mesure en multispectrale.

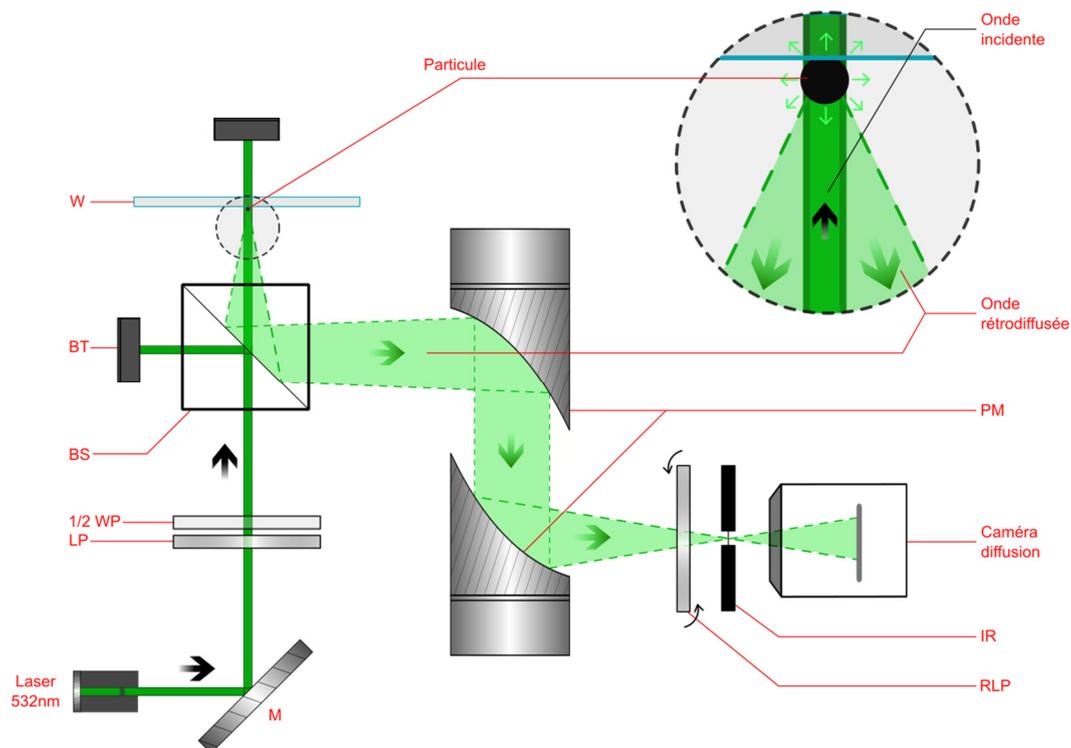


Figure 28 : Schéma optique de la première version de l'instrument de mesure de rétrodiffusion avec longueur d'onde unique (532 nm) et des miroirs paraboliques et un séparateur de faisceau pour focaliser la lumière sur une caméra sCMOS Hammamatsu

Des modifications notables pour atteindre l'instrument multispectral ont été apportées à la configuration initiale, notamment le remplacement des miroirs paraboliques par une lentille achromatique pour corriger l'astigmatisme et les distorsions optiques. L'emploi de miroirs paraboliques, reconnus pour leur achromatisme et leur diamètre important autorisant un angle de diffusion maximal élevé, engendrait néanmoins diverses difficultés techniques lors de leur mise en œuvre. Tout d'abord, l'ajustement précis de ces miroirs s'avère complexe, un léger désalignement est susceptible de provoquer des distorsions notables sur l'image résultante. Dans un second temps, la nature astigmatique de ces miroirs signifie que le point focal varie en fonction des axes de réflexion sur le miroir, rendant ainsi l'application d'un filtre spatial, qui nécessite le positionnement d'un diaphragme au point focal, particulièrement difficile et inefficace contre toutes les lumières parasites. Face à ces contraintes, nous avons privilégié l'adoption d'une lentille

achromatique. Bien que de diamètre inférieur, cette lentille peut être positionnée plus près du diviseur de faisceau, ce qui ne modifie pas l'angle maximal de diffusion observable. Sa caractéristique achromatique assure une variation minimale du point focal en fonction de la longueur d'onde, dans le respect du domaine spectral spécifié pour notre instrument. Cette substitution entraîne une réduction des distorsions, par la singularité de la lentille et sa facilité d'alignement, simplifiant ainsi la procédure de calibration angulaire.

Une modification substantielle a été apportée concernant le séparateur de faisceau de l'instrument. La configuration initiale implémentait un type de diviseur de faisceau désigné sous le terme de « pellicule », essentiellement un film plastique aux propriétés semi-réfléchissantes. L'atout principal de ce diviseur résidait dans sa finesse ainsi que dans sa capacité à minimiser les réflexions parasites. Toutefois, la variabilité significative et périodique de sa réflectance/transmittance en fonction de la longueur d'onde constituait un handicap pour des applications en mode multispectral. Pour surmonter cette limitation, la décision a été prise de remplacer le diviseur de faisceau initial par un modèle de type lame, caractérisé par une épaisseur de 1 mm. Cette modification visait principalement à obtenir une réflectance/transmittance plus uniforme à travers différentes longueurs d'onde, contribuant ainsi à atténuer la variabilité en fonction de la longueur d'onde tout en conservant des réflexions parasites peu intense.

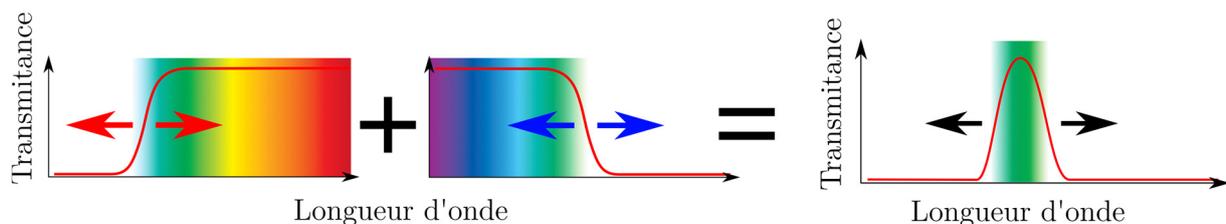


Figure 29 : Illustration de l'instrument de filtration spectrale bebop de Leukos. Présence de deux filtres passe haut et passe bas dont la fréquence de coupures est variable selon la position du faisceau sur le filtre, permettant ainsi le choix de la longueur d'onde de sortie et la largeur de bande.

Le système de filtration spectrale conçu pour la diffusion avant (supercontinuum + monochromateur) ne permet pas d'atteindre la puissance désirée en rétrodiffusion due au surplus d'optique utilisé avec le monochromateur. Pour surmonter cette contrainte, une nouvelle approche a été adoptée pour filtrer efficacement le laser supercontinuum tout en minimisant le recours aux composants optiques. Afin de réduire au maximum l'utilisation d'optiques supplémentaires, le laser supercontinuum est directement fibré et collimaté à la sortie de la fibre, qui est ensuite connectée au filtre bebop. L'objectif de la filtration spectrale n'est pas de reproduire la finesse spectrale d'un laser monochromatique, mais plutôt d'atteindre une plage d'environ  $\pm 2.5$  nm (FWHM = 5nm) autour de la longueur d'onde filtrée. La solution adoptée dans cette étude repose sur l'utilisation du filtre bebop, développé par Leukos. Ce dispositif offre la capacité de balayer n'importe quelle longueur d'onde dans la plage de 450 à 850 nm, avec une finesse spectrale remarquable de  $\pm 2,5$  nm. Notamment, tant le laser supercontinuum que le filtre sont développés par Leukos, assurant ainsi une compatibilité optimale entre le couple laser/filtre. Cette approche combine efficacité et polyvalence, répondant aux exigences spécifiques de notre application tout en maximisant les performances du système global. Le filtre bebop fonctionne avec deux filtres passe-bandes, un passe-haut et un passe-bas, ne laissant passer que respectivement les longueurs d'onde supérieures et inférieures à une fréquence de coupure. Cette

fréquence de coupure est variable en fonction de la position latérale sur laquelle passe le faisceau. L'association de ces deux filtres et le choix de leur position latérale permettent donc de filtrer la longueur d'onde de sortie d'un faisceau blanc à la fois sur la longueur d'onde voulue, et sur la largeur de spectre.

La précision de la longueur d'onde en sortie dépend étroitement de la précision des platines de déplacement associées aux filtres passe-haut et passe-bas, ainsi que de la justesse du changement de fréquence de coupure en fonction de la position du filtre. Ces deux paramètres contribuent à une erreur de l'ordre de 0,2 nm sur la longueur d'onde souhaitée. Le processus de commande du filtre s'effectue de manière automatique via un code Python dédié à la mesure de diffusion, permettant ainsi de balayer les longueurs d'ondes requises avant le déclenchement de la mesure. Cette commande, réalisée par le biais de la communication RS232, transmet l'information au plateau de déplacement, induisant un ajustement correspondant aux fréquences de coupure spécifiées. Il est déterminant de noter que la relation entre la position du filtre et la longueur d'onde n'est pas totalement linéaire. Une calibration préalable, effectuée par Leukos, s'avère indispensable pour établir cette corrélation. La position en longueur d'onde des filtres est ainsi déterminée par les relations

$$\lambda_{\text{low}} = \lambda_{\text{out}} - \left(\frac{\text{FWHM}}{2}\right), \quad \lambda_{\text{high}} = \lambda_{\text{out}} + \left(\frac{\text{FWHM}}{2}\right) \quad (54)$$

Où  $\lambda_{\text{low}}$  et  $\lambda_{\text{high}}$  sont respectivement les longueurs d'onde de coupure des filtres passe bas et passe haut,  $\lambda_{\text{out}}$  est la longueur d'onde de sortie du filtre et FWHM est la largeur de bande spectrale de sortie. Ces positions sont exprimées en nm, représentant la longueur d'onde désirée. Cependant, pour convertir ces positions en une valeur réelle du filtre, l'utilisation de la fonction de conversion fournie par Leukos, établie au cours de la calibration du Bebob, est impérative. Cette méthodologie garantit une précision et une cohérence optimales dans le positionnement des filtres, assurant ainsi la fiabilité des mesures de diffusion ultérieures.

## 1. Mesures polarimétriques

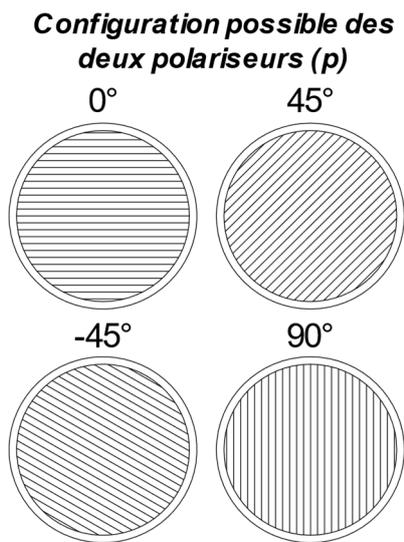


Figure 30: Les quatre orientations des polariseurs lors de la mesure

L'état de polarisation de la lumière rétrodiffusée est mesuré au moyen de deux polariseurs linéaires à large bande, LP (linear polarizer) et RLP (rotative linear polarizer), conformément à [159]. Le premier polariseur LP contrôle l'état de polarisation initial du faisceau incident, tandis que le second polariseur RLP est positionné après la lentille achromatique L3, permettant uniquement le passage d'une polarisation linéaire orientée à un angle  $\psi$ . Quatre angles spécifiques de polarisation sont considérés :  $\psi=0^\circ, 45^\circ, -45^\circ$  et  $90^\circ$ . Le premier polariseur est orienté verticalement, position qui génère une polarisation linéaire verticale incidente sur la particule, pour mesurer le coefficient de dépolarisation avec un faisceau totalement polarisé en incidence. Le second polariseur, utilisé comme analyseur, est monté sur un élément rotatif, permettant ainsi de piloter par ordinateur l'angle de l'analyseur. Ce mécanisme rotatif est connecté à un contrôleur

de servomoteur, lui-même piloté par une commande RS232. Les instructions nécessaires sont transmises via un code Python dédié, assurant alors l'automatisation du processus de mesure. La position du moteur est déterminée par un nombre de pas spécifique, avec un nombre total de pas requis pour effectuer un tour complet. Le nombre de positions du moteur sur un tour est de 3 000, ce qui entraîne un angle minimum de rotation égal à  $0.12^\circ$ , entraînant par conséquent une erreur sur la position de  $\pm 0.06^\circ$  lors de la rotation. Cette configuration garantit une flexibilité optimale dans l'ajustement de l'angle du polariseur d'analyse, tout en permettant une automatisation précise via des commandes Python et une communication RS232. Ces éléments sont importants pour assurer la reproductibilité des mesures et la minimisation des erreurs dans le processus d'analyse polarimétrique.

Ce dispositif de mesure permet de mesurer le taux de dépolarisation linéaire  $\delta_L$ , utilisé en lidar pour identifier le type d'aérosols [160]. Par la suite, les mesures sont représentées par le vecteur de Stokes, noté  $S$  et défini dans le chapitre 1, ici, nous allons utiliser le vecteur de Stokes en intensités mesurées comme le montre l'équation 55 ci-dessous. Avec la possibilité de choisir la position du polariseur rotatif (RLP), l'intensité polarisée peut être mesurée pour différents angles  $\psi$  afin de déterminer le vecteur de Stokes. Ainsi, nous introduisons la notation  $I_\psi$  pour représenter la mesure du capteur lorsque le RLP, ou l'analyseur, est orienté à l'angle  $\psi$ . La dépolarisation linéaire  $\delta_L$ , est définie dans le chapitre 1 et est déterminée par le rapport entre la différence  $I-Q$  et la somme  $I+Q$ . Il peut également être exprimé comme le rapport de  $I_{90}$  à  $I_0$  qui représentent respectivement la polarisation horizontale et verticale par rapport à la table optique.

$$S = \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{90} + I_0 \\ I_{90} - I_0 \\ I_{45} - I_{-45} \\ I_{45} - I_{-45} \end{pmatrix} \quad (55)$$

Notez que  $I_{\odot}$  et  $I_{\ominus}$  dans l'équation 55, représentant, l'intensité de lumière polarisée circulairement à droite et à gauche, ne sont pas mesurées avec l'instrument.

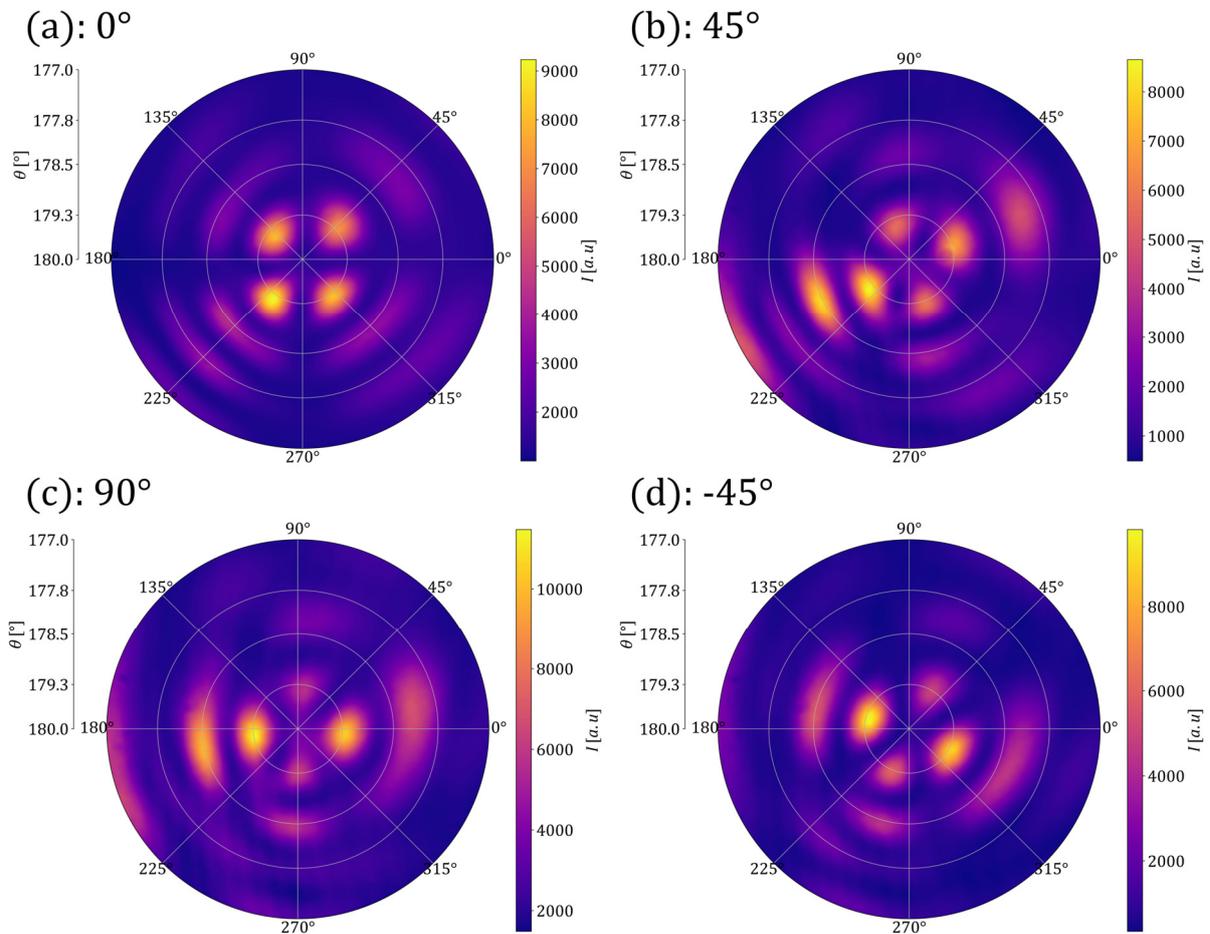


Figure 31 : Diagramme de rétrodiffusion en deux dimensions pour une particule sphérique de 32µm avec l'intensité rétrodiffusée en fonction des deux angles de diffusion  $\theta$  et  $\phi$ . Les quatre images correspondent aux intensités rétrodiffusées pour chaque polarisation observée par l'analyseur 0°, 45°, 90°, -45°.

Une illustration pour la mesure de polarisation est la mesure sur une particule sphérique, Figure 31. Ces diagrammes montrent l'intensité rétrodiffusée par ce type de particule aux quatre polarisations définies précédemment. Les observations montrent que l'intensité diffusée varie significativement avec la polarisation :

- Pour une polarisation parallèle (à 90° par rapport au faisceau incident), les intensités maximales sont observées aux angles azimutaux de 0° et 90°. Cela indique que la lumière conservant sa polarisation d'origine est principalement diffusée dans ces directions.
- En configuration de polarisation perpendiculaire, les intensités se manifestent aux angles azimutaux de 45° et -45°. Cette orientation dénote une rotation de la polarisation due à la diffusion, avec une préférence pour ces directions spécifiques.

- Pour les polarisations diagonales, à 45° et -45°, les intensités se dirigent vers les angles azimutaux de 30°/120° et 60°/150°, respectivement.
- Il est également intéressant de noter que, pour chaque polarisation analysée, les deux angles azimutaux où l'intensité rétrodiffusée est maximale sont perpendiculaires entre eux.
- 

Ces résultats mettent en lumière la complexité des interactions entre la lumière et les particules, la polarisation n'est pas simplement conservée ou inversée ; elle peut être modifiée de manière complexe en fonction de l'orientation de la particule et des propriétés optiques du matériau.

## 2. Calibration

La calibration représente une étape essentielle dans le processus de mise au point d'un instrument de mesure, garantissant que les résultats obtenus reflètent fidèlement le phénomène étudié – en l'occurrence, la rétrodiffusion par des particules – sans interférence de lumière parasite ou d'altération due aux composants optiques affectant la polarisation, la longueur d'onde, ou l'angle de diffusion. Pour assurer une précision maximale des mesures, il est prévu de mettre en œuvre trois types de calibrations distincts, associant une matrice de correction  $M_{opt}$  à chaque moyen correctif ciblant un aspect spécifique de l'instrument :

- Calibration Angulaire* : associer chaque pixel aux bons angles de diffusion.
- Calibration Spectrale* : associer les intensités relatives en fonction de la longueur d'onde, pour que les rapports d'intensités en fonction de la longueur d'onde soient justes.
- Calibration Polarimétrique* : associer les intensités relatives en fonction de la polarisation pour que les rapports de polarisation soient mesurés correctement

En couvrant ces trois aspects – angulaire, spectral, et polarimétrique – la calibration de l'instrument se veut exhaustive, visant à optimiser sa fiabilité et sa précision à travers tout le spectre de mesures qu'il est capable de réaliser.

### 2.1. Calibration angulaire

L'objectif de la calibration angulaire est de préciser un angle de diffusion pour chaque pixel de la caméra, avec un étalon de diffusion. Pour la diffusion avant, un "pinhole" était utilisé pour effectuer cette calibration. Toutefois, cette méthode n'est pas applicable en rétrodiffusion, car la diffraction à travers une ouverture circulaire fonctionne uniquement dans le sens de propagation du faisceau incident. Pour surmonter cette limitation, des particules sphériques sont employées afin de mesurer les intensités rétrodiffusées, permettant ainsi la calibration de l'instrument. Cette méthode s'appuie sur la théorie de Mie, qui décrit précisément la diffusion par des particules sphériques.

Les calculs d'angles de diffusion en fonction des coordonnées de la matrice du capteur nous permettent d'obtenir un premier résultat d'angle de diffusion, mais certaines distances dans ce calcul ne peuvent pas être mesurées concrètement et sont responsables de l'erreur dans la détermination de ces angles de diffusion. De plus, ces calculs ne prennent pas en compte les effets

de distorsion générés par les différents éléments optiques de l'instrument. Pour considérer les effets de distorsion et obtenir les bons résultats, on attribue à chaque pixel de la caméra une valeur d'angle de diffusion et d'azimutal. La technique utilisée ici consiste à comparer une mesure de diffusion sur une particule sphérique en verre avec la diffusion théorique calculée avec le modèle de Lorentz-Mie. On a choisi une particule de  $32 \mu\text{m}$  car, dans la gamme de longueur d'ondes et d'angle de diffusion possibles, ce type de particule permet d'observer une succession d'au moins deux anneaux de diffusion, donc optimale pour l'observation de distorsion.

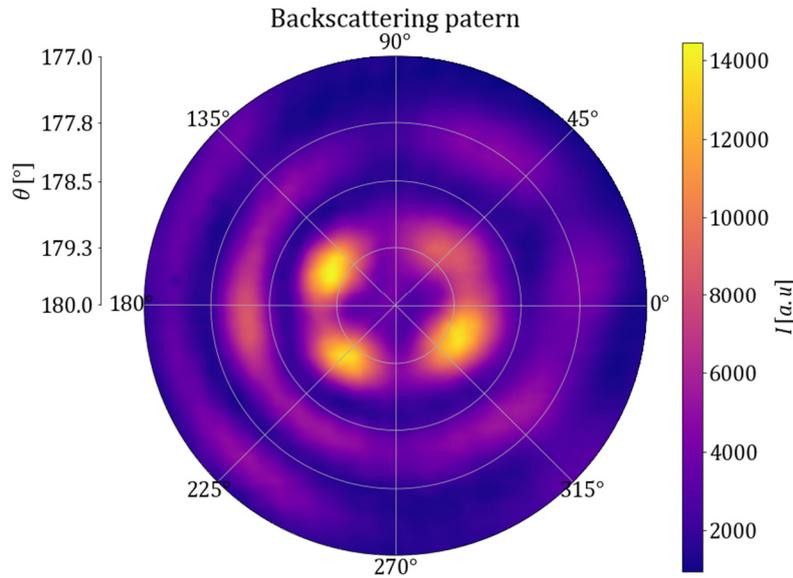


Figure 32 : Intensités  $I$  du vecteur de Stokes mesurées par la caméra en fonction des angles  $\theta$  et  $\phi$ .

La Figure 32 montre le diagramme de diffusion mesuré sur cette particule sphérique de  $32 \mu\text{m}$ , il s'agit de l'intensité  $I$  du vecteur de Stokes. On peut observer sur cette image les distorsions générées par les différents éléments optiques de l'instrument et leur potentiel désalignement. La diffusion d'une particule sphérique est censée montrer une figure en anneaux parfaitement symétrique autour de l'angle azimutal. Cependant, ce qu'on observe ici est une figure en anneaux déformée et allongée au niveau de  $\phi=45^\circ$  et compressée au niveau de  $\phi=225^\circ$ . Pour corriger cette distorsion, on va d'abord transformer le schéma de diffusion classique en 2D en une multitude de fonctions de phase pour chaque angle azimutal,  $I(\theta, \phi)$  avec  $\phi = [0^\circ, 359^\circ] \in \mathbb{N}$ . Pour ce faire, on utilise des valeurs d'angles données aux pixels précédemment (équation 53). Les pixels correspondant à la fonction de phase voulue pour un angle  $\phi$  donné sont donc sélectionnés avec  $\phi = n \pm 0.5^\circ$ . On a ainsi une fonction de phase différente pour chaque angle azimutal  $\phi$ . On peut voir sur la Figure 33.(a) les différentes fonctions de phase en fonction de cet angle. On observe aussi la distorsion, car ces fonctions devraient être les mêmes peu importe l'angle azimutal. Pour corriger ceci, on se sert d'une fonction de phase théorique calculée avec le modèle de Lorentz-Mie pour une particule de  $32 \mu\text{m}$  en verre avec un indice de réfraction  $m(\lambda = 532 \text{ nm}) = 1.52 + 10^{-6}i$ . On fait correspondre les deux courbes, mesurée et théorique, pour un angle  $\phi$  donné grâce à une loi de puissance [161].

$$\theta \rightarrow a\theta + b\theta^2 \quad (56)$$

Cette transformation est appliquée à la courbe mesurée pour la faire correspondre à la courbe théorique.

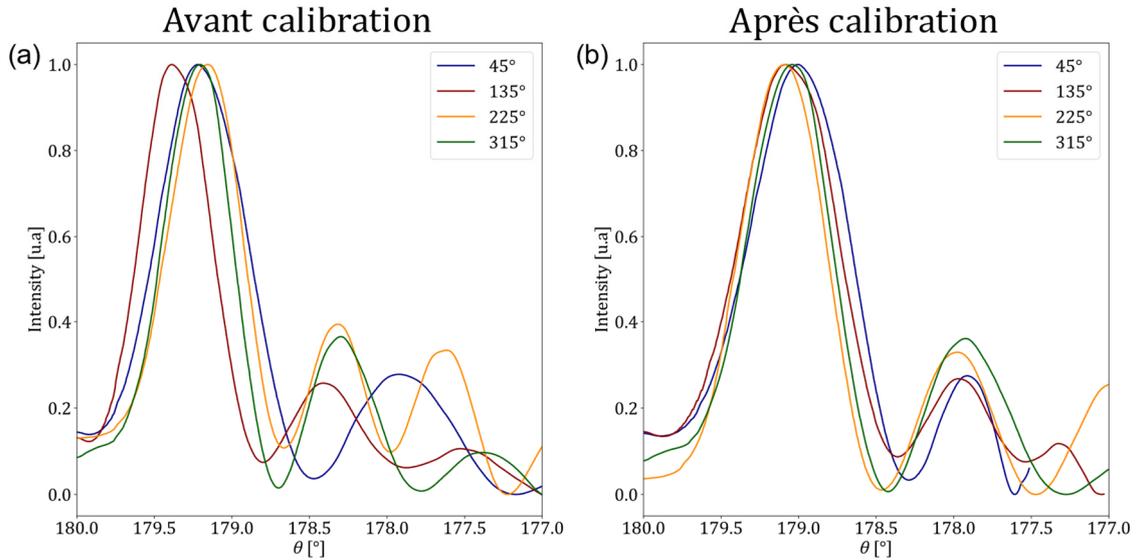


Figure 33 : Fonction de phase d'une particule sphérique (intensité en fonction de l'angle de diffusion). Chaque courbe représente un angle azimutal  $\phi$  différents ( $45^\circ$ ,  $135^\circ$ ,  $225^\circ$ ,  $315^\circ$ ). (a) La fonction de phase non corrigée angulairement, (b) Fonction de phase corrigée.

#### a. Méthode pour deux minimums ou plus

Pour cela, on établit donc une fonction analytique pour déterminer les coefficients  $a$  et  $b$ . Dans cette fonction, on utilise des minimums sur les deux fonctions de phase théorique,  $\theta_n^{ref}$  et  $\theta_n$  où  $n$  est un nombre entier correspondant au  $n$ -ième minimum et  $ref$  pour la valeur théorique, référence. Le but est de garantir que  $\theta_n = \theta_n^{ref}$  en employant la loi puissance. Pour cela, seuls les deux premiers minimums,  $\theta_1$  et  $\theta_2$ , sont utilisés. On a donc deux équations à deux inconnues

$$\begin{cases} \theta_1^{ref} = a\theta_1 + b\theta_1^2 \\ \theta_2^{ref} = a\theta_2 + b\theta_2^2 \end{cases} \quad (57)$$

Ainsi

$$\begin{cases} a = \frac{\theta_1^{ref}}{\theta_1} - \theta_1 \left( \frac{\theta_2^{ref} - \frac{\theta_1^{ref}}{\theta_1} \theta_2}{\theta_2^2 - \theta_2 \theta_1} \right) \\ b = \frac{\theta_2^{ref} - \frac{\theta_1^{ref}}{\theta_1} \theta_2}{\theta_2^2 - \theta_2 \theta_1} \end{cases} \quad (58)$$

On obtient ainsi un coefficient  $a$  et  $b$  pour chaque valeur  $\phi$ . Ces données sont enregistrées sur une matrice de correction, et par conséquent, on peut calculer chaque nouvelle valeur de  $\theta$  en fonction de  $\phi$ .

$$\theta_{new}(\phi) = a(\phi) \cdot \theta + b(\phi) \cdot \theta^2 \quad (59)$$

### **b. Méthode si un seul minimum**

La première méthode est analytique, ce qui a l'avantage de faire correspondre exactement le minimum entre les deux courbes et de calibrer avec précision l'angle de diffusion. En contrepartie, le défaut de cette méthode est que, pour certains angles azimutaux, l'image est trop distordue, et on n'a qu'un seul minimum à disposition. Pour ces angles, on va donc utiliser une méthode d'optimisation de fonction de coût dont le but sera de minimiser la fonction suivante.

$$opt(\phi, a, b) = \sum_{\theta=180^\circ}^{\theta_{max}} \ln \left( \frac{f'(\theta_{new}, \phi)}{f'_{Mie}(\theta, \phi)} \right) \quad (60)$$

La fonction d'optimisation est minimisée avec une méthode de Newton en ne faisant varier que les paramètres  $a$  et  $b$ . Ainsi, on obtient les paramètres  $a$  et  $b$  qui correspondent le mieux à la fonction de phase obtenue avec le modèle de Mie. Maintenant que l'on a les paramètres  $a$  et  $b$  selon tous les angles  $\phi$ , on obtient une matrice de correction angulaire qui sera utilisée lors de mesures sur des aérosols pour obtenir les bons angles de diffusion Figure 33.(b).

## **2.2. Calibration spectrale**

L'objectif de la calibration spectrale consiste à quantifier la puissance lumineuse incidente au niveau de la particule en fonction de la longueur d'onde. Cette variation de puissance dépend du spectre initial du laser supercontinuum, du spectre en sortie du filtre bebop, ainsi que de la transmittance/réfectance des différents éléments optiques de l'instrument et de l'efficacité quantique du capteur, variable en fonction de la longueur d'onde. Le processus de calibration utilise un « power mètre » (PM16-121), et différentes mesures de puissance sont réalisées à divers points de l'instrument. Le protocole de mesure prévoit l'utilisation de 80 longueurs d'ondes allant de 450 à 850 nm, espacées de 5 nm, avec une largeur de pic de 5 nm, analogue aux mesures effectuées sur des particules.

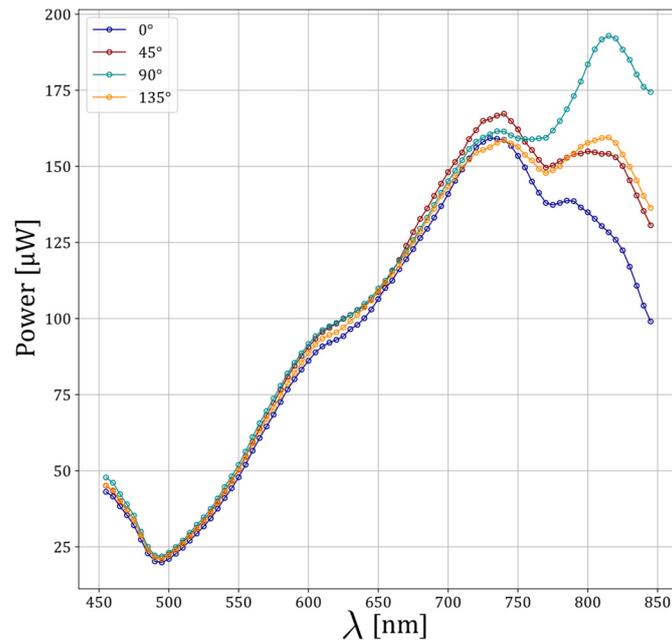


Figure 34 : Puissance du laser à la sortie du filtre bebop et du premier polariseur linéaire. Ici est représenté quatre courbes de puissance pour 4 états de polarisation linéaire  $0^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $-45^\circ$ .

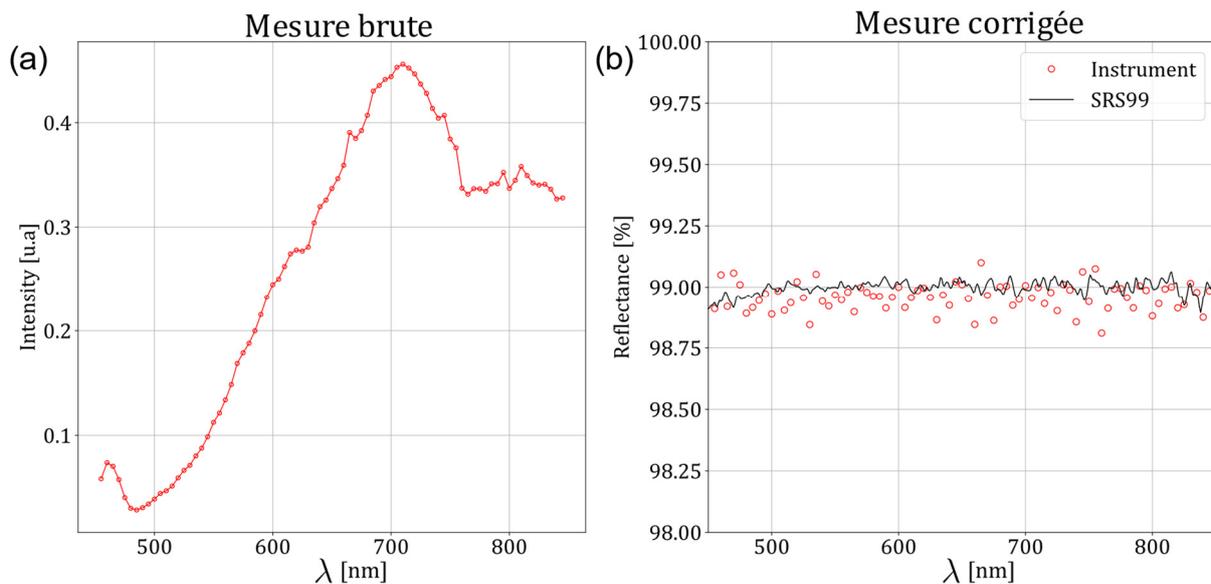


Figure 35 : Évolution de l'intensité rétrodiffusée par le spectralon SRS99 (99 % de réflectance). (a) intensité directement obtenue par la caméra (b) Signal corrigé du rapport d'intensité entre l'intensité du faisceau initial et l'intensité mesurée par la caméra en rouge, la courbe noire correspond aux valeurs de réflectance données par le constructeur.

La première étape de la calibration spectrale implique la réalisation de mesures sur un spectralon blanc à réflectance de 99 % (SRS99), avec une analyse du signal capturé par la caméra. L'utilisation d'un spectralon blanc est motivée par sa réflectance Lambertienne et stable, de 99 %, en fonction de la longueur d'onde (dans le visible). Mais, on observe que le signal brut affiche de fortes variations, avec un pic de réflectance vers 700 nm, attribuable aux différences de réflectivité du séparateur de faisceau selon la longueur d'onde et à l'efficacité quantique de la caméra. Pour

corriger le signal en fonction de la longueur d'onde, on considère le signal comme normalement stable et on applique un coefficient correcteur variable pour obtenir un signal plat en sortie. Cette correction considère la variation de réflectivité du séparateur de faisceau et la variation de l'efficacité quantique de la caméra. Une fois le signal corrigé, on obtient des valeurs normalisées entre 0 et 1. Ces données sont structurées pour réaliser une étude qualitative, permettant la comparaison des signaux entre différentes longueurs d'onde. Pour observer les variations du signal en fonction de la longueur d'onde, des études ont été menées sur différents spectralons colorés, avec un exemple présenté pour un spectralon rouge et un cyan. Les résultats sont comparés aux réflectances fournies par le fabricant de spectralons (Labsphere). La Figure 36 illustre la réflectance normalisée en fonction de la longueur d'onde pour ces spectralons colorés, montrant une concordance satisfaisante avec les données de référence pour le spectralon rouge. Pour le spectralon cyan, la bande de réflectance et d'absorbance correspond aux données de référence, bien que la réflectance mesurée soit légèrement plus élevée pour les faibles longueurs d'onde. Cette forme de calibration revêt un intérêt pour l'étude qualitative du signal en fonction de la longueur d'onde. Cependant, elle n'est pas utilisée dans la partie polarisation, notamment pour la dépolarisation, car les valeurs utilisées sont des ratios de signaux indépendants de variations constantes en fonction de la longueur d'onde, comme celles du séparateur de faisceau ou de l'efficacité quantique de la caméra.

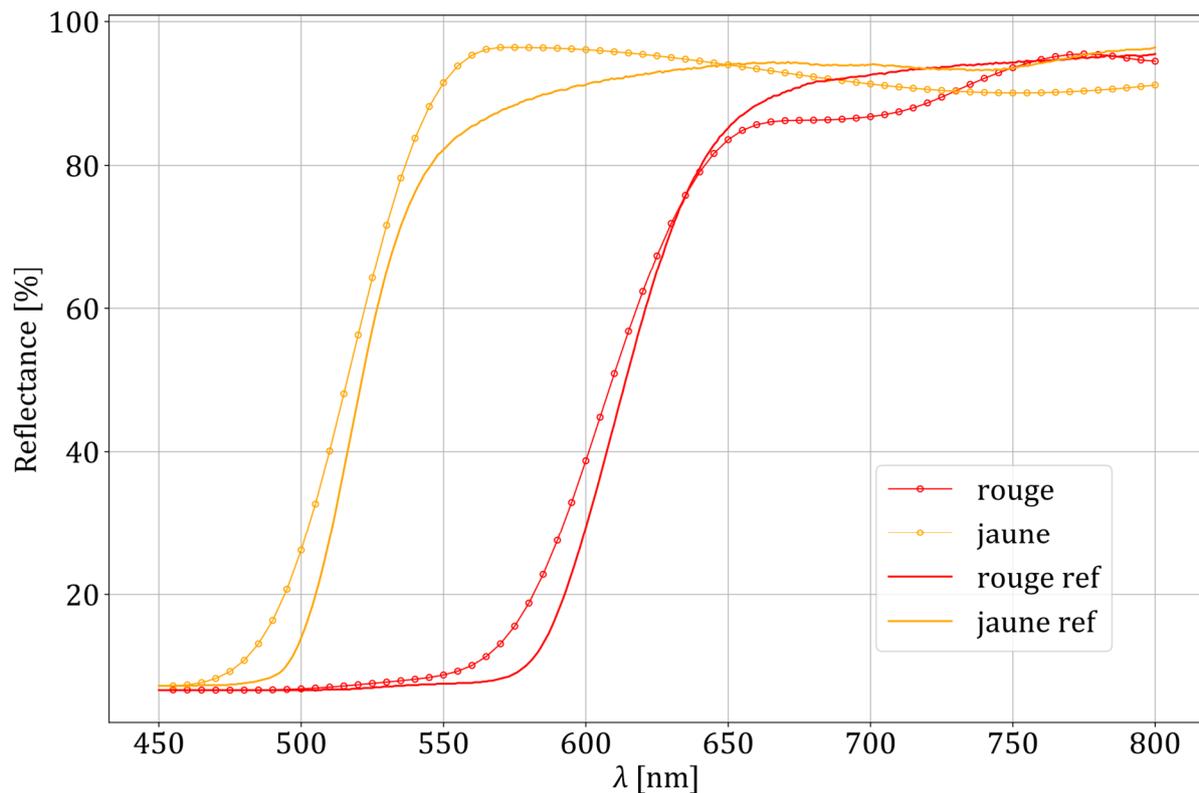


Figure 36 : Rapport d'intensité normalisé pour des spectralon de couleur rouge et jaune (les couleurs de courbes correspondent aux couleurs des spectralon) en fonction de la longueur d'onde. Les courbes avec les points sont les données mesurées par notre instrument et les courbes lisses sont les données de réflectances données par le fabricant de spectralon.

### 2.3. Calibration polarimétrique

L'instrument SOPHOS réalise des mesures polarimétriques avec deux polariseurs linéaires, le premier polariseur contrôlant la polarisation incidente, déterminée comme verticale, étant généralement utilisée en mesure lidar. Le faisceau incident de notre laser est totalement dépolarisé, d'où la nécessité d'utiliser un polariseur linéaire. De plus, l'utilisation d'un faisceau supercontinuum, avec une multitude de longueurs d'onde dans le visible, ne permet pas l'utilisation de lames demi ou quart d'onde afin de conserver un maximum de puissance. Le but principal de l'instrument est de mesurer la dépolarisation induite par une ou plusieurs particules, aérosols déposés sur une lame de verre.

La prise en compte de l'effet de la lame de verre est essentielle dans cette mesure. Dans le but d'isoler cet effet, des mesures préliminaires sans particules, désignées sous le terme de « dark », sont systématiquement effectuées. Ces mesures servent de référence et sont soustraites des mesures réalisées avec des particules, dans le but d'éliminer toute lumière issue de réflexions indésirables ou de la lame de verre elle-même. Concernant l'interaction entre les particules et la lame de verre, sa prise en compte s'avère complexe, par l'impossibilité de réaliser des mesures sur les particules sans l'intervention d'une lame de verre. Par conséquent, les mesures intègrent à la fois la diffusion par les particules et l'interaction entre la lame et les particules. Cependant, cet effet est considéré comme négligeable. En effet, les analyses ultérieures de dépolarisation indiquent que les particules sphériques affichent une dépolarisation cohérente, suggérant une influence minime de l'interaction lame/particule sur les résultats mesurés.

Pour cela, il est nécessaire de mesurer la polarisation après la réflexion sur un séparateur de faisceau. La diffusion de la lumière polarisée produite par la particule est aussi polarisée dans certaines directions avec plus ou moins de dépolarisations par rapport au faisceau incident. Cependant, le séparateur de faisceau, utilisé pour réfléchir la lumière rétrodiffusée n'agit pas de manière linéaire en fonction de la polarisation. Ce type de séparateur de faisceau, un 50/50, réfléchit 50 % de la lumière incidente et en transmet 50 %, mais cela est vrai uniquement pour une longueur d'onde et un faisceau totalement dépolarisé. En réalité, le taux de réflexion d'un tel polariseur varie autour de 50 % en fonction de la longueur d'onde, et il y a aussi une grande différence de réflectivité en fonction de la polarisation. Cette variation de réflectivité en fonction de la polarisation pose un problème lors de la mesure de la dépolarisation pendant la diffusion de la lumière par un aérosol, car la lumière analysée par la caméra est une combinaison des changements de polarisation générés par la particule, le séparateur de faisceau et d'autres éléments optiques. Autrement dit, les états de polarisation de la lumière peuvent partiellement être altérés par un élément optique lors de la transmission/réflexion de la lumière sur celui-ci. Ainsi, une calibration de l'instrument est nécessaire pour analyser les données sans être perturbé par le séparateur de faisceau. Pour calibrer l'instrument, on revoit la configuration initiale de celui-ci pour positionner le laser incident au niveau de la particule sur la configuration normale. Le faisceau incident va donc être considéré comme étant la partie rétrodiffusée d'une particule, mais on est capable de contrôler la polarisation initiale du faisceau. Ainsi, on va mesurer la puissance du faisceau initial  $I_\chi$  et la puissance du faisceau en sortie du système optique après le passage par l'analyseur  $I_{\chi/\psi}$  où  $\chi$  est l'orientation angulaire de polarisation et  $\psi$  celle de l'analyseur.

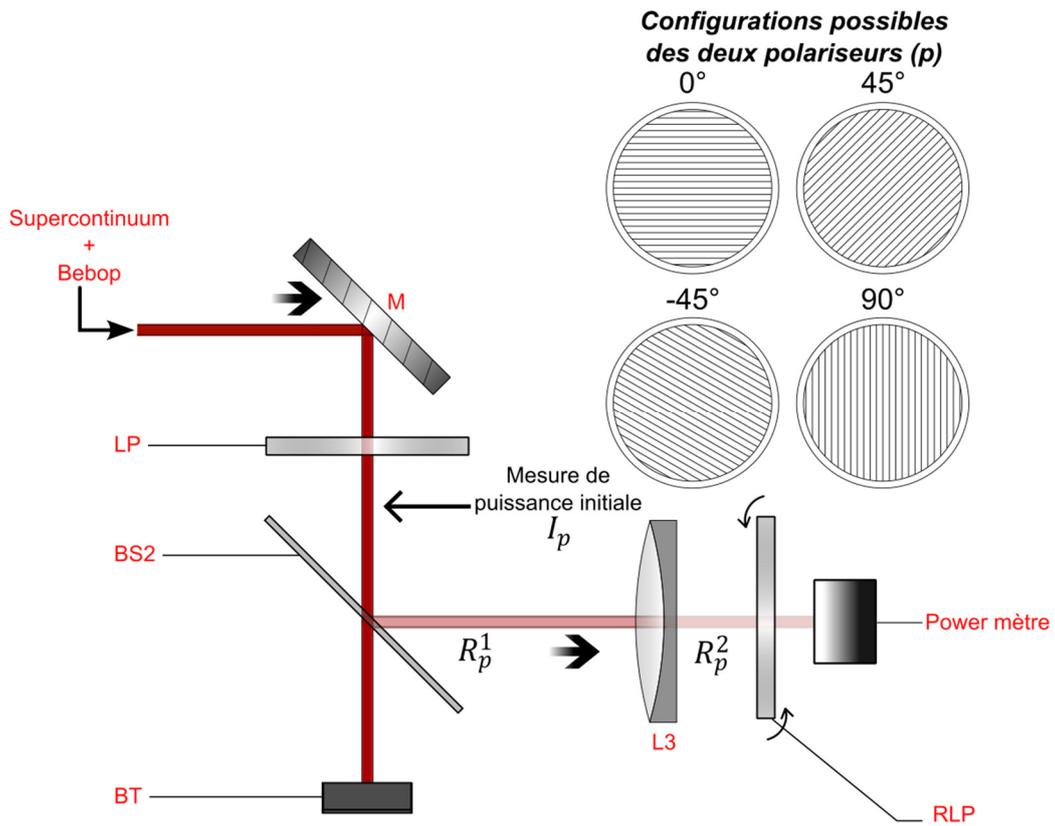


Figure 37 : Schéma optique des premiers essais de calibration sur la première version de l'instrument utilisant deux miroirs paraboliques. La puissance est mesurée en sortie des deux miroirs avec les polariseurs tournés à 0°, 45°, 90° et 135° et le polariseur et l'analyseur tournés chacun dans la même orientation.

Pour la calibration en polarimétrie, deux méthodes tenant compte des résultats de mesure précédemment évoquées sont proposées :

### **Méthode de Réflectance :**

- Cette méthode implique la mesure des coefficients de réflectance des différents éléments optiques. L'objectif est d'évaluer comment ces éléments réfléchissent la lumière différemment en fonction de la polarisation.
- **Avantages :** Simplicité de mise en œuvre et rapidité.
- **Limites :** Ne prend pas en compte les variations de polarisation induites par les éléments optiques.

### **Méthode de la Matrice de Mueller :**

- Consiste à mesurer la matrice de Mueller des éléments optiques. Cette approche permet d'appréhender de manière exhaustive tous les changements de polarisation dus aux optiques.
- **Avantages :** Considère les changements de polarisation, offrant une analyse plus complète.
- **Limites :** Plus complexe et longue à mettre en œuvre, nécessite des mesures précises en raison de la sensibilité aux erreurs de mesure.

#### **a. Première méthode**

Une première méthode de calibration simple consiste à déterminer des coefficients de réflexion en fonction de la polarisation des différents éléments optiques, puis à inverser ces coefficients pour remonter aux polarisations générées par la particule.

Pour mesurer le coefficient de réflexion total, on a utilisé la formule :

$$R_p = R_p^1 R_p^2 \quad (61)$$

Le coefficient de réflexion total est donc

$$R_p = \frac{I_{\chi/\psi}}{I_{\chi}} \text{ avec } \chi = \psi \quad (62)$$

Les différentes mesures pour la calibration peuvent être groupées dans un tableau :

	<b>0°</b>	<b>90°</b>	<b>45°</b>	<b>-45°</b>
<b>0°</b>	$I_{0/0} = HH$	$I_{0/90} = HV$	$I_{0/45} = HP$	$I_{0/-45} = HT$
<b>90°</b>	$I_{90/0} = VH$	$I_{90/90} = VV$	$I_{90/45} = VP$	$I_{90/-45} = VT$
<b>45°</b>	$I_{45/0} = PH$	$I_{45/90} = PV$	$I_{45/45} = PP$	$I_{45/-45} = PT$
<b>-45°</b>	$I_{-45/0} = TH$	$I_{-45/90} = TV$	$I_{-45/45} = TP$	$I_{-45/-45} = TT$

Tableau 1: Tableau des différentes configurations du couple polariseur/analyseur. Les orientations de polarisation linéaire (LP) et de l'analyseur (RLP) sont abrégées en V:  $\psi=90^\circ$  ou verticale, H:  $\psi=0^\circ$  ou horizontale, P:  $\psi=45^\circ$  ou diagonale et T :  $\psi=-45^\circ$ .

Le principe d'avoir calculé ces taux de réflexion est de retrouver les intensités rétrodiffusées pour chaque orientation de polarisation avant réflexion sur les différents éléments. Pour cela, on peut partir du calcul de l'intensité finale après réflexion :

$$I_{\chi}^f = R_p \cdot I_{\chi}^i \quad (63)$$

Avec  $I_{\chi}^f$  l'intensité finale reçue par le capteur et  $I_{\chi}^i$  l'intensité initiale avant réflexion sur les éléments optiques. Ainsi

$$I_{\chi}^i = \frac{I_{\chi}^f}{R_p} \quad (64)$$

Pour chaque image associée à une orientation de polarisation  $I_{\chi}^f$ , on calcule l'image réelle correspondant aux intensités rétrodiffusées sans interactions avec les différents éléments optiques de l'instrument. Cette méthode de calibration est efficace, mais elle ne prend pas en compte les changements de polarisation et fait l'hypothèse que chaque intensité est atténuée par les éléments optiques en fonction de la polarisation, sans changement de polarisation lors de la réflexion. Une manière d'étudier les changements de polarisation est de déterminer la matrice de Mueller de l'instrument optique, plus précisément des éléments optiques se trouvant entre la particule et la caméra.

### **b. Deuxième méthode**

Comme, dans le Tableau 1, on a déterminé toutes les intensités de polarisation du tableau, on va donc pouvoir calculer une forme de matrice de Mueller linéaire (matrice 3×3 sans la partie polarisation circulaire) des éléments optiques de l'instrument. La polarisation du faisceau dans ce cas comme dans la première méthode est entièrement contrôlée. C'est-à-dire, en combinant différentes orientations de polarisation linéaire (LP) et de l'analyseur (RLP) abrégées en V:  $\psi=90^\circ$  ou verticale, H:  $\psi=0^\circ$  ou horizontale, et P:  $\psi=45^\circ$ , une série de mesures est effectuée pour déterminer la matrice de Mueller des éléments optiques combinés. Le vecteur de Stokes  $S_{opt}$  de la lumière transmise au capteur est déterminé en multipliant la matrice de Mueller des éléments optiques combinés,  $M_{opt}$ , par le vecteur de Stokes de la lumière incidente,  $S_{inc}$ , comme suit :

$$S_{opt} = M_{opt} \cdot S_{inc} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} I_{inc} \\ Q_{inc} \\ U_{inc} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{opt} \\ Q_{opt} \\ U_{opt} \end{pmatrix} \quad (65)$$

Pour obtenir les éléments de la matrice dans l'équation 65, neuf mesures d'intensité sont effectuées grâce aux combinaisons LP/RLP suivantes : HH, HV, VH, VV, VP, PV, HV, VH, PP. Chaque intensité est définie en termes de la matrice de Mueller partielle comme suit :

$$HH = \frac{1}{2}(1 \quad 1 \quad 0) \cdot \left[ \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \right] = \frac{1}{4}(m_{11} + m_{12} + m_{21} + m_{22}) \quad (66)a$$

$$HV = \frac{1}{2}(1 \quad -1 \quad 0) \cdot \left[ \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \right] = \frac{1}{4}(m_{11} + m_{12} - m_{21} - m_{22}) \quad (66)b$$

$$VH = \frac{1}{2}(1 \quad 1 \quad 0) \cdot \left[ \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \right] = \frac{1}{4}(m_{11} - m_{12} + m_{21} - m_{22}) \quad (66)c$$

$$VV = \frac{1}{2}(1 \quad -1 \quad 0) \cdot \left[ \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \right] = \frac{1}{4}(m_{11} - m_{12} - m_{21} + m_{22}) \quad (66)d$$

Avec ces mesures, il est possible de calculer les éléments de la matrice partielle  $M_{\text{opt}}$  comme suit

$m_{11} = HH + HV + VH + VV$	$m_{12} = HH + HV - VH - VV$	$m_{13} = 2PH + 2PV - m_{11}$
$m_{21} = HH - HV + VH - VV$	$m_{22} = HH - HV - VH + VV$	$m_{23} = 2PH - 2PV - m_{21}$
$m_{31} = 2HP + 2VP - m_{11}$	$m_{32} = 2HP - 2VP - m_{12}$	$m_{33} = 4PP - 2PH - 2PV - m_{31}$

Tableau 2 : Matrice de Mueller des éléments optiques de l'instrument. Cette matrice est déterminée en mesurant la puissance de sortie après passage par un polariseur et un analyseur d'orientation  $\psi$ , Verticale : V, horizontale : H, Diagonale : P.

La détermination de  $M_{opt}$  est ensuite répétée pour chaque longueur d'onde dans le spectre utilisé pour les mesures ultérieures, c'est-à-dire  $M_{opt} = M_{opt}(\lambda)$ .

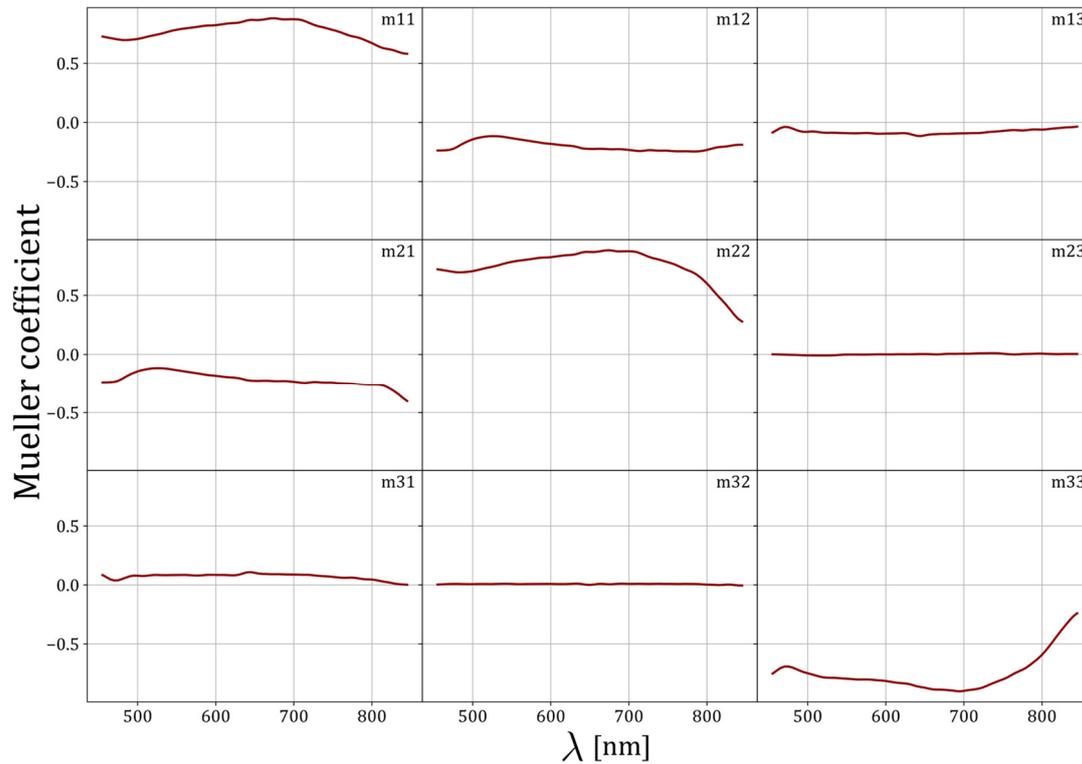


Figure 38 : Matrice Mueller  $M_{opt}(\lambda)$  linéaire sans les éléments de polarisation circulaires. La Matrice varie selon la longueur d'onde entre 450 et 850 nm.

Pour déterminer le vecteur de Stokes associé à la rétrodiffusion des échantillons de particules,  $S_{SPB}$ , par rapport à celui mesuré par le capteur de diffusion,  $S_m$ , et contenant donc les effets des optiques, la matrice de Mueller doit être inversée, c'est-à-dire :

$$S_{SPB} = M_{opt}^{-1} \cdot S_m. \quad (67)$$

### c. Inter-comparaison avec une caméra polarimétrique

Pour vérifier l'efficacité de cette étape de calibration, des mesures sont effectuées à l'aide d'une caméra polarimétrique (Thorcam, CS505MUP1) effectuées sur des surfaces de Spectralon lambertiennes (Labsphere, SRS-02) (réflectance de 2 % ici). La caméra détermine l'état de polarisation avec un réseau de polariseurs linéaires sur le capteur CMOS. Chaque pixel correspond à un polariseur linéaire qui mesure l'une des quatre directions de polarisation :  $\psi=0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$  et  $-45^\circ$ . Le faisceau éclaire l'échantillon de Spectralon perpendiculairement, et la caméra est positionnée pour capturer la lumière rétrodiffusée à un angle de diffusion polaire de  $\theta=175^\circ$ . Quatre images sont obtenues pour les quatre combinaisons de polarisation linéaire : HH, HV, VH et VV. Pour chaque image, les intensités sont moyennées en supposant que les rapports de polarisation croisée restent constants par rapport à la variation de l'angle de diffusion à travers les pixels du capteur. Dans cette disposition, les ratios de polarisation  $DOP_+$  et  $DOP_\times$  sont mesurés comme suit :

$$DOP_+ = \frac{I_{ref}}{Q_{ref}}, \quad DOP_x = \frac{I_{ref}}{U_{ref}} \quad (68)$$

$I_{ref}$ ,  $Q_{ref}$  et  $U_{ref}$  représentent les intensités du vecteur de Stokes mesurées avec la caméra de référence. La correction initiale à l'aide de la matrice de Mueller était efficace, mais elle surestimait légèrement la dépolarisation par rapport à la mesure de la caméra de polarisation. Il est important de noter que la correction initiale peut ne pas résoudre tous les problèmes, car certains paramètres tels que la lumière parasite et les effets de fenêtre ne peuvent pas être entièrement pris en compte par la méthode de la matrice de Mueller. Par conséquent, nous avons effectué des corrections supplémentaires établies sur des mesures utilisant des surfaces Spectralon, des surfaces de référence lambertiennes fabriquées par LabSphere. La prochaine étape consiste à considérer ces rapports, Eq. (23), comme les valeurs cibles à obtenir à l'aide de l'arrangement expérimental avec le capteur de diffusion. Pour ce faire, deux coefficients,  $a$  et  $b$ , sont calculés en fonction de la longueur d'onde.

$$a = \frac{I}{Q \cdot DOP_+}, \quad b = \frac{I}{U \cdot DOP_x} \quad (69)$$

$a$  et  $b$  sont ensuite ajoutés à  $S_{SPB}$  issu de l'équation 67, permettant le calcul de  $Q_{SPB}$  et  $U_{SPB}$  corrigés.

$$Q_{SPB,corr} = Q_{SPB} \cdot a, \quad U_{SPB,corr} = U_{SPB} \cdot b \quad (70)$$

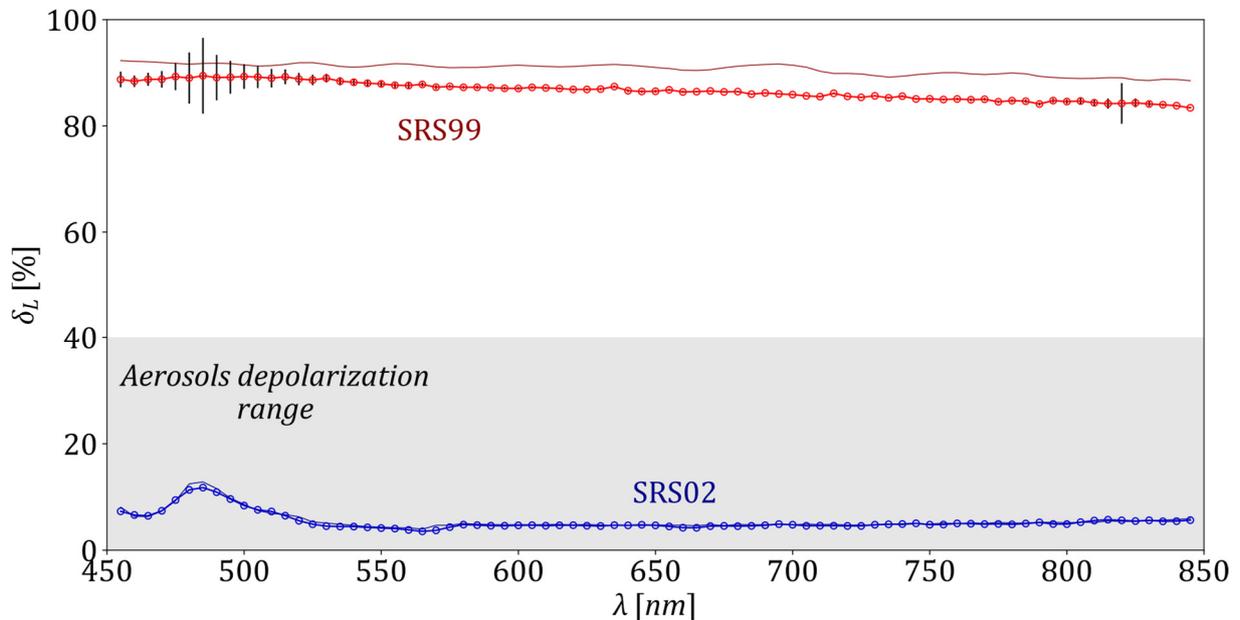


Figure 39 : Taux de dépolarisation en fonction de la longueur d'onde pour la cible Spectralon de référence mesurée avec la caméra de polarisation (ligne continue) et celle mesurée avec le capteur de diffusion (points de données avec barres d'erreur). La ligne rouge représente la cible Spectralon SRS-99 avec une réflectance de 99 %, tandis que la ligne bleue correspond à la cible avec une réflectance de 2 % (SRS-02). Les dépolarisations instrumentales à 535 nm sont de 91 % et 4,8 % respectivement pour SRS-99 et SRS-02.

Les courbes de référence, obtenues avec la caméra de polarisation, sont tracées dans la Figure 39 avec les courbes mesurées par le capteur de diffusion. Notamment, la courbe de référence et la courbe mesurée pour le Spectralon SRS-02 indiquent une forte similarité. Cependant, des mesures sont également effectuées sur un Spectralon avec une réflectance de 99 % (SRS-99). Les mesures avec la caméra polarimétrique et de l'instrument SOPHOS montre un écran d'environ 4 % sur toutes les longueurs d'onde. Cette différence sera prise en compte dans les calculs ultérieurs d'erreur sur les mesures issues de l'instrument SOPHOS. Dans l'ensemble, ce processus de calibration de polarisation donne des résultats très satisfaisants, compte tenu de l'ensemble des paramètres à prendre en compte (variabilité spectro-polarimétrique) et de l'absence d'étalon spectro-polarimétrique en diffusion. En effet, bien que plusieurs publications rapportent un fort pouvoir dépolarisant des Spectralon SRS 99 ou peu dépolarisant pour le SRS 02 [162,163], ces résultats restent encore à consolider par d'autres travaux dédiés à l'étude de la dépolarisation sur ces échantillons de référence.

On note une tendance d'augmentation de l'erreur avec le niveau de dépolarisation : approximativement 1 % à  $\delta = 20$  % et 2.5 % à  $\delta = 80$  %. Cette augmentation de l'erreur pourrait provenir d'une erreur sur la calibration polarimétrique si la lumière incidente sur le séparateur de faisceau devient très dépolarisée puisque la calibration repose principalement sur la puissance réfléchie du séparateur de faisceau, qui varie en fonction de la polarisation. L'erreur sur la dépolarisation est une erreur relative aux deux mesures de polarisation perpendiculaires, ainsi, si une polarisation est très prédominante, l'erreur relative sera plus faible que si l'onde diffusée est totalement dépolarisée. Par conséquent, si une onde est fortement polarisée dans une direction spécifique, l'erreur sur la mesure est faible contrairement à la mesure d'une onde non polarisée. Cette erreur augmentant avec la dépolarisation sera prise en compte comme une erreur linéaire croissante en fonction de la dépolarisation.

L'estimation de l'erreur pour la dépolarisation implique deux types d'erreurs. La première provient du rapport signal/bruit dans les images d'intensité. Pour remédier à cette erreur, nous mesurons le bruit de lecture aléatoire dans les images en effectuant des mesures sans particules et avec le laser éteint, c'est-à-dire une mesure noire. Nous le faisons comme :

$$\Delta_1 = \delta \sqrt{\left(\frac{\sigma_n}{S_0}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_n}{S_1}\right)^2}. \quad (71)$$

Ici,  $\Delta_1$  est l'erreur absolue due au bruit de lecture,  $\sigma_n$  représente l'écart type entre les pixels dans la mesure noire, et  $S_0$  et  $S_1$  correspondent aux signaux dans différents états de polarisation. La seconde erreur est l'écart moyen de la dépolarisation par rapport aux mesures de référence obtenues à partir des lectures de Spectralon. Pour ce faire, nous nous référons à la Figure 39 où une erreur d'environ 4 % à 80 % de dépolarisation est observée. L'erreur associée à cette déviation, qui dépend de  $\delta$ , est donnée par :

$$\Delta_k = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=0}^N (\delta_{k,i} - \overline{\delta_{k,ref}})^2}. \quad (72)$$

Dans l'équation 72,  $k$  représente la valeur de la réflectance de la cible Spectralon,  $\delta_{k,i}$  désigne la dépolarisation mesurée pour la  $i$ -ème  $\lambda$  ou  $(\theta, \phi)$ ,  $\overline{\delta_{k,ref}}$  correspond à la dépolarisation de référence mesurée avec la caméra de polarisation, et  $N$  représente le nombre de points de mesure pour soi  $\lambda$  ou  $(\theta, \phi)$ . Comme l'erreur dépend de la valeur de réflectance du Spectralon, et par conséquent, de la dépolarisation, nous établissons une relation linéaire entre les erreurs calculées à différents niveaux de dépolarisation comme suit :

$$\Delta_2(\delta) = \delta \left( \frac{\Delta_{99} - \Delta_{02}}{\delta_{99} - \delta_{02}} \right) + \left[ \Delta_{02} - \left( \frac{\Delta_{99} - \Delta_{02}}{\delta_{99} - \delta_{02}} \right) \delta_{02} \right]. \quad (73)$$

Enfin, l'erreur totale est déterminée en prenant la somme quadratique de  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$  dans les cas où ces erreurs sont indépendantes :

$$\Delta(\delta) = \sqrt{\Delta_1^2 + \Delta_2^2} \quad (74)$$

La méthode d'estimation de l'erreur permet une évaluation précise des incertitudes dans les mesures de dépolarisation, tenant compte de l'impact du bruit du capteur et de l'écart entre les mesures de référence utilisant les cibles Spectralon.

## IV. Voie holographie

La dernière méthode de mesure abordée dans ce chapitre concerne la voie holographique. Cette approche diffère significativement des deux précédentes, car elle ne vise pas à mesurer directement la diffusion de la lumière. Au lieu de cela, elle se concentre sur l'interférence de la lumière diffusée par les particules avec un faisceau de référence, typiquement une onde plane n'ayant pas interagi avec les particules, comme exposé dans le premier chapitre. L'objectif principal de cette méthode de mesure est de déterminer les caractéristiques morphologiques, diamètre et rapport d'axe, avec une précision micrométrique, des particules à travers la génération d'images holographiques. En somme, le couplage de la voie holographique avec la voie de diffusion spectro-polarimétrique vise à enrichir significativement le spectre des méthodes de mesure disponibles pour l'analyse des propriétés des particules. La perspective de ces travaux est toujours de proposer un lien entre les propriétés radiatives des aérosols et leurs caractéristiques morphologiques pour restreindre le problème mal posé de l'équation lidar.

### 1. Présentation de l'instrument

Un second laser (Leukos, HLX-G) avec une longueur d'onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$  est utilisé pour enregistrer des hologrammes numériques « in-line » des particules, suivant la technique décrite au Chapitre 1.2. Un extenseur de faisceau est utilisé en amont à l'aide de deux lentilles L1 et L2 à environ 1 cm de diamètre et est combiné avec le laser de rétrodiffusion par BS1, tous ces éléments optiques sont décrits sur la Figure 40 récapitulant l'instrument complet de mesure. Comme indiqué dans la Figure 40, le capteur d'holographie (FLIR, Blackfly S USB3), enregistre le motif d'intensité de l'interférence du faisceau et de la lumière diffusée par les particules autour de la direction de diffusion directe,  $\theta = 0^\circ$ . On peut voir sur cette figure des éléments optiques comme le polariseur ou le séparateur de faisceau qui sont les éléments de la voie de rétrodiffusion, car cette voie de mesure en holographie est située sur le même instrument de mesure que la rétrodiffusion. Tous les éléments optiques de la mesure de rétrodiffusion restent en place pendant les mesures d'holographie, à l'exception du capteur d'holographie, conçu pour qu'il puisse être déplacé à l'aide d'une platine de translation hors de l'axe optique afin d'éviter tout éblouissement provenant du capteur qui pourrait gêner les mesures de rétrodiffusion. La mesure en holographie permet donc de déterminer la morphologie pour les particules dont on a mesuré la rétrodiffusion avec cette même voie de mesure.

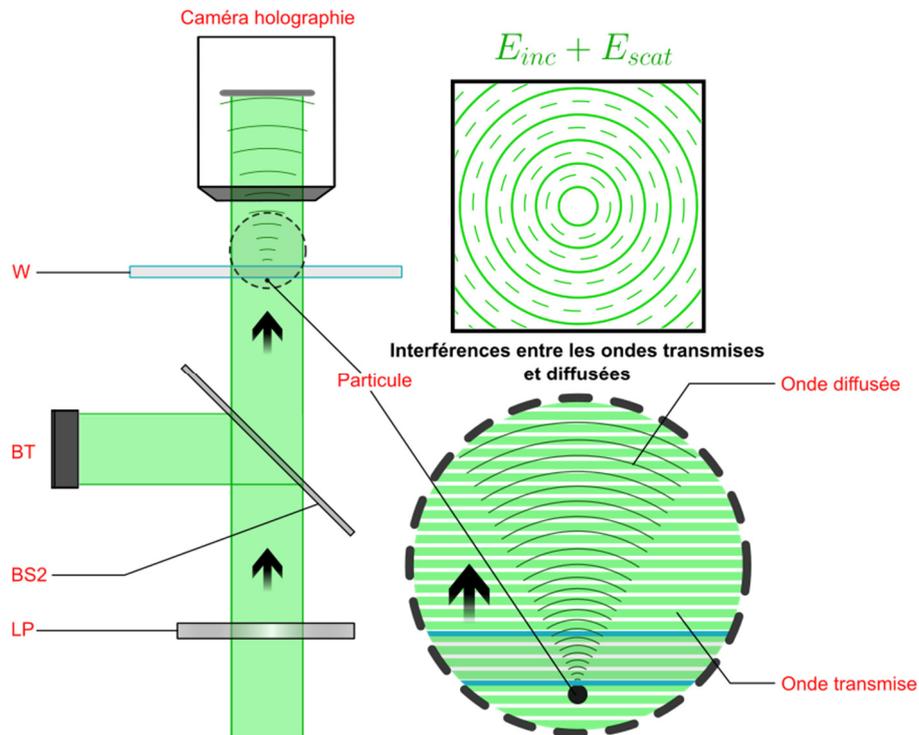


Figure 40 : Voie de mesure holographique, un laser monochromatique à 532 nm est utilisé, un système de lentilles est utilisé pour élargir le faisceau (non exposé sur le schéma). Le faisceau est sur le même chemin optique que la rétrodiffusion, donc les éléments optiques de la rétrodiffusion sont présents. Une caméra (BlackFly S USB3) mesure l'image d'interférence de la diffusion et du faisceau transmit.

## 2. Reconstruction à partir de données synthétiques

Une évaluation approfondie a été menée afin d'examiner la robustesse de l'algorithme de reconstruction et d'identification des particules dans le contexte de la reconstruction d'un hologramme. L'objectif principal est de déterminer si l'algorithme est capable de restituer fidèlement une image de particules sur le fondement de données présentant un niveau élevé de bruit. La méthodologie adoptée pour ce test implique l'utilisation de données simulées, sur lesquelles un niveau de bruit spécifique est intentionnellement imposé.

Dans la première phase de cette évaluation, une image de particules elliptiques, toutes caractérisées par un rapport d'axe uniforme de 2, a été générée, Figure 41(a). Ces particules, disposées aléatoirement tant en position qu'en orientation sur l'image, sont définies par des axes, majeurs et mineurs, mesurant respectivement 14 et 7 pixels, ce qui se traduit par un diamètre équivalent d'environ 19.8 pixels. Cette image a servi de base pour la génération d'un hologramme simulé en employant la transformation de Fresnel inverse, c'est-à-dire, en appliquant la transformation de Fresnel à l'image des particules avec une distance négative pour créer l'hologramme, Figure 41(b).

L'étape suivante consiste à introduire du bruit dans l'hologramme simulé, Figure 41(c). À cet effet, un bruit gaussien avec une moyenne de 0 et un écart-type de 64 a été utilisé, représentant ainsi une quantité de bruit significative, puisque cette valeur correspond à un quart de la gamme dynamique d'un pixel encodé sur 8 bits. Il est important de noter que les valeurs négatives dans l'hologramme de -255 à 255, résultant de la transformation de Fresnel, impliquent que le bruit généré doit avoir des valeurs négatives et positive, d'où la moyenne centrée sur 0. Après l'ajout du bruit, la phase de reconstruction à partir de l'hologramme bruité a permis d'obtenir une image à laquelle, malgré une réduction du contraste, les particules simulées demeurent clairement discernables, Figure 41(d). Cette étape démontre la capacité de l'algorithme à reconstituer un hologramme fortement perturbé par le bruit.

La performance de notre algorithme de reconstruction a ensuite été évaluée en se concentrant sur sa capacité à distinguer les particules de l'arrière-plan dans l'image reconstruite, Figure 41(e). Les résultats ont mis en évidence une excellente correspondance avec l'image originale, même dans un contexte de forte présence de bruit, prouvant ainsi la capacité de l'algorithme à identifier correctement les particules. Le rapport d'axe mesuré était de 2,073, très proche de la valeur originelle de 2,074, ce léger écart pouvant être attribué aux limites de mesure liées à la discrétisation en pixels.

En déterminant l'écart-type par rapport à la moyenne du rapport d'axe de l'image originale, évaluée à 2,074, on obtient un écart type de 0,022, ce qui représente une erreur relative d'environ 1 %. Cette observation souligne que les erreurs les plus significatives dans les mesures des particules proviennent principalement des limitations de l'instrument lui-même et de la résolution parfois insuffisante de la caméra pour l'observation de petites particules. Néanmoins, l'algorithme de reconstruction affiche une erreur marginale de 1 % même sur des images fortement bruitées, attestant de sa grande robustesse et de sa fiabilité comme méthode d'imagerie.

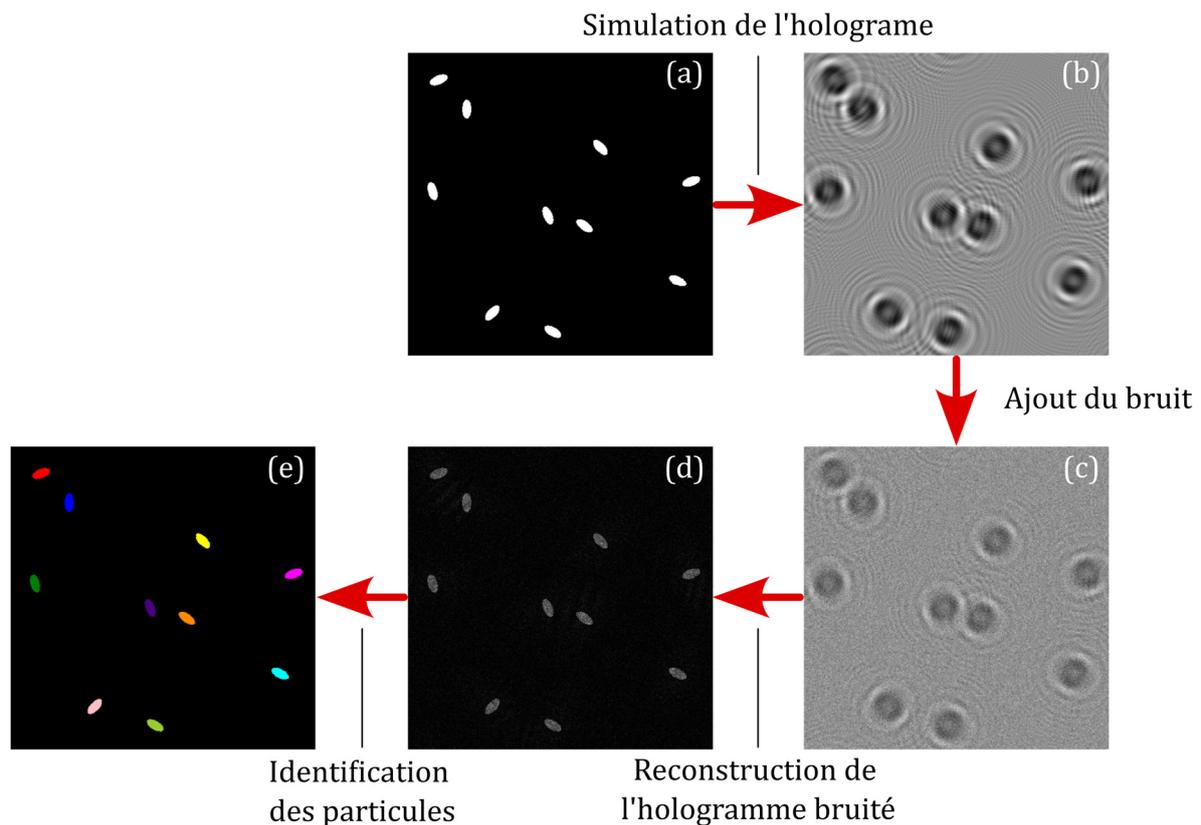


Figure 41 : Illustration de la procédure de simulation d'hologramme pour des particules elliptiques avec un rapport d'axe de 2. (a) présente l'image initiale des particules elliptiques ; (b) affiche l'hologramme généré à partir de l'image initiale ; (c) montre l'hologramme après introduction de bruit, dérivé de (b) ; (d) révèle la reconstruction obtenue grâce à l'hologramme bruité ; (e) illustre l'identification des particules dans l'image reconstruite, mettant en évidence la capacité de l'algorithme à distinguer individuellement chaque particule.

### 3. Reconstruction à partir des données expérimentales

Le diamètre équivalent et le rapport d'axe des particules sont évalués par imagerie à l'aide de l'holographie numérique. Cette méthode implique l'enregistrement de l'interférence entre la lumière diffusée par les particules,  $\theta = 0^\circ$ , et le faisceau de  $\lambda=532$  nm illuminant les particules. Le motif obtenu est mesuré par le capteur CMOS, constituant ainsi un hologramme  $I^{holo}$ . Comme décrit en détail dans plusieurs références [84,85,164], une reconstruction de l'image des particules peut être réalisée à partir de  $I^{holo}$  en appliquant une transformée de Fresnel décrite dans le chapitre 1. L'image résultante représente les particules individuelles en niveaux de gris avec une résolution microscopique, théoriquement deux fois la taille du pixel du capteur, soit  $4,8 \mu\text{m}$  dans le cadre de cette étude. Comme illustré dans la Figure 22, la mesure de l'hologramme est réalisée sur le même instrument optique que la mesure de rétrodiffusion et consécutive à cette dernière, sans déplacement de la fenêtre d'échantillon W. Ceci permet une comparaison directe entre les images des particules et les mesures de rétrodiffusion, semblable à l'approche adoptée dans [44] où la diffusion avant est prise en compte. Les images des particules ont une échelle 1:1 avec le capteur, car le faisceau laser dédié à la voie holographique de  $\lambda=532$  nm est collimaté et que la transformée de Fresnel est employée pour la reconstruction. Cela signifie que chaque pixel dans l'image reconstruite à la même dimension que le pixel du capteur. Cependant, une certaine distorsion peut survenir du fait que les particules se trouvent du côté éclairé de la fenêtre. En

d'autres termes, la lumière directement diffusée, participant à la formation de l'hologramme, traverse la fenêtre  $W$  avant d'atteindre le capteur et subit une réfraction ainsi qu'une légère déviation ; des effets absents dans l'approche conventionnelle [44] où les particules résident du côté opposé de la fenêtre. Par conséquent, il est impératif (comme décrit ci-dessous) de calibrer le système d'imagerie à l'aide de particules de taille connue, mais aussi d'une cible de résolution afin d'établir une correspondance appropriée entre les dimensions physiques des pixels de l'image.

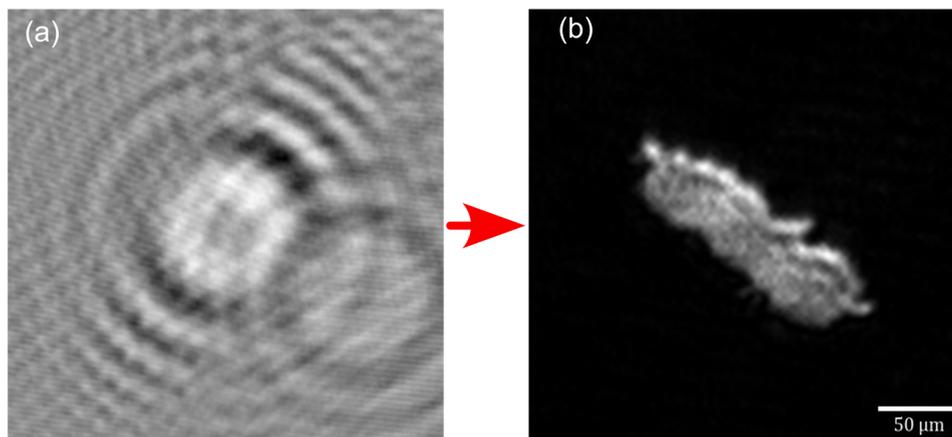


Figure 42 : Hologramme d'une particule (a) et sa reconstruction (b). L'étape de reconstruction est faite via la méthode de transformée de Fresnel.

### 3.1. Calibration de l'holographie

La calibration en holographie consiste à déterminer la taille réelle d'un pixel pour avoir une mesure précise de la morphologie des particules. Pour calibrer l'image reconstruite en holographie, nous utilisons une cible de résolution de type MIL-S-150A Figure 43(c). Cette cible se compose de multiples éléments identiques, mais de tailles décroissantes. Chaque élément est constitué de triplets de lignes verticales et horizontales, avec une identification unique représentée par deux chiffres. Chaque combinaison de chiffres correspond à une valeur de résolution définie en lp/mm (paires de lignes par millimètre).

**Calibration :** L'objectif initial est de créer une image holographique de la cible Figure 43(a) puis de reconstruire l'image de la cible avec les méthodes décrites dans la première partie. Avec l'image reconstruite, la première étape consiste à déterminer la taille d'un pixel sur l'image. Pour cela, l'élément 2,2, représentant le plus grand élément sur la cible, est choisi. En mesurant en nombre de pixels une séquence de 2 lignes noires et blanches, équivalant à deux paires de lignes, on obtient une mesure de 0,5 mm pour l'élément 2,2, qui correspond à une résolution de 4 lp/mm. On mesure 178 pixels sur cette zone de 0,5mm, la taille d'un pixel sur l'image est donc de  $2,8 \mu\text{m}$  ce qui est proche des  $2,7 \mu\text{m}$  de la caméra.

**Évaluation des performances :** Pour évaluer la résolution maximale, on examine l'élément le plus petit pouvant être discerné, ici l'élément 7,1 avec une résolution de 128 lp/mm. Dans un instrument idéalement collimaté et sans distorsion, la résolution serait équivalente à la taille d'un pixel, soit  $2,7 \mu\text{m}$ . Calculons la résolution maximale en lp/mm correspondant à l'élément 7,4. On constate une valeur très proche de la résolution maximale possible, permettant ainsi l'observation

de particules au-delà de  $7,8 \mu\text{m}$ . Par conséquent, l'erreur sur la mesure holographique est calculée en divisant la résolution en lp/mm par 2, soit  $3,9 \mu\text{m}$ .

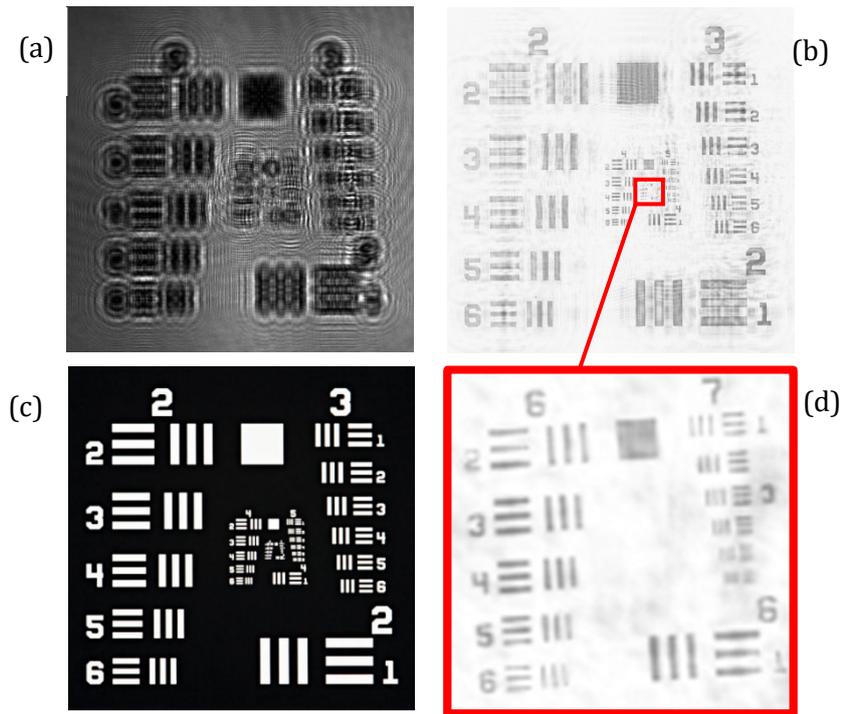


Figure 43 : Cible de résolution imagée par l'instrument de mesure en holographie. (a) représente l'hologramme de la cible directement mesuré par la caméra et (b) représente la reconstruction de cet hologramme avec en rouge un zoom sur les éléments les plus petits (d), l'image de référence de la cible est représenté en (c).

## 4. Algorithme d'identification des caractéristiques morphologiques des particules

L'interprétation des images holographiques pour déterminer les caractéristiques morphologiques des particules est une étape décisive dans l'étude de leurs propriétés radiatives. La méthode décrite ici repose sur deux étapes principales :

- I. La détection des contours des particules dans les images.
- II. La segmentation de ces particules à partir de l'arrière-plan.

Présentation de l'algorithme :

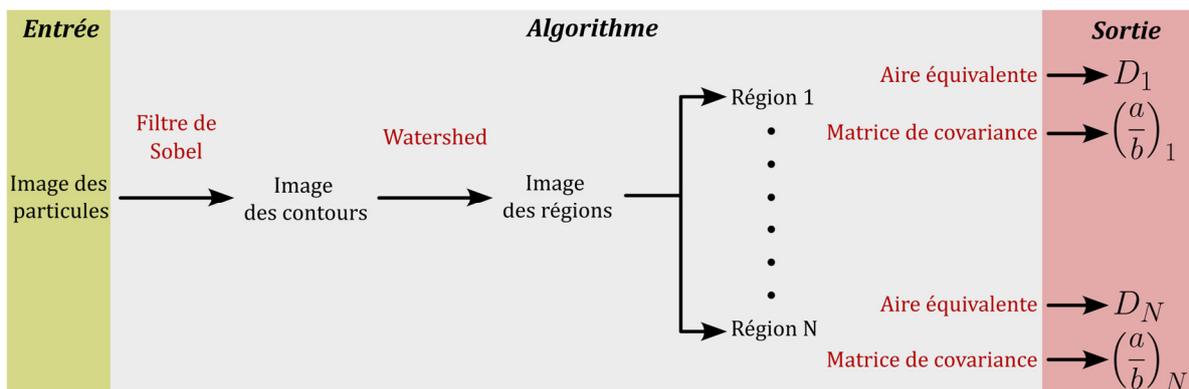


Figure 44 : Algorithme d'identification des particules et de détermination des paramètres morphologiques (diamètre  $D$  et rapport d'axe  $a/b$ ). L'entrée de l'algorithme est l'image reconstruite des particules. Les transformations appliquées à l'image, menant à la détermination des paramètres morphologiques, sont indiquées en rouge.

Le processus commence par l'utilisation d'un filtre de Sobel pour identifier les contours des particules. Ce filtre est conçu pour accentuer les régions où il y a un changement significatif d'intensité, ce qui correspond généralement aux bords des particules par rapport à l'arrière-plan [165]. On peut interpréter l'image issue du filtre de Sobel comme une carte des élévations, où les valeurs élevées correspondent aux contours détectés.

Cette carte est ensuite utilisée comme base pour l'application de l'algorithme de "watershed" [166]. Celui-ci applique une méthode de segmentation d'images qui simule le remplissage d'un relief par l'eau, les contours agissant comme des barrières qui définissent les différentes régions. En commençant par les points les plus bas, l'algorithme « remplit » les zones jusqu'à atteindre les contours, segmentant ainsi l'image en régions distinctes correspondant à chaque particule. De même, chacune de ces zones va ensuite correspondre à une région qui n'est autre qu'une particule déterminée par l'algorithme. Ce type d'algorithme est très souvent utilisé pour des méthodes de détermination de régions, en particulier dans l'imagerie au microscope optique de particules ou de cellules [167,168]. Une fois chaque pixel attribué à une région, on va pouvoir déterminer un diamètre équivalent de particule simplement en estimant que l'aire de chaque région est égale à l'aire d'un disque équivalent.

$$A = \pi \frac{D^2}{4} \quad (75)$$

$$D = 2a \sqrt{\frac{N}{\pi}} \quad (76)$$

Avec  $N$  le nombre de pixels de la région et  $a$  la taille d'un pixel réel. Le dernier paramètre à déterminer est le ratio d'axe qui va déterminer à quel point notre particule observée est sphérique ou non. Pour cela, il faut estimer la particule étudiée à une ellipse, cela est fait cherchant la matrice de covariance de notre région.

$$C = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N \begin{pmatrix} (x_i - \bar{x})^2 & (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y}) \\ (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y}) & (y_i - \bar{y})^2 \end{pmatrix} \quad (77)$$

Avec  $x$  et  $y$  les coordonnées horizontales et verticales des pixels de la région et  $N$  le nombre de pixels de cette région. La longueur du grand et du petit axe de l'ellipse équivalente sont directement les valeurs propres de cette matrice de covariance. En effet, cette matrice représente une distribution normale dans un espace 2D, ce qui correspond directement à une ellipse. La matrice de covariance nous fournit des informations sur la répartition spatiale des pixels dans la région, permettant ainsi d'ajuster une ellipse à cette distribution. Pour obtenir le ratio d'axe, nous utilisons les éléments propres de la matrice de covariance, qui sont les valeurs propres associées aux vecteurs propres correspondants.  $\sqrt{\Lambda_1}$  et  $\sqrt{\Lambda_2}$  les racines carrées des valeurs propres de la matrice de covariance, correspondent directement aux petit et grand axe d'une ellipse équivalente concordant avec la forme de la particule. Le rapport d'axe  $a/b$  est donc le ratio de ces deux valeurs.

$$\frac{a}{b} = \frac{\sqrt{\Lambda_1}}{\sqrt{\Lambda_2}} \quad (78)$$

Une valeur de  $\varepsilon$  proche de 1 indique une forme plus sphérique, tandis qu'une valeur significativement différente de 1 suggère une forme plus allongée ou aplatie.

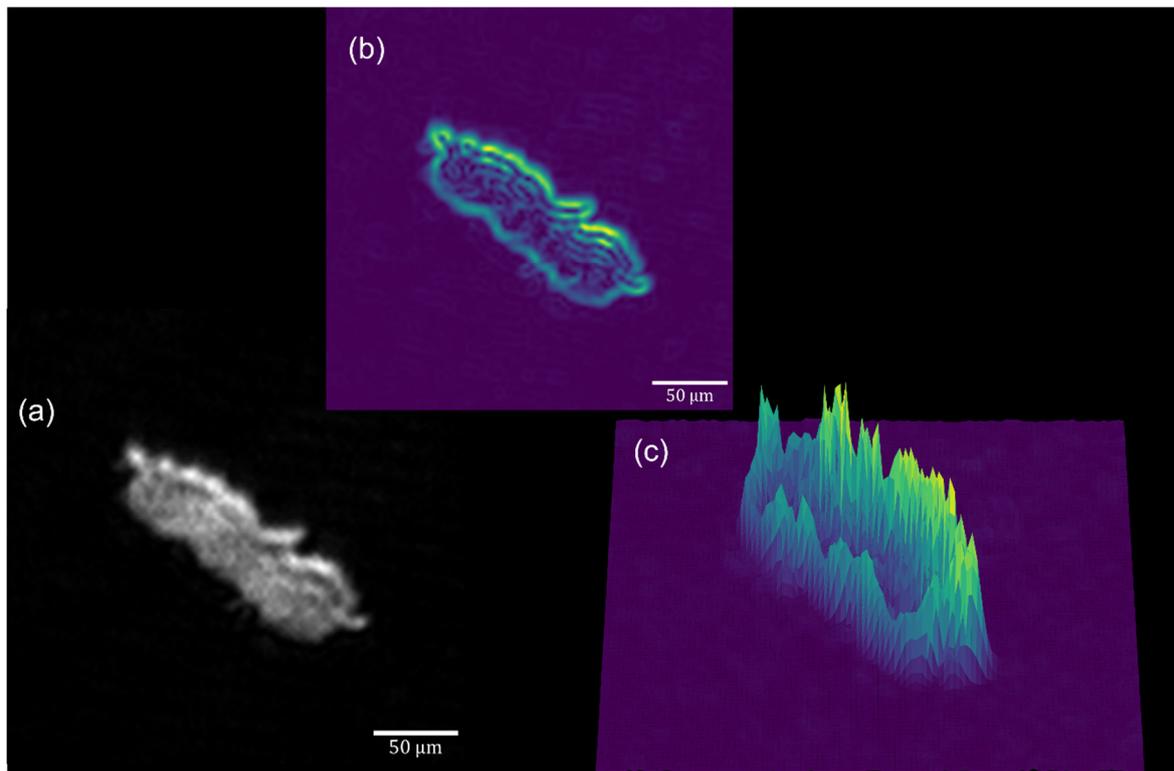


Figure 45 : Image d'une particule suite à la reconstruction d'un hologramme (a), l'image (b) correspond à la carte d'élévation suite à l'application du filtre de Sobel pour retrouver les contours de la particule et donc ensuite la région de pixel correspondant à cette particule automatiquement, (c) est la vue en 3D de (b) pour visualiser la forme remplie par l'algorithme watershed.

## V. Validation instrumentale

Dans les sections précédentes, nous avons présenté l'instrument SOPHOS ainsi que sa calibration spectro-polarimétrique et en holographie. Ici, il est proposé de valiser son fonctionnement global à l'aide de particules (quasi)-sphériques. Ces particules se prêtent particulièrement bien à la modélisation par la théorie de diffusion de Mie, raison pour laquelle elles ont été sélectionnées comme sujet d'étude initial. Nous souhaitons vérifier la concordance entre les observations expérimentales et les prédictions théoriques concernant la diffusion lumineuse et l'holographie. À cette fin, nous avons utilisé plusieurs types de particules sphériques et de différents diamètres, notamment des particules de polyéthylène de 50  $\mu\text{m}$  pour les mesures de diffusion avant, des particules en verre de 32  $\mu\text{m}$  ainsi que des particules en borosilicate de 10 micromètres pour les mesures de rétrodiffusion. L'application de l'holographie permet une identification précise de la morphologie des particules, offrant ainsi une méthode directe pour confirmer leur sphéricité, déterminer leur taille, mais surtout de relier *in fine* les mesures de diffusion à un diffuseur.

### 1. Holographie

Les particules sphériques soumises à l'étude ont préalablement fait l'objet d'une analyse holographique. L'échantillon analysé était constitué d'un dépôt de particules de verre sodocalcique, également désigné sous l'appellation "soda lime glass", d'un diamètre de 32 micromètres, comme le démontre la Figure 46(a). Ce matériau est fréquemment employé dans la

production de bouteilles en verre. L'aspect pertinent de cette étude réside dans l'analyse de la taille des particules, de  $32 \pm 0,5 \mu\text{m}$ , suivant une distribution normale centrée sur cette valeur moyenne. L'objectif consistait à vérifier, à travers l'holographie combinée à un algorithme de reconstruction et d'analyse de particules, si la taille moyenne observée des particules se conformait bien à la moyenne théorique de  $32 \mu\text{m}$ .

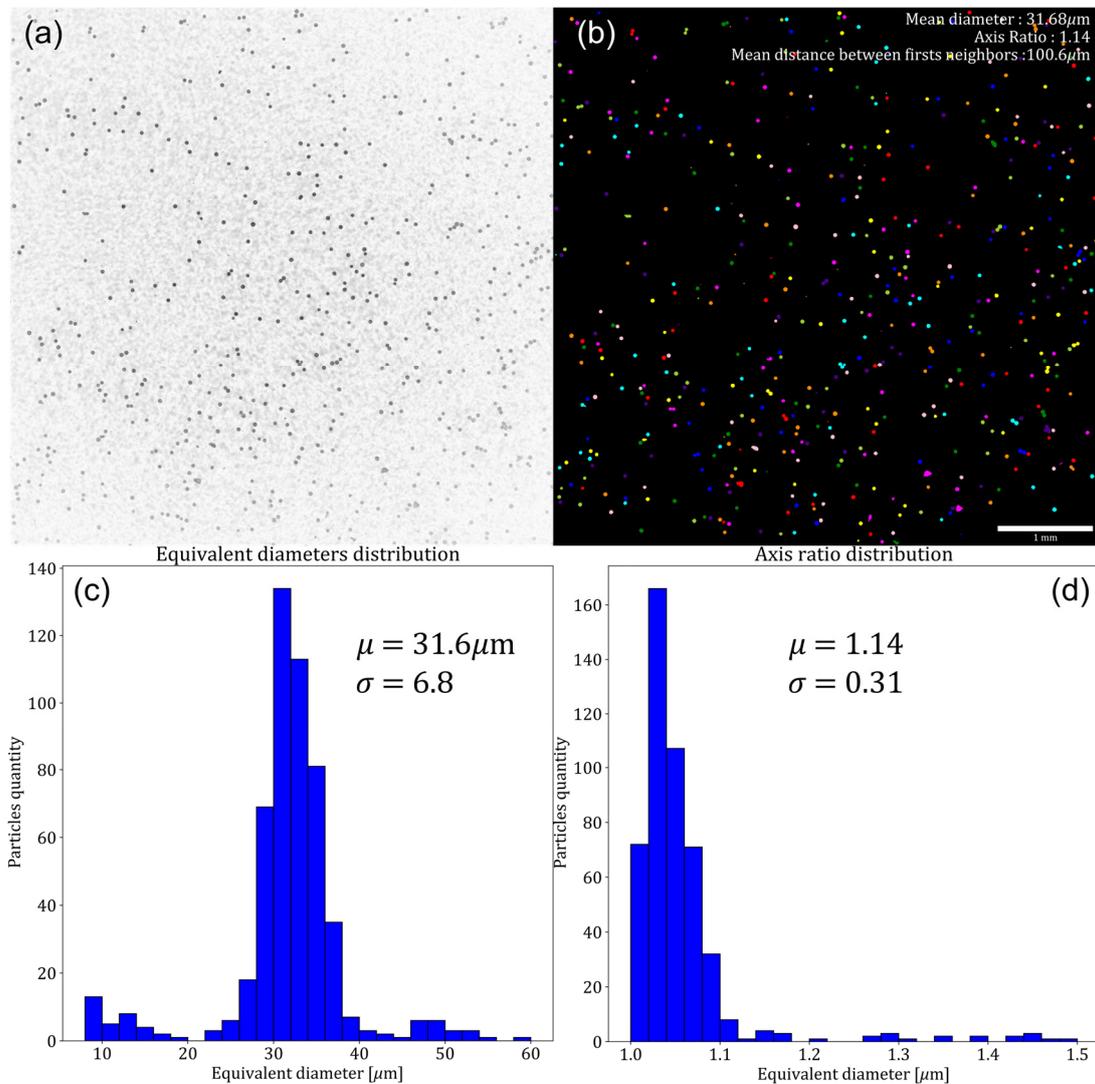


Figure 46 : Image des particules sphériques étudiées sur les différentes voies de mesures, l'image (a) représente la reconstruction directe de l'hologramme et l'image (b) est la détermination automatique des différentes régions appartenant à chaque particule représentée en couleur. Distribution en taille (c) et en rapport d'axe (d) des particules sphériques de  $32 \mu\text{m}$  en « soda lime glass ».

La Figure 46(a) illustre la reconstruction holographique des particules sphériques. Par ailleurs, la Figure 46(b), colorisée, expose la segmentation automatique de chaque particule de l'échantillon, effectuée via l'algorithme de détection exposé dans précédemment. Cette visualisation révèle clairement la forme sphérique des particules et l'efficacité de l'algorithme à individualiser chaque particule. Toutefois, elle met également en évidence la présence de particules agglomérées, interprétées par l'algorithme comme une entité unique. Bien que certains

algorithmes aient été testés pour dissocier ces agglomérats dans le cas des particules sphériques, ils s'avèrent inefficaces pour les aérosols non sphériques, qui ne sont pas correctement séparés ou sont faussement catégorisés comme agglomérats. Une stratégie pour pallier cette limitation consiste à limiter la densité de particules sur la lame, afin de réduire la formation d'agglomérats.

Cette méthode a facilité l'évaluation de la distribution de taille des particules, illustrée dans la Figure 46(c), qui confirme une distribution normale centrée autour de  $32\ \mu\text{m}$ , en adéquation avec les caractéristiques annoncées. L'analyse des rapports d'aspect révèle une prédominance de particules sphériques, avec une distribution majoritaire proche de 1 et une moyenne à 1.14, indiquant la présence de particules légèrement asphériques ou d'agglomérats sur la lame. Cette constatation souligne la nécessité de considérer l'impact de ces légères variations du rapport d'axe dans l'analyse de la diffusion des particules.

## 2. Validation en diffusion avant

Dans cette partie, nous examinons les mesures de diffusion de la lumière effectuées sur des particules sphériques à l'aide de la technique Small Angle Light Scattering (SALS) en deux dimensions (2D-SALS), à travers une gamme de longueurs d'onde dans le spectre visible. Ces mesures sont importantes pour comprendre les propriétés radiatives des particules, car les particules sphériques s'intègrent parfaitement dans le cadre de la théorie de diffusion de Mie, ce qui les rend idéales pour valider les modèles théoriques de diffusion. Pour cette étude, nous avons sélectionné des microsphères de polyéthylène colorées, issues d'un échantillon polydispersé avec des diamètres variants entre  $53$  et  $63\ \mu\text{m}$ . Figure 47(a)–(c) illustrent les motifs 2D-SALS observés à différentes longueurs d'onde, révélant une structure d'anneaux caractéristique et une variation angulaire en fonction de la longueur d'onde.

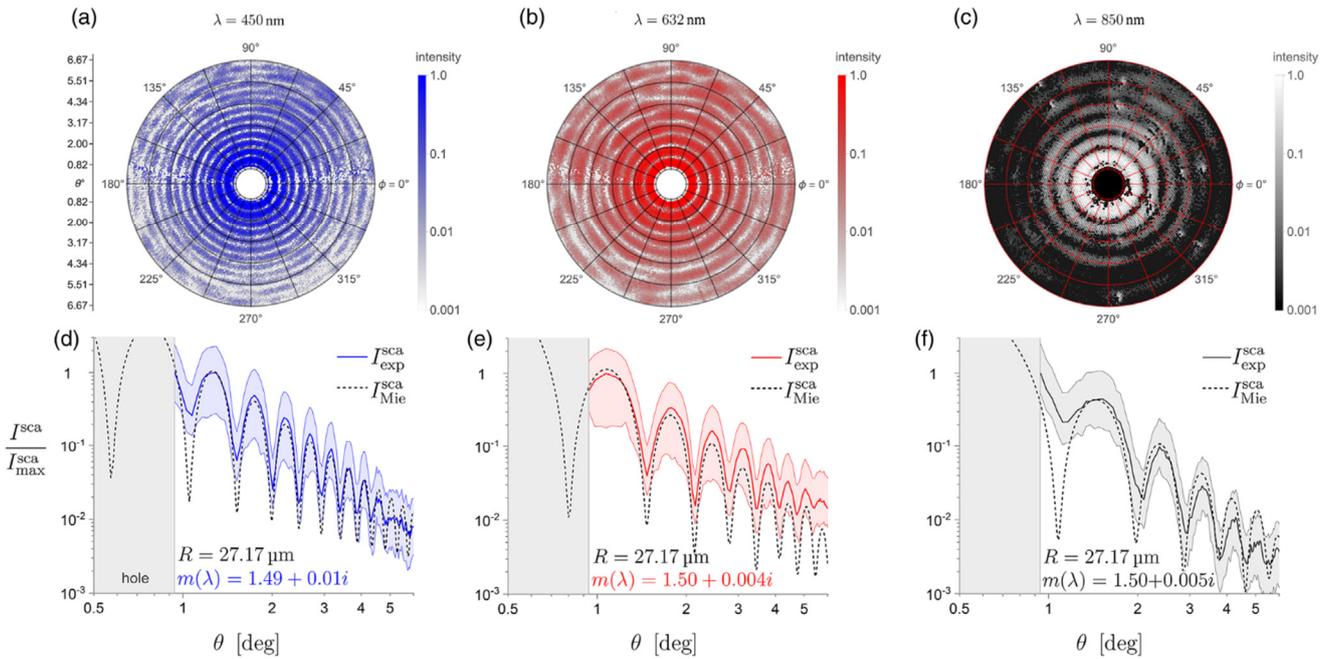


Figure 47 : Mesures des motifs 2D-SALS d'une microsphère de polyéthylène à différentes longueurs d'onde. (a)–(c) Motifs 2D-SALS pour  $\lambda=450$  nm, 632 nm et 850 nm, respectivement. Ces motifs sont tracés en échelle logarithmique comme indiqué. (d)–(f) Moyenne azimutale (ligne continue) des motifs dans (a)–(c) présentée en échelle log-log en fonction de  $\theta$ , semblable à la Fig. 1(c). Sont également affichés dans (d)–(f) les ajustements de la théorie de Mie pour une sphère de rayon  $R=27,17 \mu\text{m}$  et le  $m(\lambda)$  dépendant de la longueur d'onde indiquée.

La Figure 47(d)–(f), présentent la moyenne azimutale de ces motifs, comparée aux prédictions de la théorie de Mie,  $I_{Mie}^{sca}$  pour une sphère de rayon spécifié et un indice de réfraction  $m(\lambda)$  variant avec la longueur d'onde. Cette analyse implique l'ajustement des paramètres  $R$  (rayon de la sphère) et  $m(\lambda)$  (indice de réfraction) pour concorder avec les courbes expérimentales de diffusion, résultant en une estimation de  $R=27,17 \mu\text{m}$  pour les valeurs spécifiques de  $m$ . Nous notons que cette procédure d'ajustement est simpliste, et une variété de valeurs de  $m$  peuvent être utilisées pour une  $\lambda$  donnée tout en fournissant toujours un certain accord avec la courbe mesurée. Les positions angulaires des pics dans  $I_{Mie}^{sca}$  sont significativement plus sensibles à  $R$  qu'à  $m$  dans cette région à petit angle.

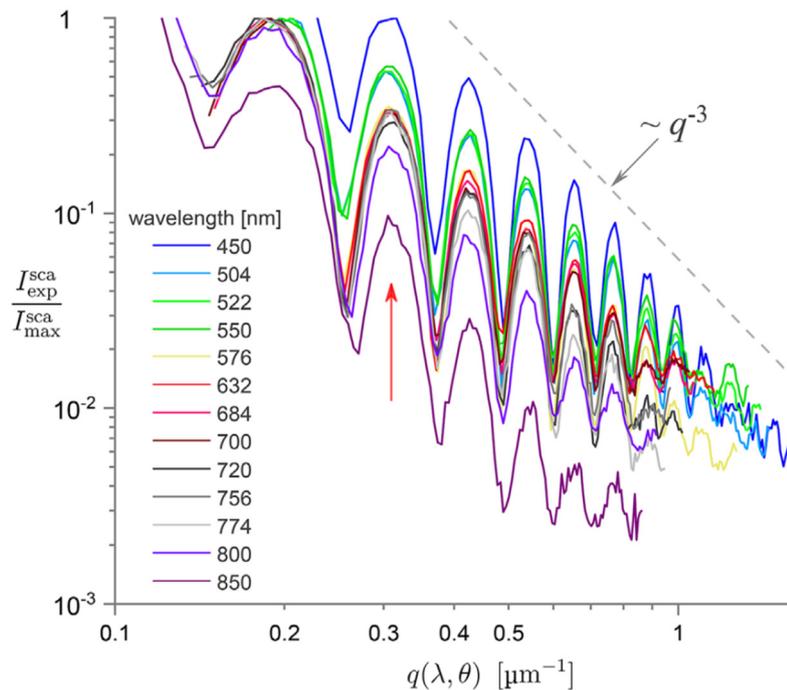


Figure 48 : Courbes de diffusion de lumière multispectrale  $I_{Exp}^{sca}$  pour la microsphère de polyéthylène teintée en rouge de  $R = 27,17 \mu\text{m}$  présentée dans la Fig. 2. Chaque courbe représente la moyenne azimutale du motif 2D-SALS mesuré pour la longueur d'onde indiquée. Toutes les courbes sont normalisées par rapport à l'intensité maximale mesurée,  $I_{max}^{sca}$ , pour le  $\lambda$  donné. Les données sont représentées sur une échelle logarithmique en termes de  $q$  plutôt que de  $\theta$ , ce qui aligne approximativement les premiers maxima des courbes comme indiqué par la flèche rouge.

La Figure 48 regroupe les courbes de diffusion lumineuse multispectrale  $I_{Exp}^{sca}$  pour la microsphère étudiée pour toutes les 13 longueurs d'onde considérées, allant de  $\lambda=450-850 \mu\text{m}$ . Ici, les courbes sont tracées à l'échelle logarithmique en du vecteur de diffusion  $q$ , où  $q(\lambda, \theta) = (4\pi/\lambda)\sin(\theta/2)$ . Tracer les courbes en fonction de  $q$  plutôt que  $\theta$  aligne les premiers maxima des courbes à travers toutes les longueurs d'onde comme indiqué par la flèche rouge. De plus, une tendance de loi de puissance de  $I_{sca} \sim q^{-3}$  apparaît, ce qui est une caractéristique générale de la diffusion par des sphères [169]. La capacité unificatrice de l'analyse en termes de  $q$  peut avoir un intérêt dans des études futures pour extraire des informations. À noter que chaque courbe dans la Figure 3 commence à une valeur  $q$  différente entre  $q \sim 0.12$  et  $0.23$ . La raison est que malgré l'ouverture circulaire de l'OPM3 constante en taille angulaire,  $\theta_{hole} \sim 0.90^\circ$ , il n'est pas constant dans l'espace de diffusion  $q$ , c'est-à-dire,  $q(\lambda, \theta_{hole})$  est différent pour chaque  $\lambda$  en raison de la dépendance en  $\lambda$  de  $q$ . Cela démontre la compétence de notre dispositif à sonder différents régimes de diffusion en fonction de  $q$  pour une particule donnée. Une attention particulière a été portée à l'analyse multispectrale de la diffusion lumineuse par des particules sur le spectre visible. L'objectif était de valider le fonctionnement de l'instrument en diffusion avant pour plusieurs longueurs d'onde.

### 3. Validation en rétrodiffusion

#### 3.1. Spectrale

L'instrument de mesure détaillée dans le Chapitre 2 est utilisé pour examiner des particules de verre de type sodo-calcique. Ces particules ont également servi à la calibration de l'instrument, comme décrit précédemment. Pour l'analyse en rétrodiffusion, l'accent est mis sur l'utilisation des images de rétrodiffusion générées par l'instrument. Comme les particules sphériques présentent une symétrie azimutale — c'est-à-dire qu'elles sont symétriques autour de l'axe azimutal — il est possible de simplifier l'analyse en moyennant les valeurs de diffusion sur cet axe.

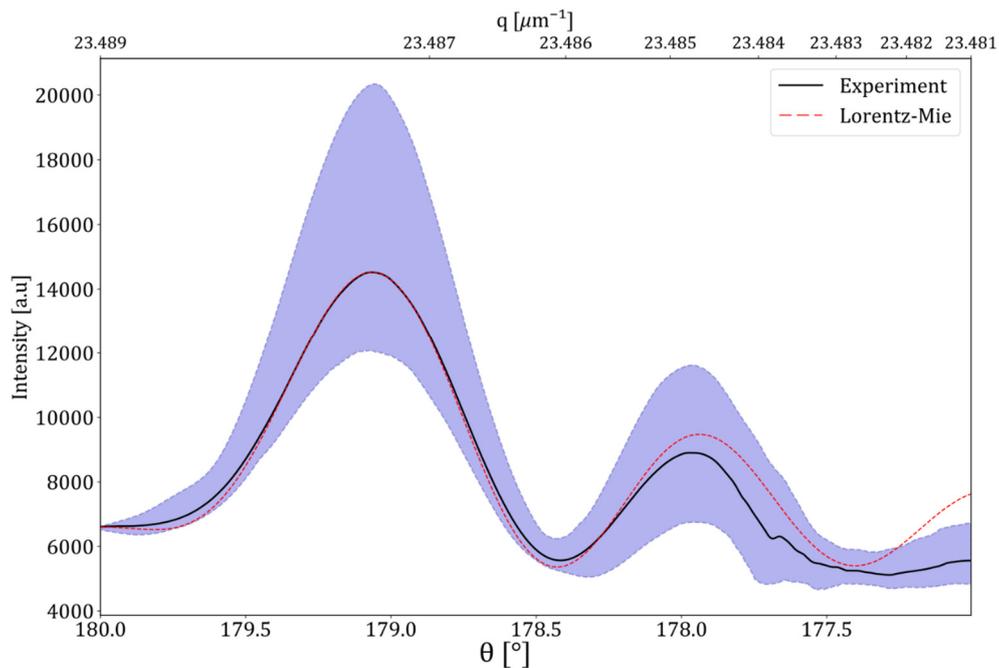


Figure 49 : Fonction de phase en rétrodiffusion à 535 nm d'une particule sphérique en soda-lime glass. La ligne noire pleine correspond à la diffusion mesurée expérimentalement par l'instrument présenté auparavant (en violet l'espace entre les valeurs minimums et maximums mesurés) et la ligne rouge en pointillés correspond à la diffusion modélisée avec la théorie de Lorentz-Mie par une particule de verre de 32  $\mu\text{m}$  avec un indice de réfraction de  $(1.52+1e-7i)$ .

La Figure 49 illustre le profil de diffusion moyenné des particules de verre soda-lime en rétrodiffusion. Cette visualisation aide à comprendre comment la lumière interagit avec ces particules sphériques, reflétant des propriétés telles que la taille, la forme et l'indice de réfraction du matériau. En moyennant autour de l'axe azimutal, on obtient une représentation plus claire et plus facile à interpréter des phénomènes de rétrodiffusion, en éliminant les artefacts ou variations mineures qui pourraient autrement compliquer l'analyse. Il est possible d'identifier clairement au moins deux lobes de diffusion, situés à  $179^\circ$  et  $178^\circ$ , respectivement. Cette configuration démontre que le champ de vue de notre instrument est suffisamment étendu pour mesurer avec précision le comportement ondulatoire caractéristique de la diffusion de Lorentz-Mie sur des particules de cette taille. La courbe noire, représentée sur cette figure, illustre l'intensité de la lumière rétrodiffusée mesurée, tracée en fonction de l'angle  $\theta$  uniquement, grâce à une moyenne effectuée sur les valeurs azimutales  $\varphi$  correspondant au même angle  $\theta$ . Cette démarche consiste à moyennner les valeurs d'intensité captées par le capteur de diffusion pour chaque  $\theta$ , mais à

différents  $\varphi$ , afin d'obtenir une valeur représentative unique pour chaque angle. Il est important de noter que cette moyenne tient compte d'une correction selon la loi de puissance, comme spécifié auparavant dans la calibration angulaire. La courbe en pointillés rouges, quant à elle, représente la diffusion théorique selon la théorie de Lorentz-Mie pour une particule de 32 micromètres et un indice de réfraction de  $1.52+1e-7i$ . L'adéquation remarquable entre la modélisation théorique et les mesures expérimentales confirme la précision de notre instrument, notamment parce que ces particules de 32 micromètres ont été utilisées pour la calibration angulaire de l'appareil. Bien que les rapports d'intensité n'aient pas été spécifiquement calibrés pour ces particules, l'excellente corrélation avec la théorie de Lorentz-Mie en termes d'intensité souligne l'efficacité de notre approche. La Figure 49 se concentre sur les mesures effectuées à une longueur d'onde de 535 nm, mais notre objectif est également d'examiner les variations des propriétés de diffusion en fonction des longueurs d'onde.

La Figure 50(a) regroupe les données mesurées précédemment, tandis que la Figure 50(b) expose les résultats des simulations fondées sur la théorie de Mie pour une particule sphérique en verre de 32  $\mu\text{m}$  de diamètre. Un diagramme 2D représente l'intensité rétrodiffusée en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  et de la longueur d'onde. Les observations réalisées à partir des données de diffusion obtenues par l'instrument illustrent un profil typique conforme à la théorie de la diffusion de Mie, caractérisé par la présence de deux lobes distincts. Un aspect notable de ces données est l'élargissement progressif et l'espacement accru des lobes de diffusion avec l'augmentation de la longueur d'onde. Cette tendance est clairement visible sur nos mesures, où deux lignes diagonales émergentes représentent l'expansion spatiale des lobes de diffusion en fonction de la longueur d'onde.

Une particularité concerne la rétrodiffusion à  $180^\circ$ , où une intensité lumineuse légèrement supérieure à celle prévue par le modèle de Mie est enregistrée. Bien que cette divergence soit mineure, elle suggère une possible déviation par rapport aux prédictions théoriques, potentiellement attribuable à une légère asphéricité des particules ou à un nombre insuffisant de pixels moyennés dans cette zone spécifique de mesure. Néanmoins, la cohérence globale observée entre les mesures expérimentales et les simulations fondées sur la théorie est interprétée comme une confirmation de l'exactitude de la correction angulaire mise en œuvre ainsi que de la pertinence de la méthodologie expérimentale adoptée.

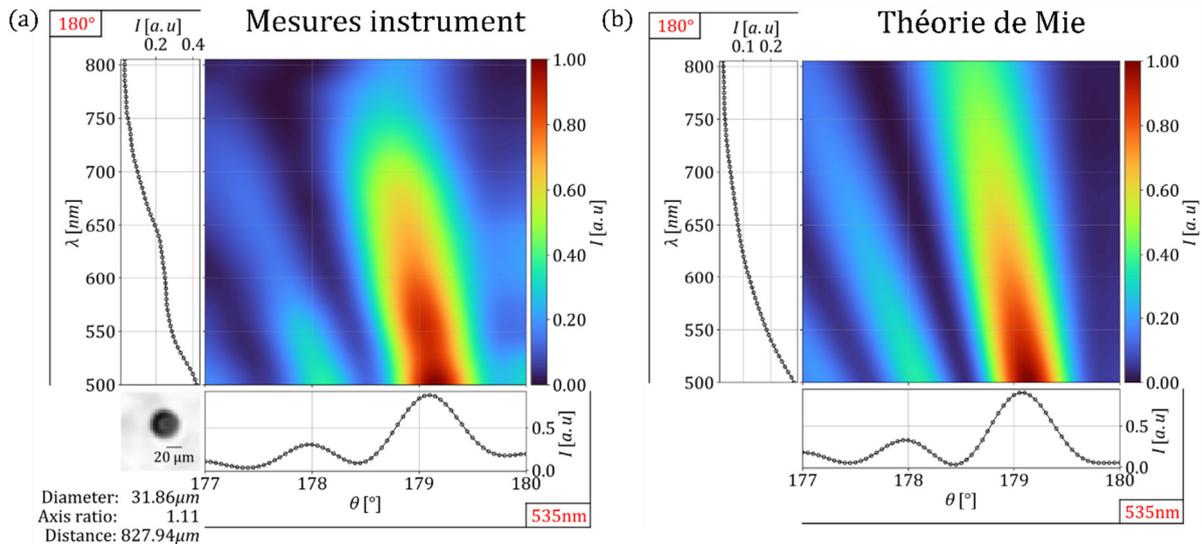


Figure 50: Intensité totale rétrodiffusée  $I$  en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour une particule sphérique de verre d'un diamètre de  $32 \mu\text{m}$ . Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $I(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=179,5^\circ$  soit à  $\lambda=535 \text{ nm}$ . Le graphique en (a) montre les mesures tandis que (b) affiche les résultats de la simulation utilisant la théorie de Mie. Une image de la particule produisant ces données de diffusion est obtenue par DIH et présentée en incrustation dans (a).

### 3.2. Polarimétrie

Nous allons maintenant nous intéresser à la validation en polarimétrie de la rétrodiffusion par des particules sphériques. Dans cette analyse, quatre configurations de polarisation sont examinées, en partant du principe que le faisceau incident est polarisé verticalement, c'est-à-dire à  $90^\circ$ . Ce choix de polarisation initiale définit le référentiel pour l'analyse des modifications de polarisation induites par la diffusion. L'étude du taux de dépolarisation est un indicateur sur la manière dont la lumière est modifiée lorsqu'elle interagit avec des particules, en offrant un aperçu spécifique de la modification de la polarisation de la lumière diffusée. Le taux de dépolarisation, défini comme le rapport entre l'intensité diffusée à  $90^\circ$  et celle à  $0^\circ$ , permet d'évaluer quantitativement la modification des états de polarisations de la lumière due à la diffusion par une particule. La Figure 51(c)(d) découlant de cette définition, met en évidence une forte dépolarisation autour des angles azimutaux à  $45^\circ$  et  $-45^\circ$ , conformément aux observations de la partie III.1. Ce résultat illustre de manière visuelle l'ampleur de la modification de la polarisation induite par la diffusion sur les particules. Le fait que la dépolarisation soit même supérieure à 1 à ces angles suggère aussi un changement de polarisation où la composante perpendiculaire de la polarisation devient dominante par rapport à la composante parallèle originale. Une telle modification importante de la polarisation peut être attribuée à plusieurs phénomènes optiques intervenant lors de la diffusion de la lumière par les particules. Parmi ces phénomènes, la réfraction à l'intérieur de la particule et au caractère spatial non uniforme résultant du champ électrique interne de la particule, comme expliqué dans [170].

Examinons l'effet de la taille des particules sur la rétrodiffusion, avec comme référence la théorie de Lorentz-Mie, reconnu pour sa capacité à modéliser la diffusion de la lumière par des particules sphériques. Le cas d'étude se concentre ici sur des particules significativement plus

petites que celles précédemment analysées, spécifiquement des particules de 10 micromètres (verre, borosilicate de Duke Standards 9010). Le fait d'utiliser des particules de diamètre plus faible va affecter la quantité totale de lumière rétrodiffusée limitée par la diminution de la surface d'interaction. Cette réduction de la surface effective entraîne un signal de rétrodiffusion moindre. La Figure 51(b) illustre cette difficulté, montrant une absence relative des motifs de diffusion clairs, comparativement à ceux observés pour des particules de taille de 32  $\mu\text{m}$ . L'étude met en lumière l'importance de la taille des particules dans l'analyse des phénomènes de rétrodiffusion lumineuse.

Dans le cas des particules de 32  $\mu\text{m}$ , l'observation de la dépolarisation exactement sur les anneaux de diffusion aux angles azimutaux de  $45^\circ$  et  $-45^\circ$  illustre bien la relation entre la structure de la diffusion et la modification de la polarisation de la lumière diffusée. Pour des particules de taille inférieure, les premiers lobes de dépolarisation observés se déplacent vers des angles de diffusion plus élevés Figure 51(d), démontrant ainsi un changement des diagrammes de diffusion prévu par la théorie de Lorentz-Mie. La comparaison entre la Figure 51(c) et (d) est directement visible, on peut bien observer que pour une particule de plus petite taille seuls les premiers lobes de dépolarisation sont visibles. Cette observation est bien plus visible en termes de dépolarisation qu'en termes d'intensité pure. Cette analyse qualitative, fondée sur l'identification des angles auxquels le signal de dépolarisation commence d'augmenter, permet d'identifier un paramètre directement sensible à la taille des particules étudiées. Bien que cette approche ne fournisse pas une mesure quantitative directe du paramètre de taille ou de l'indice de réfraction des particules, elle offre une méthode comparative utile pour évaluer les changements dans le comportement de diffusion à mesure que ces paramètres varient. On observe que le champ de vue de l'instrument est insuffisant pour capturer entièrement le lobe de dépolarisation pour certaines particules, cela souligne également l'importance de prendre en compte les limitations instrumentales lors de la conception d'expériences et d'interpréter les données de diffusion.

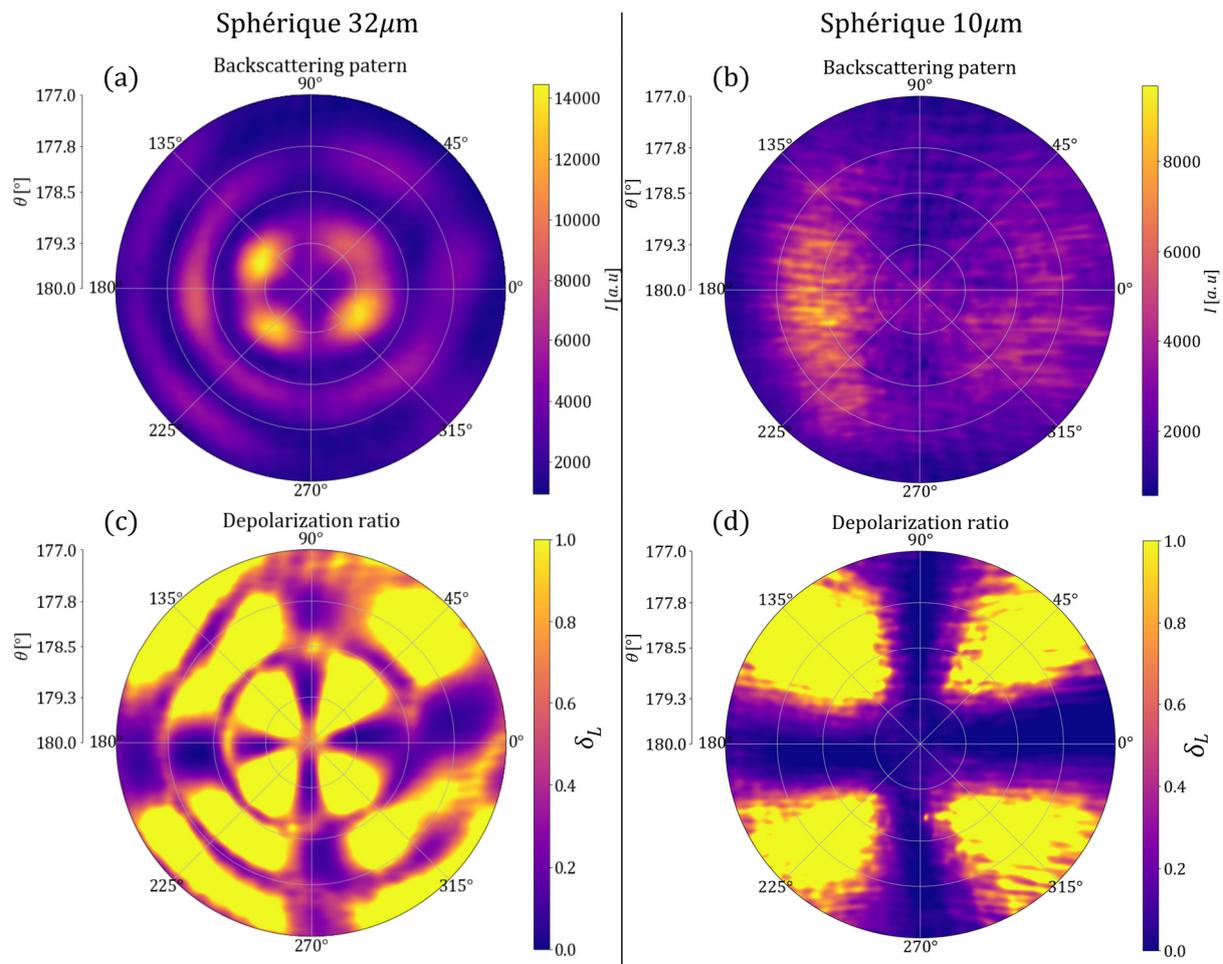


Figure 51 : Ensemble de diagramme de diffusion et de dépolarisation avec (a) et (c) pour les particules sphériques de 32  $\mu\text{m}$  et (b) et (d) pour une particule de 10  $\mu\text{m}$ . (a) et (b) sont les Intensités  $I$  du vecteur de Stokes mesurées par la caméra en fonction des angles  $\theta$  et  $\phi$ . (c) et (d) sont les diagrammes de dépolarisation en deux dimensions en fonction des deux angles de diffusion  $\theta$  et  $\phi$ .

Après avoir examiné l'aspect angulaire de la dépolarisation, notre attention se tourne désormais vers son aspect spectro-polarimétrique, qui considère la dépolarisation en fonction de la longueur d'onde et de l'angle de diffusion. Pour cela, nous utiliserons les fonctions de phase moyennées autour de l'angle azimutal, telles que définies précédemment, tout en intégrant la dépendance en longueur d'onde.

La Figure 52 illustre la dépolarisation  $\delta_L(\theta, \lambda)$  pour une particule de verre quasi sphérique de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre, mettant en évidence la dépolarisation à  $\theta=180^\circ$ , soit la direction exacte de rétrodiffusion. Conformément à la théorie de Mie, cette valeur de dépolarisation devrait être proche de zéro pour toutes les valeurs de  $\theta$  et  $\lambda$  pour une particule parfaitement sphérique. Néanmoins, les données révélées indiquent une dépolarisation d'environ  $\delta_L(180^\circ, 535) = 4,3 \pm 1,4 \%$ . Selon [170], ce phénomène est attribué à la légère non-sphéricité de la particule. En effet, même pour une particule de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre, avec un paramètre de taille  $kR=2\pi R/\lambda$  situé entre 30 et 60, la réfraction interne à la particule demeure significative, et la moindre non-sphéricité peut facilement perturber la symétrie miroir parfaite anticipée pour  $\delta_L(\theta, \lambda)$  d'une sphère idéale. Des comportements similaires, pour des valeurs de  $kR$  comparables, ont également

été observés dans [171]. La Figure 52 montre par ailleurs que d'autres angles de diffusion présentent une plus grande dépolarisation.

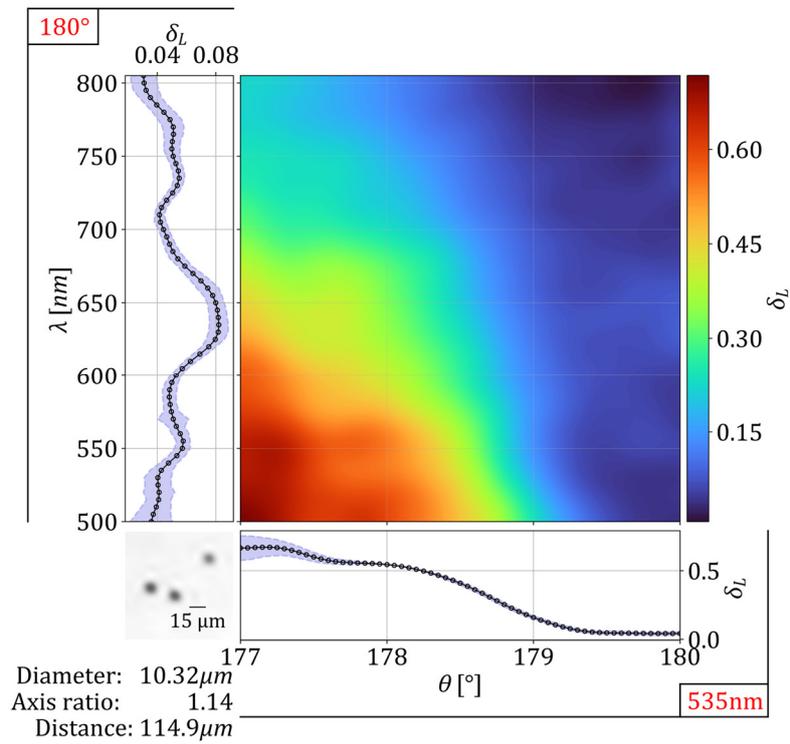


Figure 52: Dépolarisation linéaire en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour une particule sphérique de verre d'un diamètre de 10  $\mu\text{m}$ . Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $I(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=179,5^\circ$  soit à  $\lambda=535\text{ nm}$ . Une image de la particule produisant ces données de diffusion est obtenue par DIH et montrée en incrustation.

## VI. Conclusion

Notre méthode de mesure, couplant la diffusion avant, la rétrodiffusion, et l'holographie, se révèle particulièrement efficaces pour déterminer de nombreuses caractéristiques essentielles à la compréhension des propriétés spectrales dans le domaine du Lidar. Les particules sphériques, en particulier, illustrent bien l'intérêt et la complémentarité de ces différentes approches de mesure. Alors que l'holographie peut révéler la morphologie des particules, la diffusion avant permet de déduire l'indice optique à travers le modèle de diffusion de Mie, en se fondant sur la connaissance préalable de la morphologie des particules. La rétrodiffusion, quant à elle, joue un rôle capital dans les mesures Lidar et dans l'évaluation de la dépolarisation. Connaître la diffusion et l'holographie permet d'étudier l'extinction [157] ainsi que la rétrodiffusion d'une particule, permet de remonter directement aux paramètres clés pour les mesures Lidar, telles que le rapport lidar ou le rapport extinction sur rétrodiffusion. En outre, l'analyse de la dépolarisation fournit des informations précieuses sur le type et la morphologie des particules observées, créant ainsi un lien avec l'utilisation de l'holographie. Il reste désormais à appliquer ces techniques d'observation aux aérosols présents dans l'atmosphère pour étudier leurs phénomènes radiatifs.

Ce chapitre a exposé les principes de mesure des trois méthodes de mesure examinées durant cette thèse, à savoir la diffusion avant, la rétrodiffusion et l'holographie. Chacune de ces approches apporte des mesures d'intérêt sur les propriétés radiatives des particules à l'étude et leur application conjointe forge une compréhension approfondie de ces dernières. Les différentes voies de mesure ont été calibrées, assurant ainsi la précision des données recueillies et la possibilité d'évaluer les erreurs de mesure. Il convient de souligner une contrainte technique importante : les mesures de diffusion avant et d'holographie ne peuvent pas se dérouler simultanément par leur partage d'un chemin optique commun. Une validation expérimentale sur des particules sphériques de référence a été réalisée et comparée avec des résultats de modélisation fournis par la théorie de Lorenz-Mie. Notamment, la diffusion en anneaux, caractéristique de cette théorie, a été mise en évidence, et les angles de diffusion mesurés ont été en adéquation avec les prédictions théoriques. Il a également été possible de constater une faible dépolarisation des particules sphériques, ce qui est surprenant, car ces particules ne devraient théoriquement pas provoquer de dépolarisation. Cette observation a été attribuée à une légère asphéricité des particules, révélée par l'holographie, induisant une dépolarisation minime. L'ambition derrière le développement de cet instrument est de démontrer l'intérêt du couplage entre les méthodes de diffusion et d'holographie pour étudier les aérosols présents dans l'atmosphère. Ce couplage est une des clés permettant d'établir une corrélation entre la morphologie des particules et leurs propriétés radiatives, un aspect fondamental pour avancer dans la compréhension des interactions entre la lumière et les particules atmosphériques.

## Chapitre 3: Morphologie et propriétés radiatives des aérosols

---

L'objectif principal de ce chapitre est d'analyser la corrélation entre les mesures de diffusion spectro-polarimétrique et la morphologie des particules. Cette analyse vise à faciliter l'élaboration et l'application de modèles d'inversion lidar. La spécificité de cette étude réside dans son champ d'application, qui englobe non seulement des aérosols atmosphériques communs tels que les poussières désertiques et les cendres volcaniques, mais également des particules moins conventionnelles, comme les régolithes lunaires. Les poussières désertiques et les cendres volcaniques ont récemment fait l'objet d'une attention accrue en raison d'événements tels que le déplacement de masses de sable du Sahara vers l'ouest de l'Europe en mars 2022 et les éruptions volcaniques éjectant d'importantes quantités de cendres dans l'atmosphère, capables de perturber le trafic aérien, comme ce fut le cas lors de l'éruption de l'Eyjafjallajökull en Islande en avril 2010 perturbant le trafic aérien européen. Ces particules sont donc fréquemment rencontrées dans l'atmosphère et font l'objet d'études approfondies dans le cadre des mesures Lidar. Notamment, il est intéressant de les étudier dans le domaine de l'aviation, où, lorsqu'elles sont émises en grande quantité, lors d'éruptions volcaniques, par exemple, peuvent considérablement réduire la visibilité et provoquer des incidents techniques, paralysant ainsi les voies aériennes [11,12].

Cette diversité d'échantillons vise à élargir le spectre des mesures possibles avec les instruments lidar, mettant en évidence la complémentarité des techniques de diffusion et d'holographie. Initialement, l'analyse de la rétrodiffusion selon différentes longueurs d'onde a été conduite en exploitant des modèles de diffusion, dans le but d'enrichir et de perfectionner les données obtenues par lidar [172,173]. Par la suite, certains dispositifs lidar ont été adaptés pour inclure des mesures sur plusieurs longueurs d'onde, bien que ces mesures soient généralement restreintes à trois longueurs d'onde spécifiques [50,174]. Le type d'instrument développé durant cette thèse se révèle particulièrement intéressant pour pallier les lacunes d'informations inhérentes à ces mesures de dépolarisation lidar limitées à trois longueurs d'onde. La Figure 53 illustre la mesure de dépolarisation pour des aérosols à trois longueurs d'onde distinctes (455, 532, et 1064 nm) issue des données de M.Haarig [50], mettant en évidence une tendance caractérisée par un pic de dépolarisation à la longueur d'onde médiane de 532 nm. Néanmoins, cette tendance semble fluctuer en fonction du jour d'observation, suggérant une variabilité selon les différents contextes d'étude. L'ambition de ce chapitre est donc de vérifier la validité de cette tendance observée en dépolarisation et de combler le déficit d'informations en augmentant le nombre de points de mesure.

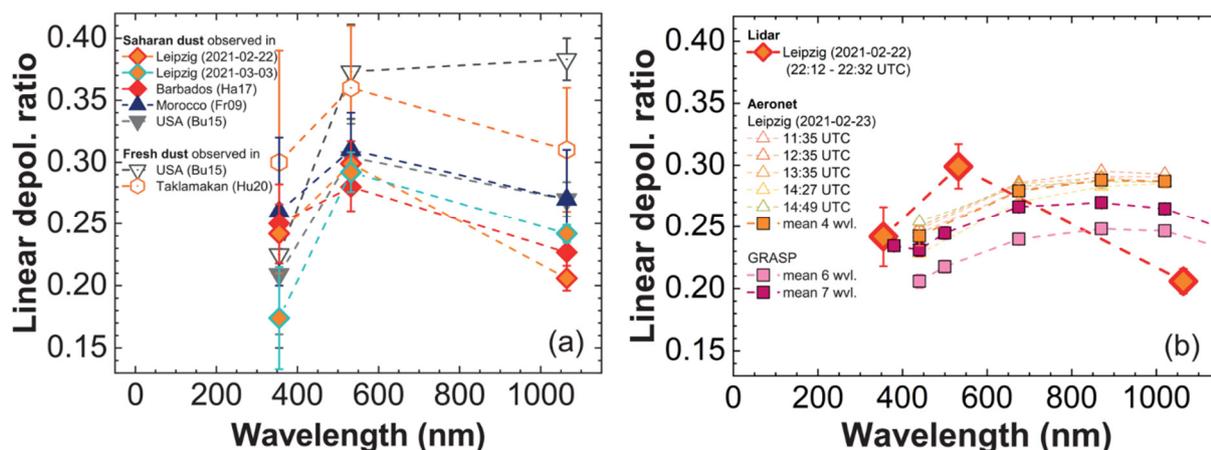


Figure 53 : Dépolarisation en fonction de la longueur d'onde pour trois longueurs d'onde étudiée (355, 532 et 1064 nm) issu de [50]. Pour des poussières désertiques du Sahara observées dans le ciel de Leipzig et comparée aux données laboratoires (a) fresh dust et AERONET [175]/GRSAP [176] (b).

Dans un premier temps, l'étude se concentrera sur la caractérisation des aérosols atmosphériques en examinant leurs morphologies à l'aide de l'holographie, ainsi qu'en mesurant leurs propriétés radiatives, déterminées par les techniques de diffusion avant et de rétrodiffusion. Cette première étape consiste donc à l'étude approfondie de la diffusion spectro-polarimétrique de la lumière pour chaque type de particule avec une visualisation de chaque particule grâce à l'holographie. En effet, le comportement de ces particules diffère considérablement de celui des particules sphériques, rendant leurs études bien plus difficiles avec des modèles de diffusion souvent incomplets ne simulant pas toute la complexité de ces particules.

La seconde partie du chapitre se concentre sur l'analyse du lien entre les propriétés morphologiques des particules et leurs propriétés radiatives en rétrodiffusion. Cette analyse propose d'étudier le rapport de dépolarisation linéaire en fonction de la taille des particules et de leur morphologie. Cette dernière sera quantifiée par le rapport d'axe des particules (ratio des deux axes d'une ellipse équivalente à la particule). La démarche comprend l'examen de l'existence d'une corrélation entre ces différentes mesures. Par la suite, l'analyse s'étendra à l'évolution de cette relation en fonction de la longueur d'onde. L'objectif final est de déterminer comment la longueur d'onde affecte cette corrélation entre la morphologie des particules et leur comportement radiatif.

# I. Présentation des particules

## 1. Poussières désertiques

Dans cette analyse, le terme « poussière » désigne un ensemble de particules solides, dont la taille varie d'un à plusieurs centaines de micromètres. Cette catégorie englobe une variété de particules, y compris les particules minérales émanant des déserts et des zones agricoles, des fragments de plantes, des cendres volcaniques et des particules produites dans divers contextes professionnels. Un exemple spécifique est la poussière désertique d'Arizona dont les caractéristiques chimiques et radiatives sont bien connues, et donc reproduites en masse pour réaliser des tests calibrés. Ces simulants de poussière d'Arizona sont également connus sous le nom de poussière de test d'Arizona (ATD) qui est un échantillon commercial représentant un mélange hétérogène de différents minéraux [40,42,177]. Elles se caractérisent par des particules de formes irrégulières, comparables à celles fréquemment rencontrées dans l'atmosphère, et ont été largement étudiées en raison de leur comportement radiatif connu [178–180].

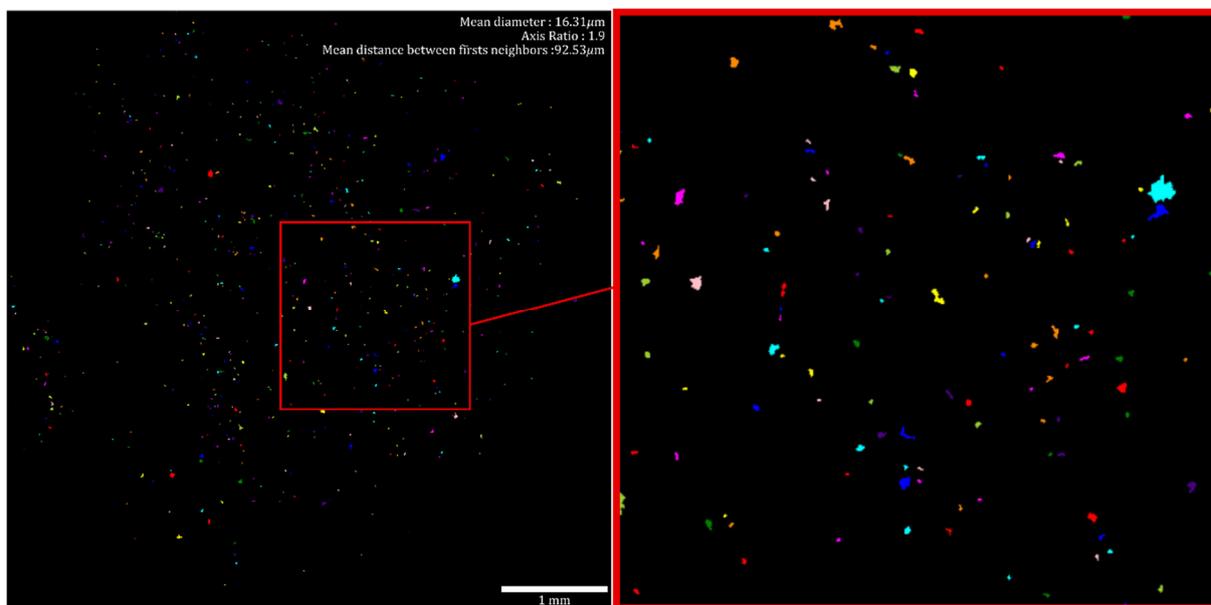


Figure 54 : Image des particules de poussière désertique d'Arizona, cette image est la reconstruction d'un hologramme et chaque particule est identifiée et colorisée pour les identifier. On note un diamètre moyen de  $16.3 \mu\text{m}$  et un rapport d'axe de 1.9

La Figure 54 met en évidence l'hétérogénéité de la forme de ces particules, illustrée par une image holographique des ATD. Cette image montre diverses particules d'ATD, chacune étant colorée pour faciliter son identification, une procédure automatique décrite au Chapitre 2. Les observations révèlent des particules de tailles et de morphologies variées, avec un diamètre moyen de  $16,3 \mu\text{m}$  et un rapport d'axe moyen de 1,9, indiquant que la majorité des particules sont relativement asymétriques, voire allongées. La distribution de la taille et du rapport d'axe de ces particules est présentée dans la Figure 55, on observe une prédominance de particules mesurant  $10 \mu\text{m}$  ou moins, et un rapport d'axe variant de manière hétérogène, mais principalement autour de 1,6-1,9.

Nous explorons également d'autres types de poussières désertiques, spécifiquement celles provenant des déserts de Gobi et du Sahara, avec des résultats en diffusion exposés dans la partie mesures en rétrodiffusion. Les échantillons de poussière de ces deux déserts ont été collectés loin de leurs sources originales ; la poussière du Sahara a été recueillie à l'Observatoire de Sierra Nevada (OSN) à Grenade, en Espagne, durant un événement d'intrusion de poussière en 2004. L'OSN, situé à 2896 mètres d'altitude dans la Sierra Nevada, se trouve à plus de 1500 km de la source de la poussière. L'échantillon du Gobi a été prélevé à Pékin lors d'une importante tempête de poussière. Des détails supplémentaires sur ces échantillons sont disponibles dans [181].

La Figure 55(c), (d), (e) et (f) présente les distributions de taille et de rapport d'axe pour les poussières issues du désert du Sahara et du désert de Gobi. Les tailles moyennes observées sont de 13.73  $\mu\text{m}$  pour les poussières sahariennes et de 13.0  $\mu\text{m}$  pour celles du Gobi, avec des rapports d'axe moyens de 1.86 et 1.76 respectivement. Les particules du désert de Gobi sont légèrement plus petites et présentent une distribution plus serrée autour de la moyenne, avec un écart-type de 3.81, comparativement à 6.4 pour les poussières de test d'abrasion des pneus (ATD) et 5.03 pour celles du Sahara. Concernant les rapports d'axe, les trois types de poussières affichent des valeurs proches, environ 1.85, bien que les particules du Gobi soient légèrement moins allongées, avec un rapport d'axe de 1.76.

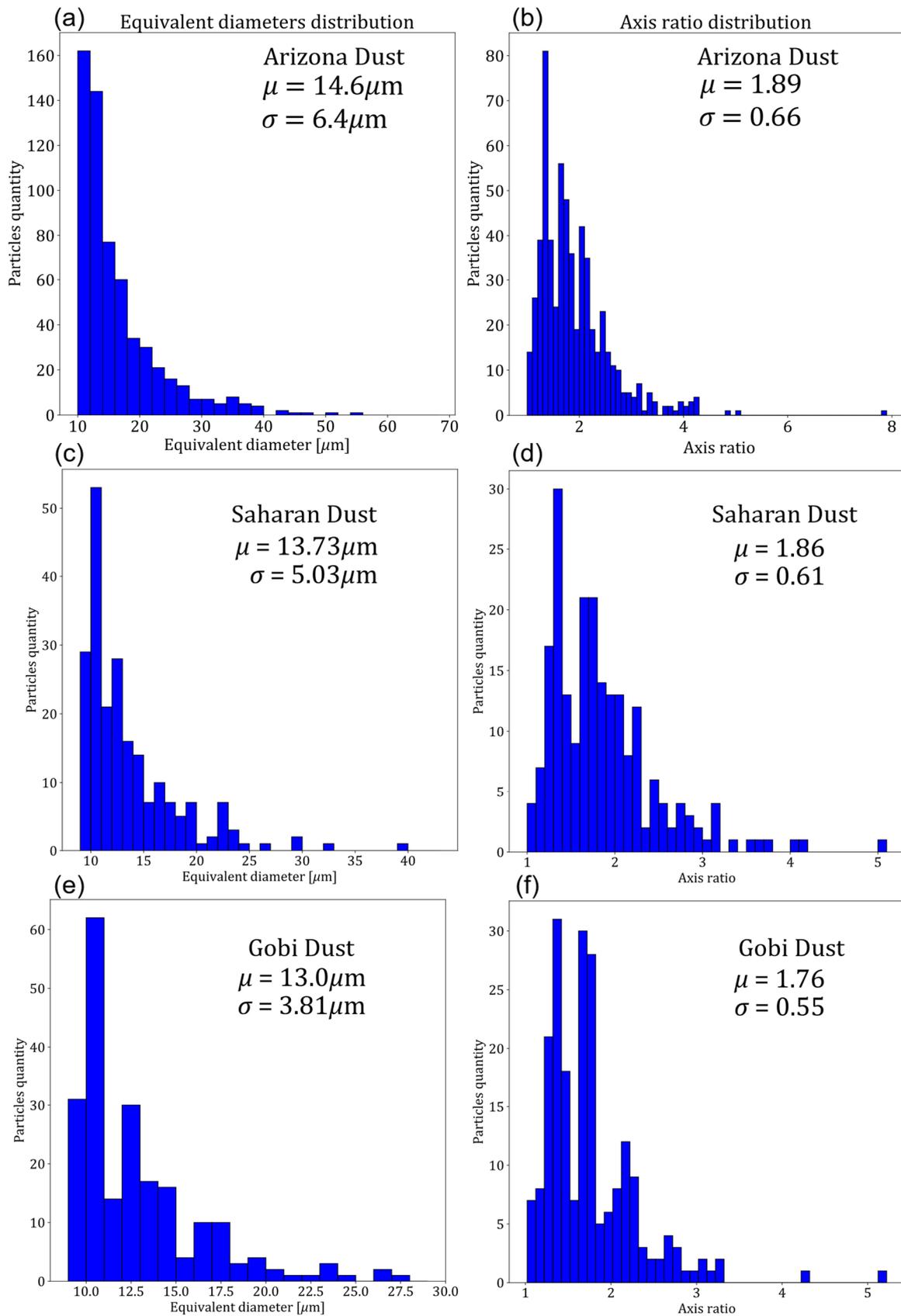


Figure 55 : Distribution en taille et en rapport d'axe des poussières désertiques : ATD (a)(b), Sahara (c)(d), Gobi(e)(f).

## 2. Cendres volcaniques

Les nuages de cendres volcaniques issus d'éruptions explosives ont un impact significatif sur divers aspects environnementaux et humains, allant du climat à la qualité de l'air et à la sécurité aérienne. Les particules de cendre de diamètre inférieur à environ  $60 \mu\text{m}$  sont particulièrement importantes, car elles peuvent rester en suspension dans l'atmosphère pendant une longue période, affectant ainsi la diffusion de la lumière [182]. Cette diffusion est responsable de phénomènes optiques remarquables tels que les couchers de soleil rouge et les halos observés lors d'événements volcaniques majeurs. En outre, les particules de cendre influencent la qualité de l'air et réduisent la visibilité, tout en représentant un risque majeur pour la sécurité des vols en raison de la possibilité de leur accumulation au sein des moteurs d'avions.

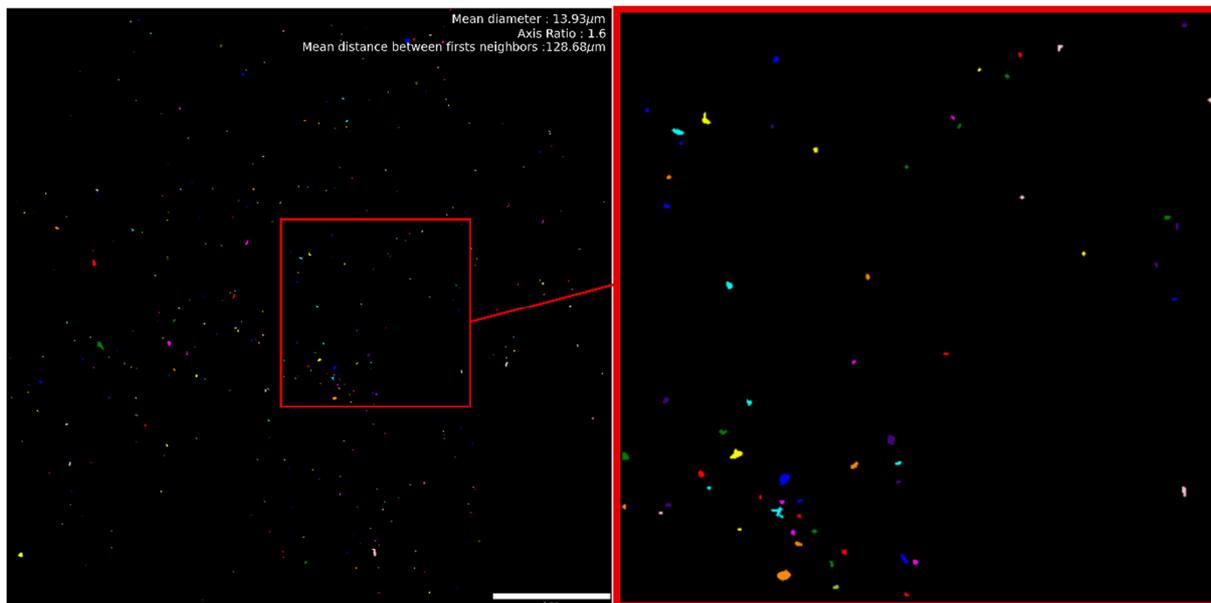


Figure 56 : Image des cendres volcaniques de La Palma, cette image est la reconstruction d'un hologramme et chaque particule est identifiée et colorisée pour les identifier. On note un diamètre moyen de  $13.93 \mu\text{m}$  et un rapport d'axe de 1.6

Les caractéristiques physiques des cendres volcaniques, telles que leur forme irrégulière, la diversité de leur taille, et les variations de composition, de rugosité de surface, et de structure interne, sont importantes pour comprendre leur comportement de diffusion de la lumière. Ces facteurs introduisent une incertitude significative dans les mesures de télédétection, compliquant la quantification précise de la concentration, de la composition, et d'autres propriétés des aérosols volcaniques. La mesure de la dépolarisation linéaire, en particulier, montre une grande variabilité en fonction du type spécifique de cendre étudié, et une grande quantité de données de diffusion pour les cendres volcaniques est disponible dans la littérature [23,183]. Dans le cadre de cette étude, nous étudierons trois échantillons de cendres volcaniques provenant de sources notables. Le premier échantillon provient de cendres du volcan Popocatepetl au Mexique étudié en diffusion avant, le seconde de l'éruption de 2010 du volcan Eyjafjallajökull en Islande, collecté à une distance de 5 km de la source peu après l'éruption [181,184]. Le troisième échantillon de cendres est issu de l'éruption de 2021 de la crête volcanique Cumbre Vieja sur l'île de La Palma, en Espagne, et a été prélevé sur des dépôts de surface. Ces échantillons fournissent une opportunité

unique d'étudier les propriétés optiques et physiques des cendres volcaniques et leur impact sur l'environnement et la sécurité humaine.

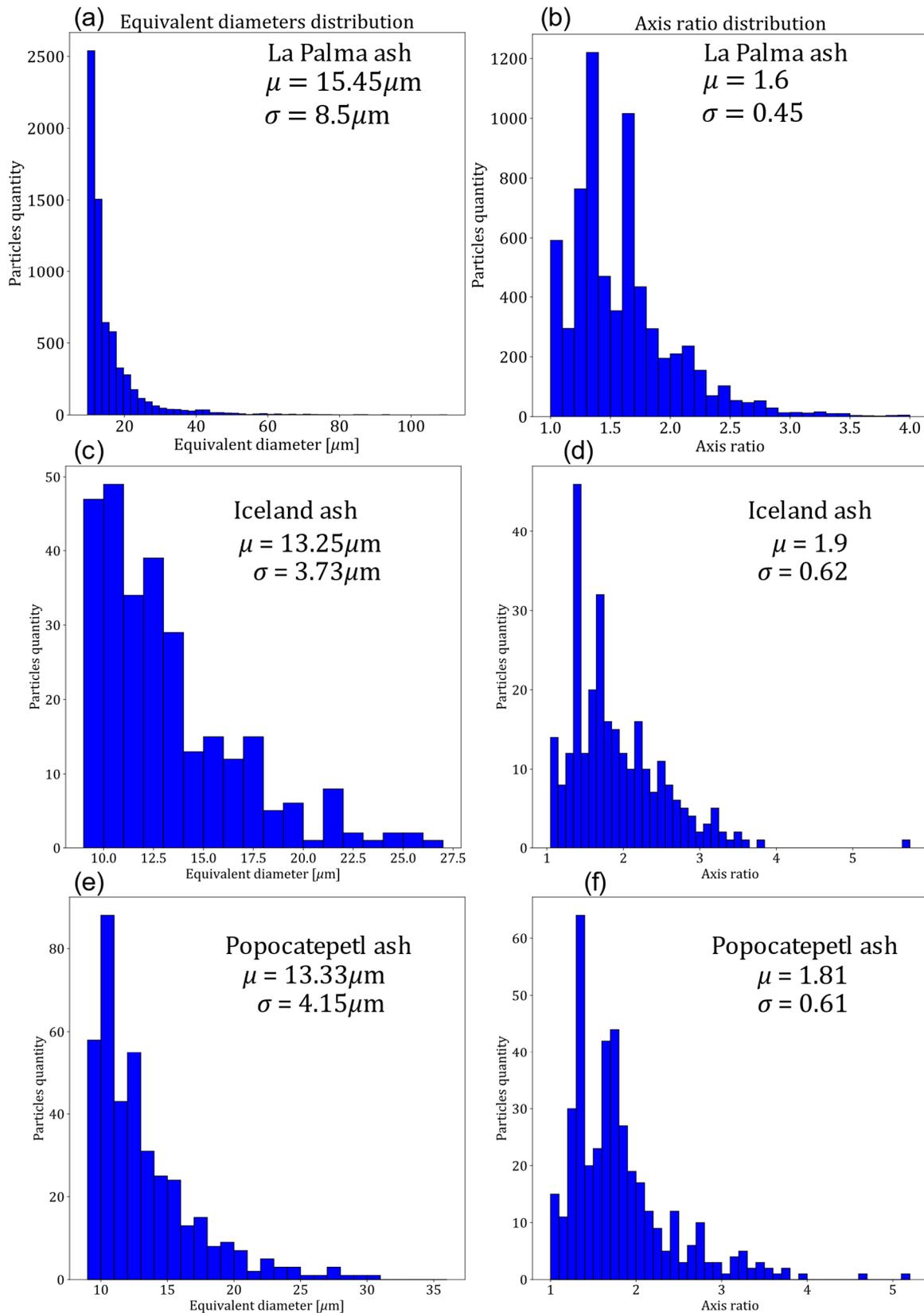


Figure 57 : Distribution en taille et en rapport d'axe des cendres volcaniques : La Palma (a)(b), Islande(c)(d) et Popocatepetl (e)(f).

Avant de procéder à des analyses détaillées, les cendres volcaniques ont été soumises à une évaluation holographique afin de déterminer leurs caractéristiques morphologiques globales. Les résultats de cette évaluation sont présentés dans la Figure 57(a) et (b) pour les cendres volcaniques de La Palma, qui met en lumière à la fois la distribution de la taille des particules et leur distribution du rapport d'axe. Ces particules présentent une taille moyenne de  $15,45 \mu\text{m}$ , avec une distribution log-normale indiquant une abondance de particules mesurant  $10 \mu\text{m}$  ou moins. Notamment, le rapport d'axe moyen de ces particules de cendre volcanique, estimé à 1,6, est inférieur à celui observé pour les poussières désertiques, soulignant une différence dans leur forme générale. Les cendres islandaises sont observées sur la Figure 55(c) et (d), celles-ci présentent un diamètre moyen de  $13,25 \mu\text{m}$  et un rapport d'axes de 1,9 qui est bien plus élevé que pour celles de La Palma. Les cendres du Popocatepetl, Figure 55(d) et (e) semblent plus proche des cendres Islandaise avec un diamètre de  $13,33 \mu\text{m}$  et un rapport d'axes de 1,81.

### 3. Régolithes lunaires

Les régolithes lunaires constituent une composante majeure de la couverture superficielle de la Lune, formée par l'accumulation de poussière et de débris résultant des impacts météoritiques sur sa surface dépourvue d'atmosphère. L'épaisseur de cette couche varie entre 3 et 8 mètres, recouvrant ainsi l'ensemble du satellite naturel de la Terre. Bien que les missions Apollo aient permis de ramener des échantillons de régolithe lunaire sur Terre, la quantité de matériaux collecté était limitée. Pour pallier cette contrainte, des groupes de scientifiques ont développé des simulants de régolithe en laboratoire, reproduisant les caractéristiques clés des échantillons lunaires originaux [185–187].

Parmi ces simulants, le JSC-1A, élaboré par le Johnson Space Center, se distingue particulièrement. Il est composé de cendres basaltiques provenant du champ volcanique de San Francisco, intégrant du verre basaltique dans sa composition. L'objectif de ce simulant est d'imiter au plus près les régolithes des maria lunaires (zone sombre de la Lune), ces vastes plaines basaltiques sombres initialement prises pour des mers par les observateurs terrestres. La composition spécifique du JSC-1A, faible en titane et majoritairement constituée de verre basaltique, vise à refléter les propriétés des régolithes des zones correspondantes sur la Lune. Un second échantillon a été testé lors de notre étude, le LHS-1, qui est un mélange de minéraux terrestre et celui-ci simule des poussières lunaires présentes dans les Highlands ou haut plateaux (Zone plus blanche de la Lune). Une évolution du LHS-1 est le LHS-25A qui est simplement une version prenant en compte l'agglomération des particules issues du LHS-1.

L'analyse holographique a joué un rôle prépondérant dans l'étude de ces simulants de régolithe, permettant une évaluation détaillée de la distribution de taille et du rapport d'axe de celles-ci. La Figure 58 (a) et (b) montre les différentes distributions grâce à l'image holographique de ces particules, on peut y voir une moyenne autour de  $16 \mu\text{m}$  et un pic de diamètre à  $10 \mu\text{m}$ . En termes de rapport d'axe, on observe un rapport d'axe concentré sur un pic à 1,35 et une moyenne à 1,7. La moyenne et le pic de distribution du diamètre des particules, ainsi que le rapport d'axe, indiquent une cohérence notable avec les particules observées précédemment. Ces similarités ne sont pas surprenantes puisque le simulant LHS-25A est directement dérivé de matériaux

minéraux terrestres tel que des cendres ou des poussières, spécifiquement choisis pour leur analogie avec le régolithe lunaire.

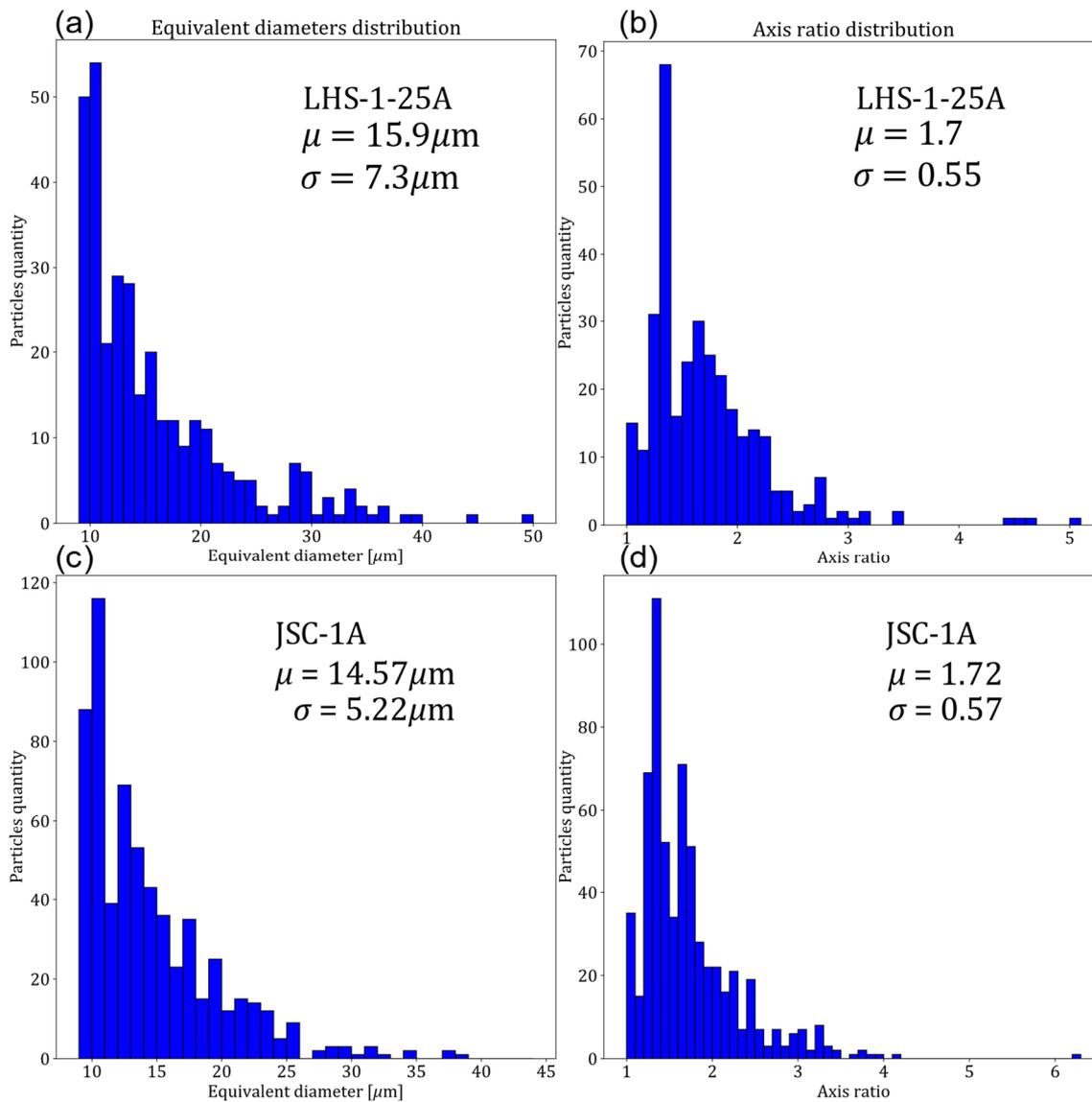


Figure 58 : Distribution en taille et en rapport d'axe des simulants de régolithe lunaire LHS-25A(a), (b) et JSC-1A(c), (d).

Nous proposons ici une synthèse des mesures de dépolarisation spectrale pour l'ensemble des aérosols atmosphériques.

<b>Particules</b>	<b>Diamètre moyen [<math>\mu\text{m}</math>]</b>	<b><math>\sigma</math> Diamètre [<math>\mu\text{m}</math>]</b>	<b>Rapport d'axe moyen</b>	<b><math>\sigma</math> Rapport d'axe</b>
<b>ATD</b>	14,6	6,4	1,89	0,66
<b>Sahara</b>	13,73	5,03	1,86	0,61
<b>Gobi</b>	13,0	3,81	1,76	0,64
<b>Islande</b>	13,25	3,73	1,9	0,62
<b>La Palma</b>	15,45	8,5	1,6	0,45
<b>Popocatépetl</b>	13,33	4,15	1,81	0,61
<b>JSC-1A</b>	14,57	5,22	1,72	0,57
<b>LHS-25-A</b>	15,9	7,3	1,7	0,55

Tableau 3 : Récapitulatif des différentes propriétés morphologiques des particules étudiées précédemment, poussières désertiques, cendres volcaniques et simulants de régolithes lunaires.

Ces mesures illustrent l'apport de l'holographie pour la caractérisation des paramètres morphologiques des aérosols. Ces mesures nous permettent de connaître les paramètres moyens de taille et de rapport d'axe des particules au global en réalisant des figures de distribution. On notera que le diamètre moyen fourni par l'holographie ne tient pas compte des particules submicroniques en raison de la limite de résolution du capteur. Cette limite instrumentale est à prendre en compte pour une étude granulométrique complète des particules. Ces paramètres sont importants pour pouvoir interpréter et étudier ensuite les propriétés radiatives des aérosols. La méthode d'holographie est intégrée à l'instrument de rétrodiffusion et permettra d'obtenir directement les informations morphologiques des particules dont la diffusion a été mesurée.

## II. Diffusion avant

L'objectif principal de cette série de mesures en diffusion avant est d'examiner la variation de la fonction de phase ou du diagramme de diffusion 2D en fonction de la longueur d'onde pour des particules présentant des formes très irrégulières, telles que les cendres volcaniques ou les poussières désertiques. La complexité de la modélisation de la diffusion lumineuse par de telles particules réside dans leur irrégularité, rendant l'analyse de leur comportement en diffusion particulièrement difficile. L'intention est de repérer des différences qualitatives dans la diffusion en avant, en employant une représentation à travers des diagrammes de diffusion 2D colorés permettant de distinguer les variations selon l'angle de diffusion et la longueur d'onde. L'objectif est donc de proposer une représentation simplifiée de l'apparence visuelle des motifs de diffusion lorsqu'ils sont générés par l'interaction de la lumière avec les couleurs primaires – bleu, vert et rouge. Par exemple, une particule diffusant principalement la lumière rouge et verte, mais faiblement la lumière bleue, produirait un motif perçu comme jaune par l'œil humain. À l'inverse, si les trois couleurs sont diffusées avec une intensité similaire, le motif serait perçu comme blanc.

Cette approche est illustrée dans la Figure 59 où nous explorons la superposition de motifs de diffusion 2D-SALS (Small Angle Light Scattering) fondés sur la couleur pour une particule sphérique premièrement. Les longueurs d'onde choisies pour représenter les couleurs primaires sont  $\lambda_{bleu} = 450 \text{ nm}$  pour le bleu,  $\lambda_{vert} = 550 \text{ nm}$  pour le vert, et  $\lambda_{rouge} = 632 \text{ nm}$  pour le rouge. Pour chaque couleur, les motifs 2D-SALS correspondants sont d'abord représentés dans les nuances de la couleur sélectionnée selon une échelle logarithmique d'intensité. Ces motifs agissent comme des couches de couleur distinctes. Par exemple, la couche de couleur bleue ( $\lambda_{bleu}$ ) pour la microsphère, montrée dans la Figure 59(a). Ces couches de couleur sont ensuite fusionnées de manière additive sur un fond noir pour créer un motif 2D-SALS composite en couleur. Les nuances de couleur, ajustées selon une échelle logarithmique pour chaque couche, sont détaillées à droite de la Figure 59, accompagnées d'une légende explicative sur la manière dont les différentes couches de couleur se combinent pour former le motif final. La Figure 59(a) montre une sphère de rayon  $R=27,2 \text{ }\mu\text{m}$ . Une image au microscope de la particule est montrée à côté du motif. On observe bien cette variation en fonction de la longueur d'onde et le fait que les anneaux de diffusion s'élargissent en fonction de la longueur d'onde. Cette méthode de visualisation offre une approximation de la perception visuelle humaine des motifs de diffusion lumineuse générés par des particules lorsqu'elles sont illuminées simultanément par des lumières de couleurs primaires.

La Figure 59 met en évidence deux types de particules : (b) une particule désertique et (c) une particule de cendre issue du volcan Popocatépetl au Mexique, fournies par l'Université de Puebla (BUAP). Des images microscopiques accompagnent chaque motif de diffusion, révélant des tailles de particules s'étendant de  $30 \text{ }\mu\text{m}$  à plus de  $300 \text{ }\mu\text{m}$ . Les conditions de mesure (ex. longueurs d'onde, puissance laser spectrale et le temps d'exposition du capteur) sont identiques pour toutes les particules observées, ce qui permet une comparaison qualitative directe entre les différents motifs de diffusion. Les observations suggèrent que la particule de sable, spécifiquement illustrée dans la Figure 59 (a) comme étant la plus grande, présente une intensité diffusée plus importante autour du lobe de diffusion avant par rapport à d'autres particules. Toutefois, une analyse détaillée de la structure angulaire des motifs s'avère complexe sans la connaissance de l'indice de

réfraction en fonction de la longueur d'onde. Une caractéristique notable des motifs de diffusion est leur couleur. Le motif associé à la particule de sable tend vers le blanc, indiquant une diffusion plus uniforme des couleurs primaires, contrairement au motif produit par les cendres. Cette différence qualitative peut être attribuée aux variations spectrales des indices de réfraction des matériaux constitutifs des particules, qui influencent la manière dont chaque type de particule diffuse les couleurs primaires avec des intensités variables. L'analyse des motifs de diffusion 2D générés par des particules non sphériques, comme ceux présentés dans la Figure 4, met en avant l'importance de la composition des particules sur les résultats des mesures de diffusion lumineuse 2D-SALS (*Small Angle Light Scattering*) multispectrales. Cette approche qualitative, inspirée de principes de visualisation en colorimétrie, démontre clairement l'influence du matériau de la particule sur les mesures de diffusion.

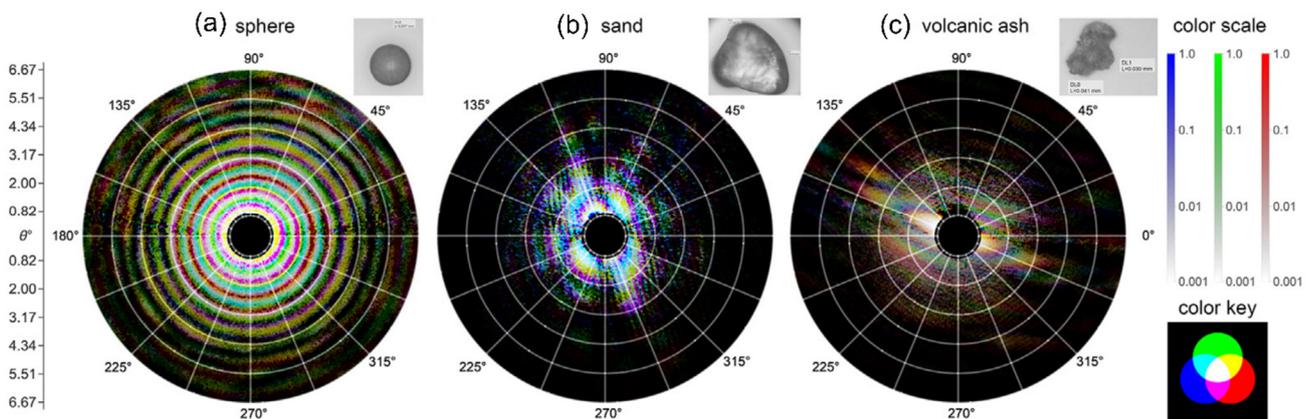


Figure 59 : Motifs multispectraux 2D-SALS mesurés pour des particules de poussière désertiques et cendres volcaniques. Chaque motif est obtenu en traçant les motifs 2D-SALS mesurés aux longueurs d'onde  $\lambda_b = 450$  nm,  $\lambda_g = 550$  nm et  $\lambda_r = 632$  nm, en les colorant respectivement en bleu, vert et rouge, puis en superposant ces motifs. Des images au microscope de chaque particule sont présentées en incrustation à droite du motif associé avec des tailles approximatives comme suit : (a)  $314 \times 300 \mu\text{m}$ , et (b)  $41 \times 30 \mu\text{m}$ .

La Figure 59 illustre des motifs utilisant seulement trois des treize longueurs d'onde mesurées, suggérant que l'ajout d'autres longueurs d'onde pourrait enrichir les informations extraites de ces données. Pour des particules sphériques, il est possible de comparer les données de diffusion multispectrale avec la théorie de Mie pour estimer l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde  $m(\lambda)$ , comme mentionné dans l'article de Bain et al. [188]. Cette estimation repose sur la symétrie azimutale des motifs de diffusion des particules sphériques.

Pour les particules non sphériques, le défi réside dans l'absence de symétrie azimutale dans leurs motifs de diffusion 2D, ce qui complique l'analyse. Toutefois, il est envisageable de déduire le facteur d'asymétrie de ces particules à partir de leurs motifs de diffusion, comme indiqué dans les travaux [100,189]. L'analyse des motifs de diffusion 2D complets semble donc être une méthode prometteuse pour estimer  $m(\lambda)$  même pour des particules non sphériques, en s'établissant sur l'analyse détaillée de ces motifs. Ce travail s'inscrit dans la continuité d'études antérieures telles que celles réalisées par Jung et al. [190], qui ont également effectué des mesures similaires. La méthodologie employée ici souligne la capacité de ces techniques à fournir des informations détaillées sur les propriétés optiques des particules, en exploitant une analyse

approfondie des motifs de diffusion 2D et en intégrant une gamme étendue de longueurs d'onde pour une analyse plus complète.

Une analyse particulièrement intéressante de ces digrammes de diffusion est le calcul d'asymétrie de la fonction de phase en fonction de l'angle azimutal. C'est une approche alternative qui repose sur l'étude de la diffusion lumineuse dans des directions de diffusion avant aux petits angles [189,191]. Cette étude a été menée sur une première version de l'instrument en diffusion avant permettant de mesurer les digrammes de diffusion en infrarouge (1550 nm). Cette technique se fonde sur l'analyse du motif de diffusion lumineuse, spécifiquement à travers le diagramme de diffusion aux petits angles en deux dimensions. Pour ce faire, le diagramme 2D est segmenté en  $N$  sections angulaires équivalentes le long de l'angle azimutal  $\phi$ . La procédure consiste à mesurer et à calculer la moyenne de l'intensité de la lumière diffusée dans chaque segment, produisant ainsi un indice quantitatif : le facteur d'asymétrie  $A_f$ . Ce dernier reflète le degré d'asymétrie azimutale présente dans le motif de diffusion. Mathématiquement, le facteur d'asymétrie est défini comme :

$$A_f = \frac{k_N}{I_{sca}} \sqrt{\sum_{i=1}^N (I_{tot} - I_{sca,i})^2} \quad (79)$$

où  $k_N = 100/\sqrt{N(N-1)}$  assurant que  $A_f$  soit compris entre 0 et 100 [191]. Dans cette équation, représente l'intensité lumineuse moyenne diffusée sur l'ensemble du motif 2D, et l'intensité lumineuse diffusée dans le  $i$ -ème segment azimutal.

Les résultats issus de cette méthode révèlent que les particules sphériques, en générant un diagramme de diffusion 2D avec un haut degré de symétrie azimutale, affichent des valeurs  $A_f$  inférieures à 10. En contraste, les particules non sphériques produisent typiquement des valeurs supérieures à 10 [189], indiquant une asymétrie azimutale significative.

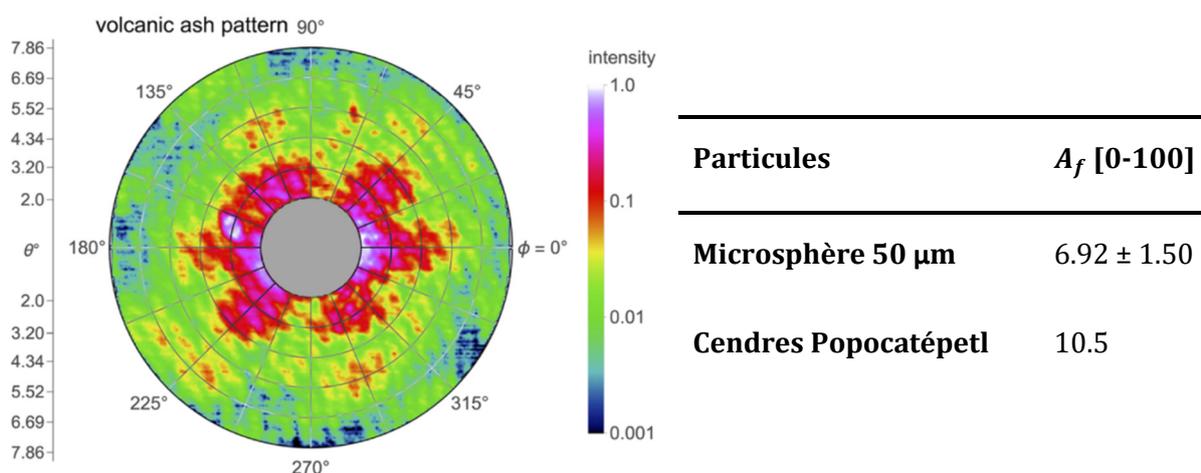


Figure 60 : Facteur d'asymétrie pour les particules sphériques et cendres volcaniques. L'équation 79 est appliquée aux motifs pour chaque particule et l'image insérée montre le motif de cendres volcaniques.

### III. Rétrodiffusion

#### 1. Poussières désertiques

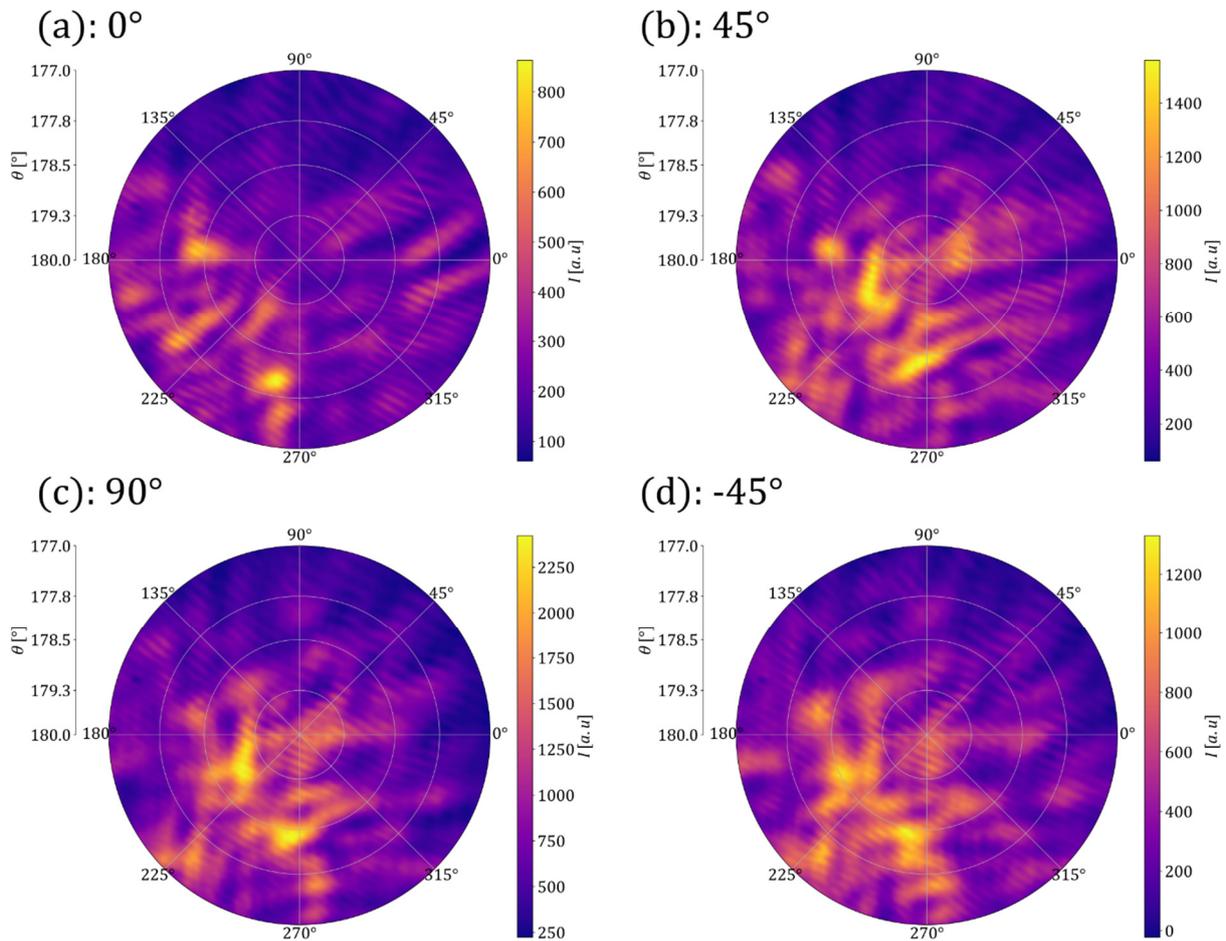


Figure 61 : Diagramme de rétrodiffusion en deux dimensions avec l'intensité rétrodiffusée en fonction des deux angles de diffusion  $\theta$  et  $\phi$ . Les quatre images correspondent aux intensités rétrodiffusées pour chaque polarisation observée par l'analyseur  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $-45^\circ$ .

L'analyse de la rétrodiffusion par des particules non sphériques se révèle complexe due à l'irrégularité et à la variabilité du signal sur différentes polarisations linéaires ( $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $-45^\circ$ ) [24], comme le montre la Figure 61. Ce comportement contraste fortement avec celui des particules sphériques, qui présentent des motifs de diffusion plus prévisibles et symétriques. Dans le cas des particules non sphériques, le signal rétrodiffusé montre une absence de régularité, avec des variations importantes en fonction des angles de diffusion et de la polarisation de la lumière incidente. Cette irrégularité se traduit par des zones ponctuelles de forte dépolarisation linéaire, où le rapport de dépolarisation peut excéder 1 sur certaines zones réduites, à noter que les observations lidar, en moyennant sur des milliers de particules, ne peuvent pas observer ces fortes irrégularités. En moyenne, la dépolarisation pour des particules de ce type ne devrait pas dépasser 40 %, mais certaines zones présentent des valeurs bien supérieures. Cette observation souligne l'influence significative de la forme et de l'orientation des particules sur leur comportement de diffusion.

La Figure 62 illustre le schéma de dépolarisation linéaire pour une particule donnée, mettant en évidence les zones de forte dépolarisation. Ce schéma démontre que la diffusion de la lumière par des particules non sphériques peut considérablement varier en fonction de la polarisation de la lumière incidente, entraînant des phénomènes de diffusion complexes.

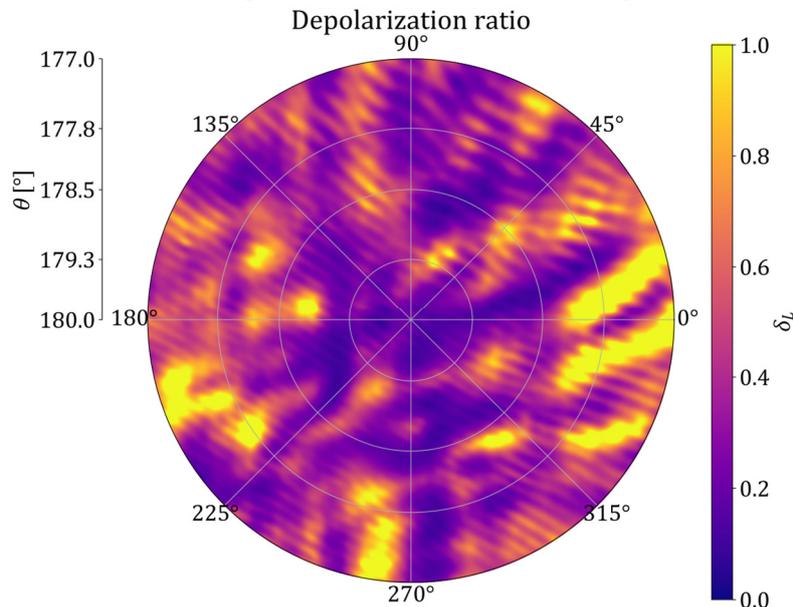


Figure 62 : Diagramme de dépolarisation en deux dimensions en fonction des deux angles de diffusion  $\theta$  et  $\phi$ . La figure est réalisée avec une particule de poussière désertique du désert d'Arizona à 535 nm.

Pour analyser la dépolarisation par des particules non sphériques, on utilise le signal de dépolarisation moyenné autour de l'axe azimutal ( $\phi$ ). Cette approche permet d'obtenir une valeur moyenne de la dépolarisation en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$ . L'objectif est de mesurer le rapport de dépolarisation linéaire et de le comparer aux valeurs rapportées dans la littérature, où une dépolarisation linéaire d'environ 35 % est attendue selon les références [35,42]. Comme vu sur les images holographiques (DIH), Figure 63 (a) et (b), on mesure une taille moyenne des particules d'approximativement 25  $\mu\text{m}$  dans l'échantillon d'ATD. Une dispersion adéquate des particules est assurée sur la lame de verre, permettant de respecter l'approximation de diffusion unique nécessaire pour que la diffusion multiple ne soit pas trop importante [192], Selon cette approximation, il est nécessaire que la distance moyenne inter-particulaire ( $d$ ) satisfasse l'inéquation  $k\langle d \rangle > 60$  ou  $k$  est le nombre d'ondes [193]. Pour nos échantillons, la distance inter-particulaire moyenne est de 80  $\mu\text{m}$ , ce qui, à une longueur d'onde de 535 nm, se traduit par  $k\langle d \rangle \approx 1000$ . Il est important de noter que nos particules sont plus grandes que celles utilisées dans les études de validation de cette approximation, une proportion mineure de diffusion multiple peut donc encore survenir lors de la diffusion par les particules.

Dans cette étude, nous entreprenons une analyse spectrale, en mettant l'accent initialement sur l'examen du signal de rétrodiffusion  $S_0$  issu du vecteur de Stokes. Ce premier volet de l'analyse consiste à observer l'intensité rétrodiffusée sans prendre en compte les effets de polarisation. L'objectif est ici de caractériser les variations des intensités normalisées, ces dernières étant relatives à la longueur d'onde, en fonction de l'angle de diffusion. Il est pertinent de noter que pour l'analyse des « Arizona test dust » (ATD), on constate une variation relativement faible de la courbe d'intensité en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$ . Cette observation indique que les

intensités semblent presque constantes, voire décroissante malgré l'augmentation de la longueur d'onde, Figure 63(a). Cette tendance contraste avec le fait que plus la longueur d'onde augmente, et plus elle se rapproche de la taille des particules et donc plus l'intensité doit augmenter. L'absence de cette tendance dans nos observations pourrait s'expliquer par plusieurs facteurs. En particulier, l'examen par holographie des images a révélé une densité relativement faible de particules sur la lame, avec une distance inter-particulaire moyenne de 366  $\mu\text{m}$ . La diffusion semble très variable en fonction de la particule observée. En présence d'un faible nombre de particules sur la lame, cette variabilité dans la diffusion observée a tendance à être plus marquée, contrairement aux cas où la lame est densément peuplée de particules. Dans de telles situations, l'effet cumulé de la diffusion par de multiples particules tend à homogénéiser cette variabilité, comme illustré par les mesures effectuées sur des poussières du désert du Gobi et du Sahara, où les distances inter-particulaires sont respectivement de 62 et 90  $\mu\text{m}$ , résultant en un signal de diffusion nettement plus stable.

Par ailleurs, notre étude examine également les variations de la fonction de phase en fonction de la longueur d'onde pour d'autres types de poussières désertiques, telles que celles issues des déserts du Gobi et du Sahara, Figure 63 (c) et (e). Nous observons une augmentation de l'intensité relative avec la longueur d'onde, les intensités étant plus faibles dans la gamme 500-600 nm par rapport à des longueurs d'onde plus élevées. Cette caractéristique, observée particulièrement pour les particules présentant une teinte plus jaune que les poussières test d'Arizona, semble corrélée avec la couleur intrinsèque et l'indice de réfraction spectral des particules. En conclusion, cette analyse révèle des nuances importantes dans le comportement de diffusion de différentes particules en fonction de longueur d'onde, mettant en évidence l'impact de la taille et la forme des particules, et leurs propriétés optiques intrinsèques.

Concernant la dépolarisation linéaire, la poussière de test d'Arizona (ATD), comme d'autres particules non sphériques, présente un motif de dépolarisation non uniforme sans symétrie azimutale. L'analyse révèle que le rapport de dépolarisation linéaire  $\delta_L$  tend à augmenter avec la longueur d'onde  $\lambda$ , bien que certaines observations lidar mesurent une diminution de la dépolarisation linéaire lorsque la longueur d'onde augmente vers l'infrarouge (1064 nm) [50], analyse difficilement observable sur notre instrument limité à 800 nm au maximum. On observe aussi que  $\delta_L$  diminue en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  pour  $\lambda = 535$  nm à mesure que  $\theta$  s'approche de  $180^\circ$ , c'est-à-dire la direction exacte de rétrodiffusion Figure 63(b). On constate un  $\delta_L = 31 \pm 3,1\%$  à  $\lambda = 535$  nm pour  $\theta = 180^\circ$  pour l'ATD, valeur qui s'aligne sur celles reportées dans la littérature. Lorsqu'on compare avec d'autres types de poussières, comme celles du Gobi et du Sahara, on observe un comportement de dépolarisation plus erratique en fonction à la fois de  $\theta$  et de  $\lambda$ . Les données indiquent une moyenne de  $\delta_L = 36,1 \pm 2,0\%$  pour la poussière du Gobi et  $\delta_L = 32,6 \pm 8,0\%$  pour la poussière du Sahara à  $\theta = 180^\circ$ . Par rapport à l'ATD, ces poussières montrent une variation plus faible en magnitude de  $\delta_L$ . Cette observation est cohérente avec les caractéristiques morphologiques des particules : l'ATD présente un rapport d'axe plus grand et une taille plus importante que les poussières désertiques, comme le montrent les images obtenues par diffusion d'image holographique (DIH) dans la Figure 63. En outre, la présence accrue de particules dans les échantillons de poussière désertique peut contribuer à un effet moyennisant sur  $\delta_L$ .

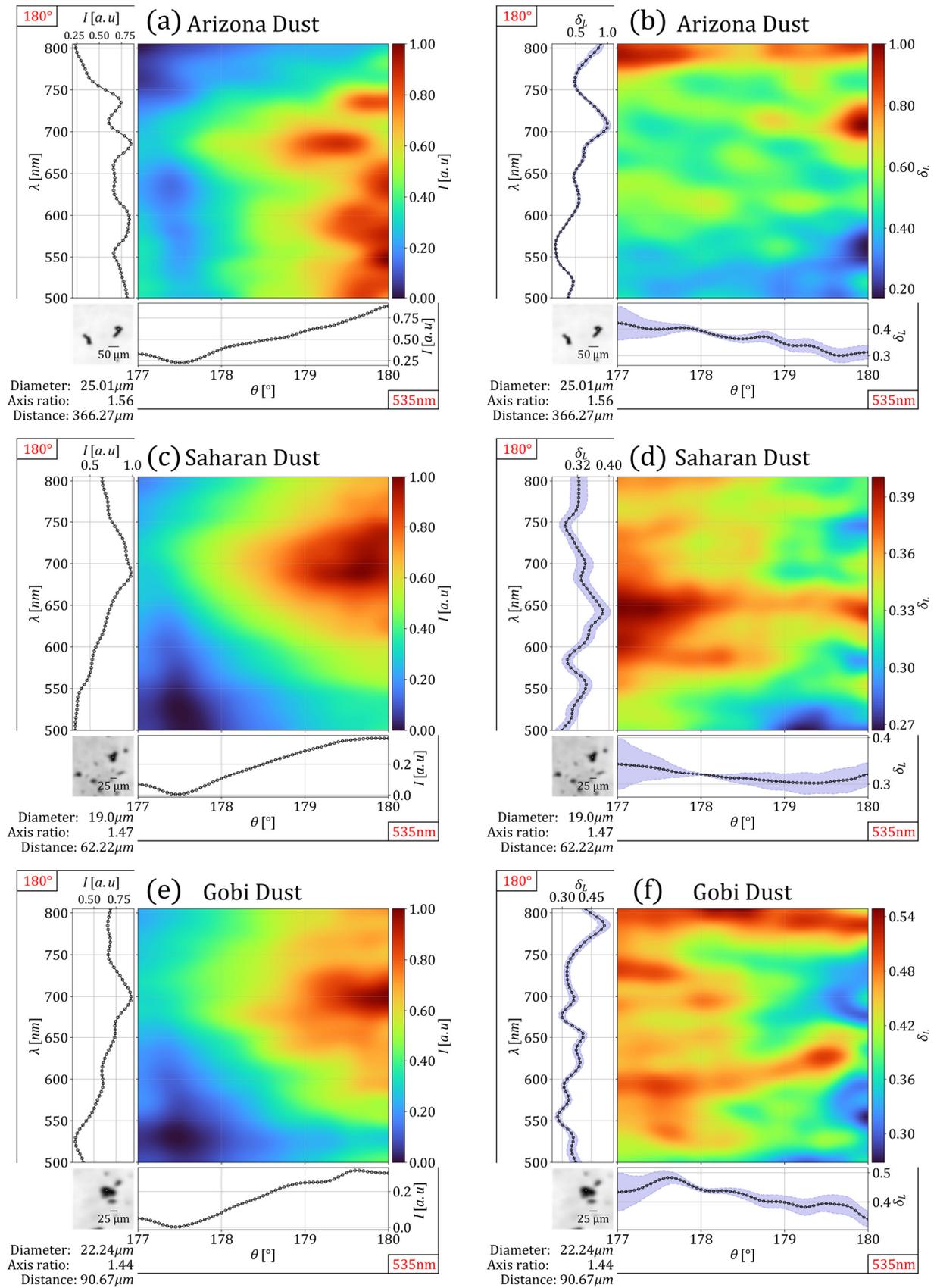


Figure 63 : Intensité de rétrodiffusion (gauche) et Rapport de dépolarisation linéaire  $\delta_L$  (droite) en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour des poussières désertiques. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $\delta_L(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=180^\circ$  soit à  $\lambda=535 \text{ nm}$ .

## 2. Cendres volcaniques

Au sein de ce chapitre axé sur les propriétés radiatives des particules, l'étude est étendue pour inclure les cendres volcaniques, à la suite de l'examen initial des poussières désertiques. L'accent est mis, premièrement, sur l'analyse de l'intensité rétrodiffusée par ces particules volcaniques. Il est remarquable de constater une similitude entre les cendres volcaniques et les poussières désertiques en termes de comportement de la fonction de phase : dans les deux cas, le pic de cette fonction s'élargit avec l'augmentation de la longueur d'onde.

Il est remarquable de noter que l'intensité rétrodiffusée suit des comportements relativement proches pour les différentes cendres volcaniques (Islande et La Palma). On note une rétrodiffusion spectrale relativement plus faible dans le domaine visible (<600 nm) accompagnée d'une augmentation vers le proche infrarouge (>750 nm), Figure 64 (a et c). Cette caractéristique suggère une variation des propriétés radiatives jusqu'au proche infrarouge (>750 nm) Figure 64(a).

En revanche, les deux types de cendres volcaniques présentent des propriétés polarimétriques différentes en fonction de la longueur d'onde. Pour les cendres issues de l'éruption de La Palma, on note une augmentation graduelle de la dépolarisation en fonction de la longueur d'onde. À l'opposé, les cendres provenant d'Islande montrent une tendance à la dépolarisation croissante entre 500 nm et 650 nm, avec un maximum de dépolarisation atteignant 35 % aux environs de 650 nm. Au-delà de 650 nm, une diminution significative de la dépolarisation est observée, aboutissant à une stabilisation de la dépolarisation autour de 20 %.

Plus précisément, Les cendres islandaises présentent une variabilité notable du rapport de dépolarisation en fonction de la longueur d'onde et de l'angle de diffusion, Figure 64(d), avec une moyenne de  $\delta_L = 25,2 \pm 1,4 \%$  à  $\theta = 180^\circ$ . Les particules de cendre islandaise, ayant une taille moyenne de 18  $\mu\text{m}$  et espacées d'environ 60  $\mu\text{m}$  sur la fenêtre d'observation, présentent un rapport d'axe d'environ 1,3, inférieur à celui des poussières désertiques. Cette dépolarisation faible comparée à celle des poussières désertiques peut être attribuée à un degré d'asphéricité plus faible et potentiellement à une plus grande absorption, comme en témoigne la couleur noire des cendres par rapport à la couleur plus jaune ou blanche de la poussière [194].

Pour les cendres de La Palma, dans la Figure 64(b), la dépolarisation se montre nettement plus uniforme en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  et de la longueur d'onde. La dépolarisation moyenne pour les cendres de La Palma est de  $\delta_L = 22,0 \pm 1,4 \%$  à  $\theta = 180^\circ$ . La distribution de taille plus large des particules de cendre de La Palma, indiquant une proportion plus importante de grosses particules, et la quantité accrue de particule sur la lame (distance inter-particulaire de 79  $\mu\text{m}$ ) peut expliquer la dépolarisation plus uniforme de  $\delta_L$  observée. Ces résultats pour les deux types de cendres montrent la possibilité de distinguer les types de particules sur la base de leurs

dépolarisations, suggérant une corrélation entre  $\delta_L$ , le degré de non-sphéricité des particules et leur absorption.

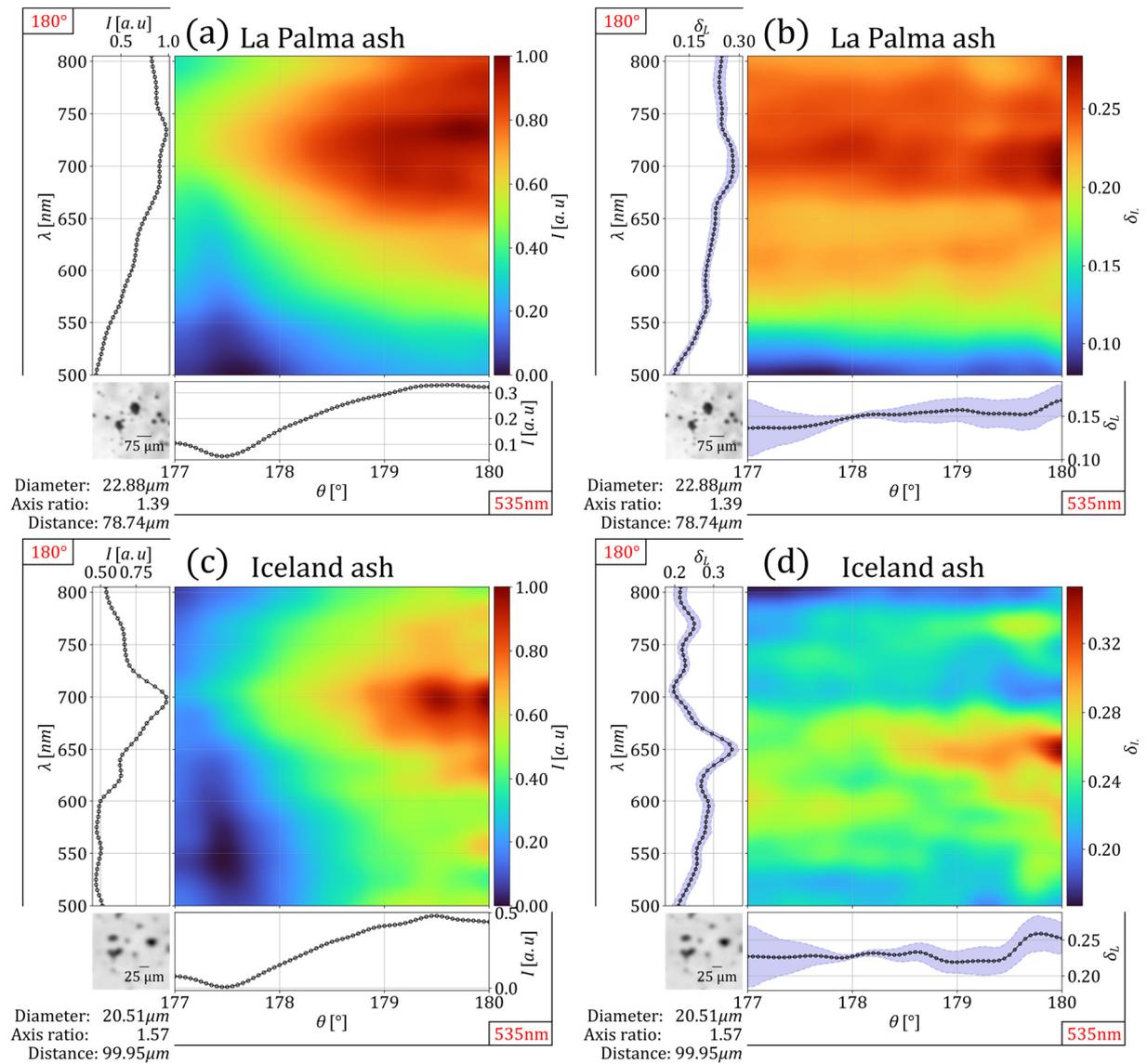


Figure 64 : Intensité rétrodiffusée (gauche) et Rapport de dépolarisation linéaire  $\delta_L$  (droite) en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour les cendres volcaniques de La Palma et celles du volcan Eyjafjallajökull. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $\delta_L(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=180^\circ$  soit à  $\lambda=535 \text{ nm}$ . Une image des particules d'ATD produisant ces données est obtenue par DIH et présentée en incrustation (en bas à gauche) dans le graphique.

### 3. Régolites lunaires

Pour les simulants de régolithe, on va tout d'abord regarder l'intensité normalisée relative à la longueur d'onde, ici, on utilise l'échantillon de simulant JSC-1A. Comme pour les observations réalisées pour les cendres volcaniques, un pic d'intensité est identifié autour de 700 nm, tandis que les valeurs d'intensité dans le spectre visible sont relativement faibles en comparaison des valeurs observées entre 700 et 750 nm. On retrouve une tendance spectrale semblable à celle observée pour les cendres volcaniques. La couleur sombre, noire ou grise, des particules de simulant de régolithe concorde avec cette faible réflectance dans le domaine visible, une caractéristique également en adéquation avec les observations des cendres volcaniques. L'analyse de la diffusion en fonction de l'angle  $\theta$  indique une décroissance plus rapide du pic pour ces simulants, suggérant la présence de particules plus grosses sur la lame de verre, malgré un diamètre moyen de 22,17  $\mu\text{m}$ , comparable à celui mesuré pour d'autres échantillons.

L'intérêt se porte ensuite vers l'étude de la dépolarisation linéaire des simulants de régolithe lunaire. Cette analyse montre que la dépolarisation est relativement stable pour des longueurs d'onde données, sans variations significatives en fonction de l'angle de diffusion. La dépolarisation varie entre 20% et 30% et tend à augmenter avec la longueur d'onde, un comportement équivalent à celui observé pour les cendres volcaniques. Cette stabilité de la valeur de dépolarisation, aux alentours de 25%, pourrait être attribuée à la forte absorption des simulants dans le visible, une hypothèse appuyée par leur composition partiellement basaltique, analogue à celle des cendres volcaniques de San Francisco. Cette similarité renforce l'idée d'une cohérence optique entre les deux types de particules étudiées.

Notamment, le rapport d'axe mesuré pour les simulants de régolithe est de 1.29, légèrement inférieur à celui des cendres volcaniques, bien que les valeurs de dépolarisation soient comparables. Cette observation soulève l'hypothèse d'une différence de composition entre les simulants de régolithe et les cendres volcaniques, malgré leurs propriétés optiques proches. Cette analyse détaillée des propriétés optiques des simulants de régolithe enrichit notre compréhension de leur comportement radiatif, offrant des perspectives pour la modélisation des interactions lumière-particule dans des contextes extraterrestres, et souligne l'importance de considérer à la fois la morphologie et la composition dans l'étude des propriétés optiques des particules.

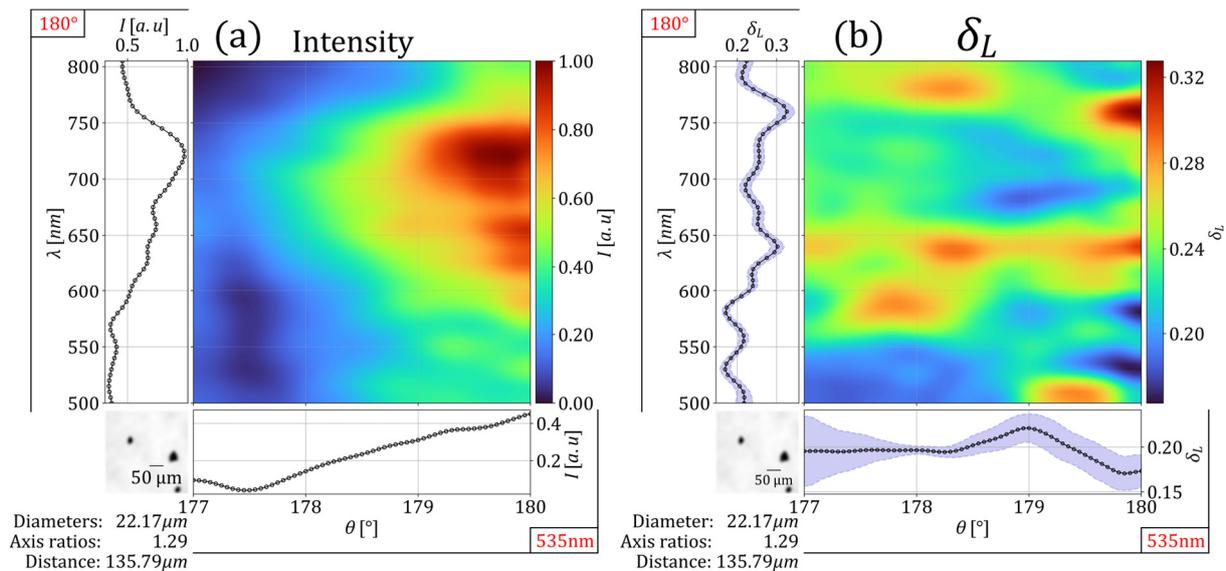


Figure 65 : Intensité rétrodiffusée (gauche) et Rapport de dépolarisation linéaire  $\delta_L$  (droite) en fonction de l'angle de diffusion polaire  $\theta$  (axe horizontal) et de la longueur d'onde  $\lambda$  (axe vertical) pour des régolites lunaires JSC-1A. Les deux courbes de chaque graphique représentent les coupes à travers  $\delta_L(\theta, \lambda)$  soit à  $\theta=180^\circ$  soit à  $\lambda=535$  nm. Une image des particules d'ATD produisant ces données est obtenue par DIH et présentée en incrustation (en bas à gauche) dans le graphique.

## 4. Synthèse

Dans cette section, nous avons procédé à des analyses de l'intensité rétrodiffusée et de la dépolarisation en fonction de l'angle de diffusion et de la longueur d'onde pour divers types de particules, y compris les cendres volcaniques, les poussières désertiques et les régolites. L'examen de la dépolarisation selon la longueur d'onde constitue un paramètre significatif dans le domaine des études lidar avec certaines études visant à diversifier les mesures à travers différentes longueurs d'onde [50]. Nous visons à consolider les informations préalablement présentées à travers un graphique illustrant la dépolarisation rétrodiffusée (intégrée entre  $179^\circ$  et  $180^\circ$ ), Figure 66. Les courbes présentées ici correspondent à la moyenne de plusieurs particules de chaque type, huit pour les ATD et les cendres Islandaise et trois pour les autres. Les résultats montrent une dépolarisation relativement faible pour les cendres volcaniques, avoisinant les 25%, tandis que les poussières désertiques, issues tant du Sahara que du Gobi, présentent une dépolarisation équivalente, aux alentours de 30%. Les poussières désertiques d'Arizona (ATD) montrent le taux de dépolarisation le plus élevé, avec une valeur de 40%. Les données lidar provenant de [50] révèlent un pic de dépolarisation à 532 nm et une diminution vers les longueurs d'ondes plus élevées, ce qui coïncide avec nos observations pour certaines particules, bien que les ATD affichent une augmentation de la dépolarisation aux alentours de 800 nm.

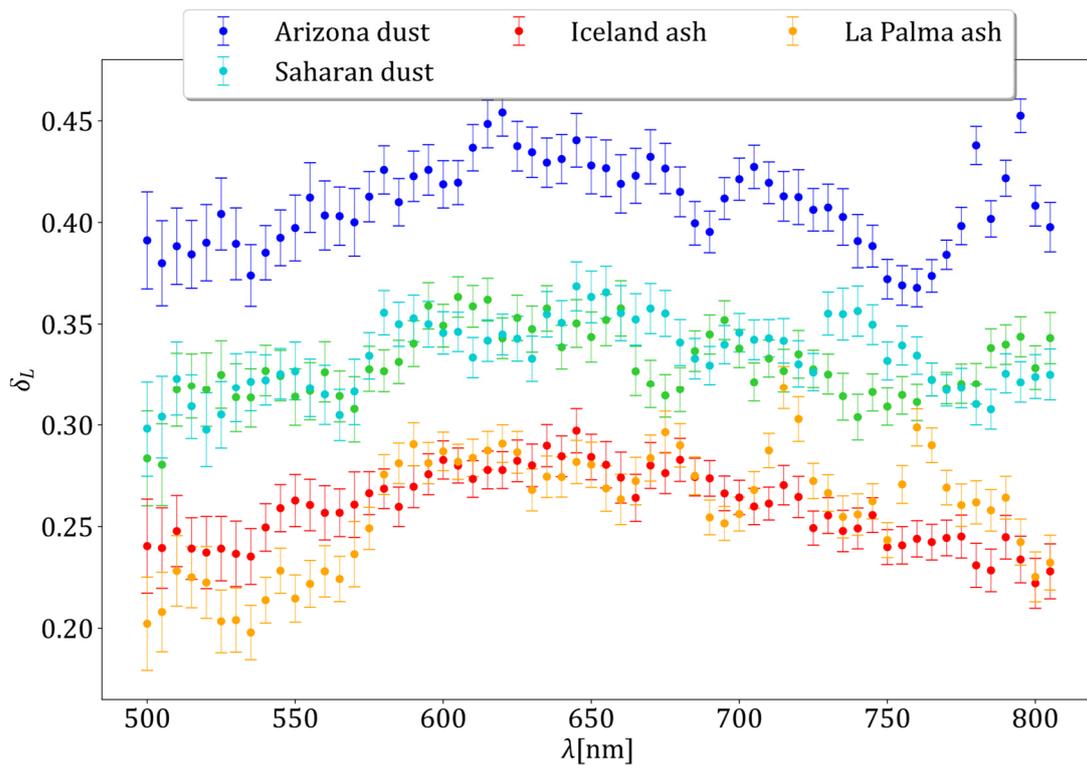


Figure 66 : Dépolarisation linéaire autour de l'angle de rétrodiffusion en fonction de la longueur d'onde pour cinq types de particules différentes. La dépolarisation est calculée autour de l'angle de rétrodiffusion exact moyennée sur la plage d'angle [179°-180°].

Nous proposons ici une synthèse des mesures de dépolarisation spectrale pour l'ensemble des aérosols atmosphériques.

	<b>Diamètre [<math>\mu\text{m}</math>]</b>	<b>Axis Ratio</b>	$\delta_{535\text{nm}/180^\circ}$ [%]	$\langle\delta_{535}\rangle$ [%]	$\langle\delta_{180^\circ}\rangle$ [%]
10 $\mu\text{m}$ Verre	10,32 $\pm$ 2	1,14	4,3 $\pm$ 1,4	35,3 $\pm$ 2,1	5,2 $\pm$ 0,6
Arizona	25,01 $\pm$ 2	1,56	31,2 $\pm$ 3,1	36,5 $\pm$ 2,4	54,1 $\pm$ 3,0
Gobi	22,24 $\pm$ 2	1,57	34,8 $\pm$ 3,4	42,1 $\pm$ 2,5	36,1 $\pm$ 2,0
Sahara	19,0 $\pm$ 2	1,39	31,9 $\pm$ 3,0	31,7 $\pm$ 2,0	32,6 $\pm$ 1,8
Island	20,51 $\pm$ 2	1,44	17,2 $\pm$ 2,3	23,0 $\pm$ 1,7	25,2 $\pm$ 1,4
La Palma	22,88 $\pm$ 2	1,47	16,7 $\pm$ 2,2	15,0 $\pm$ 1,4	22,0 $\pm$ 1,4
Régolithes	22,17 $\pm$ 2	1,28	19,7 $\pm$ 1,5	23,6 $\pm$ 1,6	17,2 $\pm$ 2,3

Tableau 4 : Tableau récapitulatif de diverses valeurs calculées pour différents types de particules. Diamètre et rapport d'axe obtenus par holographie, et le rapport de dépolarisation par des mesures de rétrodiffusion spectro-polarimétrique.  $\delta_{535\text{nm}/180^\circ}$  est le rapport de dépolarisation couramment utilisé en lidar à 532 nm, tandis que  $\langle\delta_{535}\rangle$  et  $\langle\delta_{180^\circ}\rangle$  représentent respectivement le rapport de dépolarisation à 535 nm moyenné sur tous les angles de diffusion et à  $180^\circ$  moyenné sur toutes les longueurs d'onde.

Ces mesures illustrent l'apport de l'instrument SOPHOS pour la caractérisation des paramètres radiatifs spectro-polarimétriques des aérosols mesurés en diffusion avant, rétrodiffusion, et holographie. La diffusion avant nous permet d'avoir des informations qualitatives sur la morphologie des particules, confirmées avec les mesures holographiques, et sur leur dépendance spectrale. La rétrodiffusion, quant à elle, nous permet de faire des mesures utiles pour contraindre les équations lidar lors de mesures sur le terrain. Comme expliqué pour les particules sphériques, la mesure de l'extinction avec l'holographie et la rétrodiffusion peuvent nous permettre de remonter aux paramètres intéressants pour les équations lidar. Tandis que la mesure de dépolarisation donne une information sur la morphologie des particules et leur type. Principalement, lors de mesures lidar, on peut différencier des particules d'eau de particules minérales avec la dépolarisation. Cette mesure, si une base de données est réalisée avec cet instrument, peut permettre de différencier les particules minérales.

#### IV. Lien morphologie/rétrodiffusion

Après une mesure et analyse approfondie des propriétés spectro-polarimétriques en rétrodiffusion des particules, notre attention se tourne vers la corrélation entre ces propriétés radiatives et la morphologie des particules. Il est important de souligner que l'équation lidar est

un exemple de problème inverse complexe où, à partir des données radiatives des aérosols, l'objectif est d'inférer des caractéristiques microphysiques ou morphologiques spécifiques. Établir un lien direct entre ces dimensions faciliterait le processus d'inversion des propriétés radiatives en caractéristiques microphysiques tels que la taille ou le type d'aérosols. Pour examiner ce lien, nous nous focalisons sur la dépolarisation linéaire en fonction de la longueur d'onde, un paramètre radiatif fréquemment mesuré par lidar et précédemment discuté. L'analyse s'étendra également aux deux paramètres morphologiques abordés auparavant : le diamètre équivalent et le rapport d'axe, tous deux déterminés par des mesures holographiques.

Dans le contexte de cette étude, notre objectif principal est d'examiner les caractéristiques et les comportements de deux types spécifiques d'aérosols atmosphériques, à savoir les poussières désertiques d'Arizona (ATD) et les cendres volcaniques émises par le volcan Eyjafjallajökull, que nous désignerons sous le terme de cendres islandaises. Cette focalisation sur deux variétés d'aérosols, choisies pour leur diversité d'origine, offre l'opportunité de mener une comparaison détaillée de leurs effets sur les propriétés de dépolarisation de la lumière. La limitation de notre étude à ces deux types d'aérosols est dictée par la complexité et la durée requise pour les mesures de dépolarisation, nous contraignant ainsi à optimiser notre protocole expérimental pour un ensemble restreint de huit mesures par type d'aérosol. Cette approche méthodique nous permet d'investiguer de manière ciblée l'influence de la morphologie particulaire et de la longueur d'onde sur le phénomène de dépolarisation. En aucun cas, notre étude a pour ambition d'apporter une caractérisation exhaustive de ces aérosols, mais plutôt de proposer une méthodologie originale liant les mesures radiatives par diffusion avec la mesure des propriétés microphysiques par holographie.

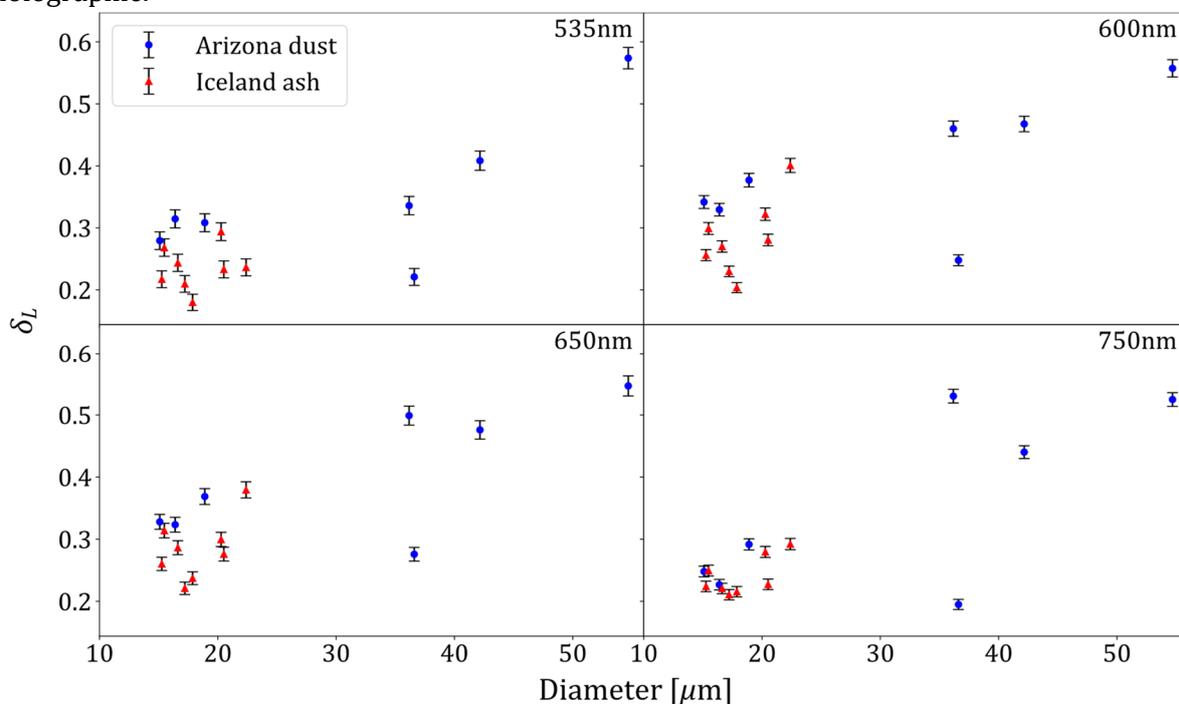


Figure 67 : Variation de la dépolarisation linéaire (domaine angulaire : [179°-180°]) en fonction du diamètre des particules pour deux types d'aérosols : les poussières désertiques d'Arizona (ATD) en bleu et les cendres volcaniques islandaises en rouge. Les données sont présentées pour quatre longueurs d'onde distinctes : 535 nm, 600 nm, 650 nm, et 750 nm, permettant d'observer les différences de comportement de dépolarisation entre ces deux catégories d'aérosols à travers le spectre lumineux.

## 1. Analyse en fonction de la taille

Notre démarche analytique débute par l'examen de la relation entre la dépolarisation linéaire et le diamètre des particules. Nous avons prévu de représenter cette relation à travers quatre graphiques distincts en Figure 67, chacun correspondant à une longueur d'onde spécifique, choisie parmi les valeurs suivantes : 535 nm, 600 nm, 650 nm et 750 nm. Cette analyse préliminaire vise à visualiser l'impact potentiel des caractéristiques morphologiques des particules sur leur capacité à dépolariser la lumière en fonction de la longueur d'onde. Il convient de noter que cette étape est préliminaire et notre intention d'explorer la variabilité de la dépolarisation en fonction de la longueur d'onde se fera ultérieurement.

L'observation des particules de poussière d'Arizona révèle une tendance à l'augmentation de la dépolarisation en fonction de l'accroissement du diamètre des particules. Cette tendance est toutefois nuancée par le comportement de certaines particules, en particulier celles ayant un diamètre compris entre 35 et 40 micromètres, qui montrent une dépolarisation très élevée (environ 50%) à travers toutes les longueurs d'onde étudiées. Bien que ces observations ne permettent pas d'établir une corrélation définitive entre le diamètre des particules et la dépolarisation, elles sont une première indication qualitative. En comparaison, l'analyse des cendres volcaniques révèle une distribution de taille centrée autour de 20 micromètres, sans corrélation apparente avec le diamètre des particules. Cette distribution limitée en taille, mise en évidence par nos analyses holographiques, suggère une prédominance de particules inférieure à vingt micromètres, avec une présence marginale de particules de plus grande taille, restreignant ainsi la possibilité d'évaluer l'impact de particules plus volumineuses sur la dépolarisation. Nos résultats montrent la même tendance quelle que soit la longueur d'onde.

On observe une absence de corrélation sur toutes les particules, peu importe la longueur d'onde considérée. En effet, l'évolution de la longueur d'onde ne semble pas influencer de manière significative la répartition de la dépolarisation en fonction du diamètre. En conclusion, notre étude soulève une corrélation modeste pour les ATD, sans toutefois permettre de déterminer de manière définitive l'effet du diamètre des particules sur la dépolarisation. Il est plausible de considérer que l'augmentation observée de la dépolarisation en fonction du diamètre pourrait être liée à une variation du rapport d'aspect des particules de plus grand diamètre, qui tendent à adopter une forme moins sphérique, influençant ainsi leur comportement en matière de dépolarisation. Cette hypothèse nécessite des investigations supplémentaires pour être pleinement validée.

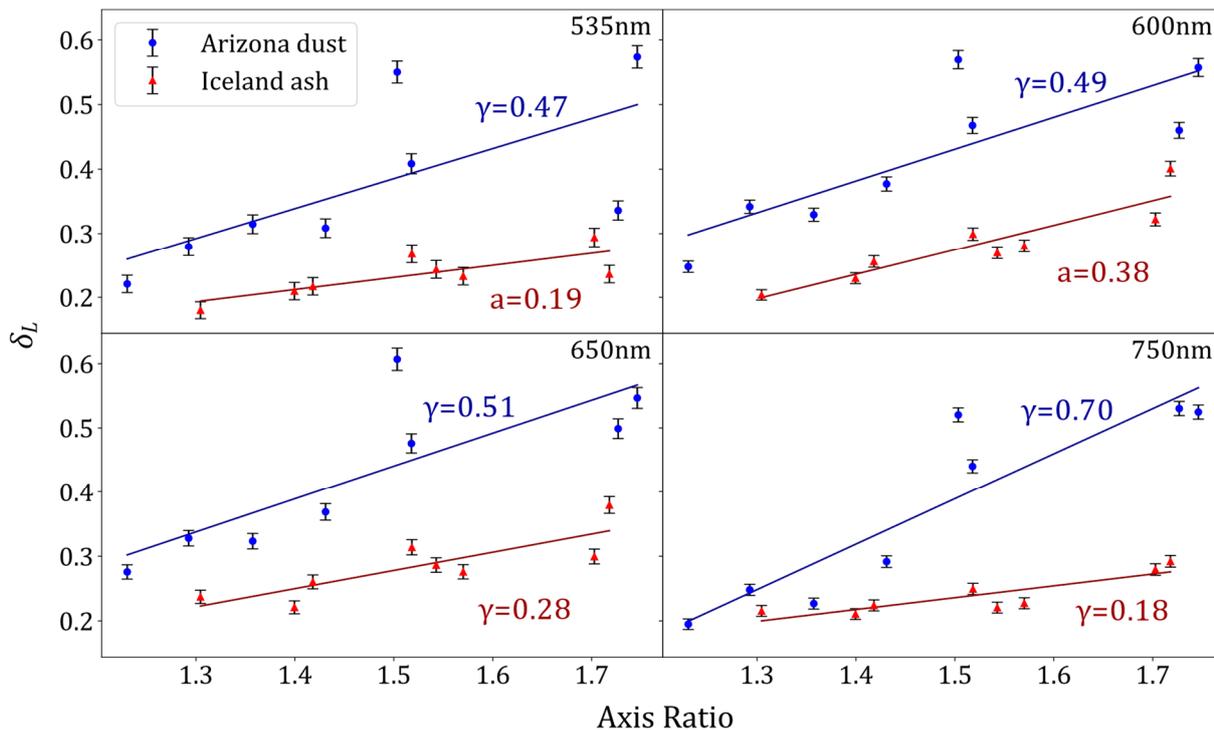


Figure 68 : Dépolarisation linéaire (domaine angulaire : [179°-180°]) en fonction du rapport d'axe pour les poussières désertiques d'Arizona (ATD) et les cendres volcaniques islandaises, illustrées respectivement en bleu et en rouge. Les données couvrent quatre longueurs d'onde : 535 nm, 600 nm, 650 nm, et 750 nm, mettant en évidence la variation de la dépolarisation en relation avec le rapport d'axe des particules. Pour chaque groupe de données correspondant à un type de particule et à une longueur d'onde, une régression linéaire a été effectuée, et les pentes ( $\gamma$ ) associées sont indiqués sur le graphique.

## 2. Analyse en fonction du rapport d'aspect

Poursuivant notre exploration des propriétés de dépolarisation des aérosols, la relation entre la dépolarisation et le rapport d'axe des particules est analysée ici. Cette dimension de l'étude s'inscrit dans le prolongement de travaux de modélisation, tels que ceux menés à l'aide de simulations T-matrix [195], qui ont révélé une augmentation de la dépolarisation linéaire en fonction du rapport d'axe jusqu'à un seuil d'environ 1.7. Cette observation suggère que le rapport d'axe des particules joue un rôle prépondérant dans la compréhension de la dépolarisation des particules, un aspect que nous cherchons à confirmer et à préciser.

Pour les ATD, nos données confirment effectivement une augmentation de la dépolarisation en fonction du rapport d'axe, révélant une corrélation directe avec le diamètre des particules. Cette tendance renforce l'hypothèse selon laquelle le rapport d'axe, plutôt que le diamètre seul, est un déterminant clé de la dépolarisation, comme représenté en Figure 68. Pour les cendres volcaniques, nos mesures révèlent une corrélation similaire entre la dépolarisation et le rapport d'axe. Il est à noter que, de manière générale, les ATD présentent une dépolarisation supérieure à celle des cendres volcaniques. Pour quantifier ces observations, nous avons proposé une modélisation simple par régression linéaire pour chaque ensemble de données correspondant aux quatre longueurs d'onde étudiées, pour les deux types de particules. Par la suite, nous définirons le paramètre  $\gamma(\lambda)$ , comme la pente de la dépolarisation linéaire sur le rapport d'axes, Figure 68.

Ce paramètre va nous permettre, ultérieurement, de suivre l'évolution de la dépolarisation selon la morphologie pour toutes les longueurs d'ondes étudiées.

Nos analyses révèlent que les ATD tendent à présenter un paramètre  $\gamma$  plus élevé dans la relation entre la dépolarisation et le rapport d'axe, indiquant une augmentation plus rapide de la dépolarisation avec ce dernier. Les cendres volcaniques, quant à elles, montrent une variabilité moins importante en fonction de la longueur d'onde, avec des données plus proches de la courbe de régression linéaire et un coefficient de détermination ( $R^2$ ) généralement supérieur, signifiant que les cendres ont tendance à progresser de manière plus linéaire que les ATD en fonction du rapport d'axe. Il est également pertinent de souligner que les rapports d'axe mesurés dans notre étude ne dépassent pas le seuil de 1,7, ce qui soulève des considérations importantes pour la comparaison de nos résultats avec ceux de la littérature, dont les simulations T-matrix présentées précédemment.

Il convient de noter que, bien que la dépolarisation observée pour les ATD puisse paraître élevée par rapport à certaines mesures lidar atmosphériques, ces comparaisons doivent être abordées avec prudence. En effet, les particules étudiées avec notre dispositif expérimental sont généralement plus grandes que celles observées par lidar. En effet, la granulométrie des aérosols est fortement dépendante de leur transport, entre la source d'émission et le site d'observation. Également, il est à noter que l'hygroscopie des aérosols peut avoir un impact important sur leurs propriétés radiatives spectro-polarimétriques [196–198], telles que la dépolarisation. Cet aspect n'a pas été abordé dans le cadre de ces travaux.

### **3. Analyse spectrale de la dépolarisation**

Nous proposons d'investiguer l'impact de la longueur sur la dépolarisation spectrale. En représentant le paramètre  $\gamma(\lambda)$ , la pente de la régression linéaire en fonction de la longueur d'onde, pour les deux types de particules, nous proposons de déterminer si cette corrélation persiste uniformément à travers l'ensemble des longueurs d'onde. Une telle observation permettrait non seulement de valider la cohérence de nos données, mais également d'affiner notre compréhension des mécanismes régissant la dépolarisation des aérosols, offrant ainsi de nouvelles perspectives pour la discrimination des différents types de particules sur la base de leur comportement en matière de dépolarisation en fonction du rapport d'axe.

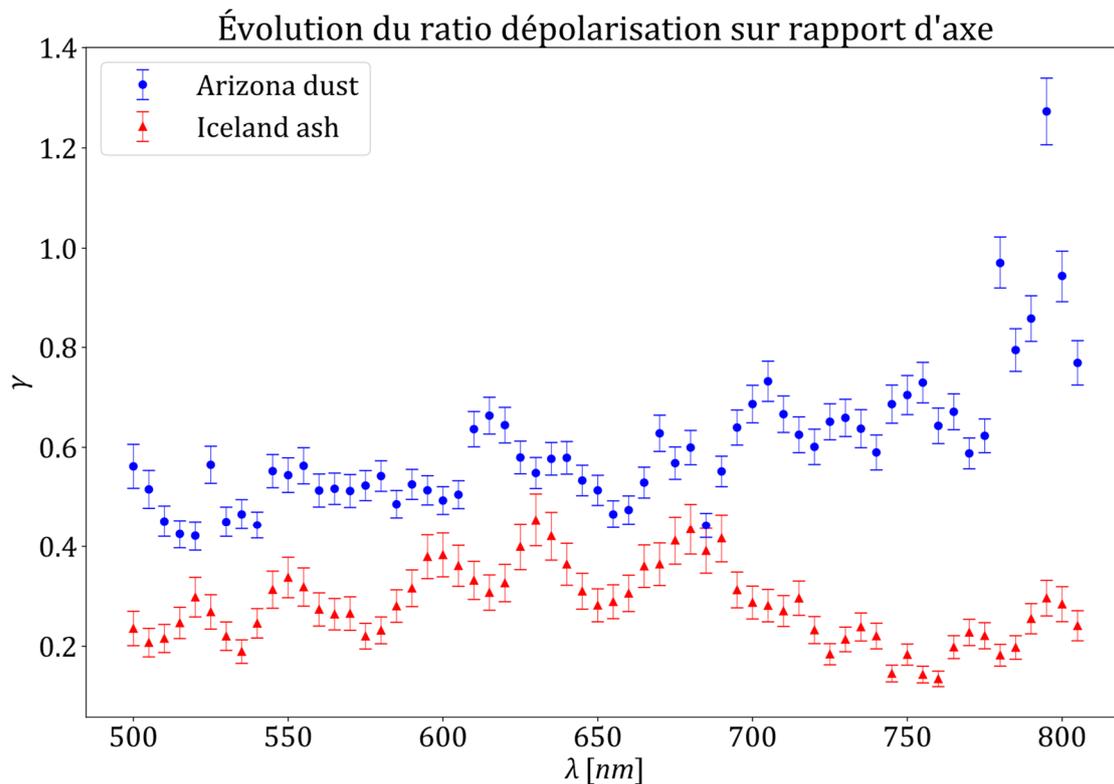


Figure 69 : Évolution de la pente de la régression linéaire relative à la dépolarisation en fonction de la longueur d'onde pour les poussières désertiques d'Arizona (ATD), représentées en bleu, et pour les cendres volcaniques islandaises, en rouge.

La Figure 69 présente les résultats sur l'analyse spectrale du paramètre  $\gamma$ , soit l'influence de la longueur d'onde sur la dépolarisation des poussières désertiques d'Arizona (ATD) et les cendres volcaniques. Cette analyse rapporte une différence comportementale significative entre ces deux catégories d'aérosols en fonction de leur rapport d'axe et de la longueur d'onde. Pour les ATD, l'analyse révèle un paramètre gamma variant entre 0,5 et 0,6 par unité de rapport d'axe, démontrant une stabilité remarquable dans l'intervalle de longueurs d'onde s'étendant de 500 à 700 nm. Au-delà de ce seuil, spécifiquement entre 700 et 800 nm, une augmentation de gamma jusqu'à 0,8 est observée. Cette tendance indique clairement que la longueur d'onde influence significativement la dépolarisation pour les ATD, en particulier vers le domaine infrarouge. En contraste, les cendres volcaniques présentent un paramètre gamma quasi constant dans le domaine visible, avoisinant les 0,3. Dans le domaine infrarouge, contrairement aux particules ATD, on peut noter une diminution du paramètre gamma. Ces observations mettent en évidence une variabilité spectrale différente du paramètre gamma en fonction du type d'aérosols, en particulier dans le domaine infrarouge. L'écart entre les valeurs de pente des ATD et des cendres volcaniques suggère que la dépolarisation plus élevée observée pour les ATD pourrait ne pas être uniquement attribuable à des facteurs morphologiques, mais également à des variations de composition chimique entre les particules, et donc d'indice de réfraction complexe. En effet, les différences d'absorption lumineuse entre les types d'aérosols, connues pour influencer la dépolarisation, pourraient jouer un rôle significatif dans ces divergences observées [194].

Ces premiers résultats devront être consolidés avec un plus grand nombre représentatif d'échantillons. Il convient de noter que la limitation dans le nombre de points de mesure,

notamment le fait que seulement deux points pour les ATD présentent un rapport d'axe supérieur à 1.7 avec une dépolarisation remarquable de 50%, peut introduire un biais dans l'interprétation de la pente. Ces points, en raison de leur forte influence, pourraient artificiellement accentuer la pente observée pour les ATD par rapport aux cendres volcaniques. Afin de confirmer avec précision la tendance mise en évidence entre les deux types de particules, il est préconisé d'augmenter le nombre de mesures, particulièrement pour les échantillons présentant un fort rapport d'axe, pour renforcer la fiabilité de ces observations et d'affiner notre compréhension des mécanismes sous-jacents influençant la dépolarisation des aérosols.

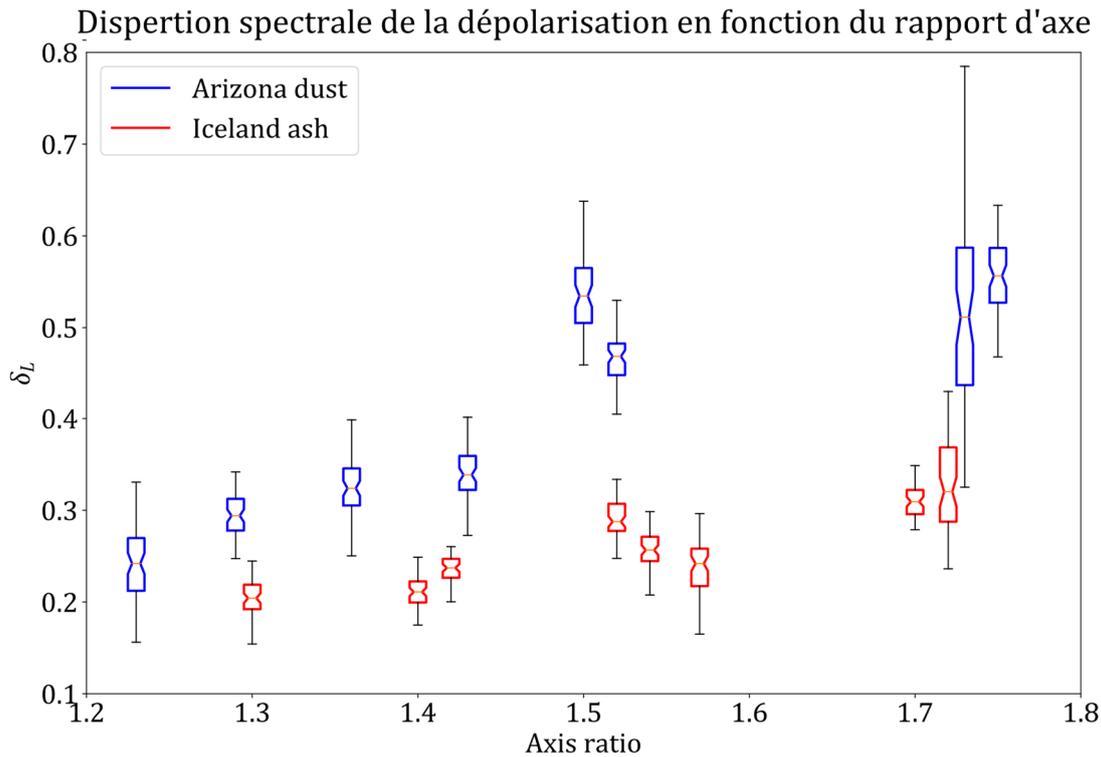


Figure 70 : Répartition spectrale de la dépolarisation linéaire en fonction du rapport d'axe des particules, présentée sous forme de diagrammes en boîte pour les poussières désertiques d'Arizona (ATD), en bleu, et pour les cendres volcaniques islandaises, en rouge. Chaque rectangle, rouge ou bleu, illustre l'étendue interquartile de la distribution de la dépolarisation, tandis que la barre orange horizontale indique la médiane de cette distribution. Ce type de visualisation met en exergue la variabilité de la dépolarisation en fonction du rapport d'axe pour chaque catégorie d'aérosols, fournissant une indication claire des tendances centrales et de la dispersion des données.

On se propose maintenant d'étudier la dispersion spectrale, c'est-à-dire l'étendue de la dépolarisation selon la longueur d'onde pour une particule, représentée par l'écart type ou l'intervalle interquartile de la dépolarisation sur l'ensemble des longueurs d'onde. Cette dispersion spectrale de la dépolarisation constitue une dimension originale de notre étude sur les aérosols, en l'occurrence les poussières désertiques d'Arizona (ATD) et les cendres volcaniques. La mise en œuvre de cette analyse repose sur l'utilisation de « box plots » ou diagrammes en boîte, un outil graphique efficace pour représenter les distributions statistiques de la dépolarisation à travers la gamme de longueurs d'onde étudiées. La procédure d'analyse débute par l'estimation des grandeurs statistiques clés de la dépolarisation pour chaque type de particules en fonction de la longueur d'onde, à savoir le premier et le troisième quartile, ainsi que la médiane. La médiane,

positionnée au sein du rectangle du diagramme en boîte, est distinguée par une barre orange dotée d'une encoche pour en faciliter l'identification visuelle. Le rectangle qui délimite le premier et le troisième quartile illustre la distribution interquartile de la dépolarisation, tandis que les moustaches s'étendant au-delà des quartiles indiquent l'étendue des données en dehors de cette distribution centrale, calculées comme  $Q1-1.5IQR$  (où  $IQR$  est l'intervalle interquartile) et  $Q3+1.5IQR$ , respectivement.

Sur la Figure 70, les données relatives aux ATD sont colorées en bleu, tandis que celles des cendres volcaniques sont en rouge. Les observations pour les ATD révèlent une tendance générale à l'augmentation de la dépolarisation avec le rapport d'axe. Pour les ATD, les mesures montrent une différence interquartile moyenne de 0.059 et un écart type de 0.045. Concernant les cendres volcaniques, une forte variabilité est également observée pour les particules les plus allongées, pour toutes les particules, on observe une valeur interquartile moyenne de 0.034 et un écart type de 0.024. Cette comparaison met en exergue une variabilité plus importante des ATD par rapport aux cendres volcaniques. Toutefois, il convient de souligner que le nombre limité de points de mesure pose des défis quant à l'établissement de conclusions définitives concernant ces tendances de variabilité. Bien que certaines mesures pour les ATD affichent une variabilité réduite, en moyenne, la variabilité reste supérieure à celle observée pour les cendres volcaniques. Afin de corroborer ces observations préliminaires et d'identifier des différences significatives entre ces deux types de particules, une augmentation du nombre de points de mesure est préconisée pour de futurs travaux. L'examen de cette variabilité spectrale offre une perspective prometteuse pour la discrimination spectrale des différents types de particules d'aérosols. Si les tendances observées se confirment avec un ensemble de données plus large et plus représentatif, cette approche pourrait s'avérer être un outil efficace pour différencier les types d'aérosols sur la base de leur comportement de dépolarisation à travers le spectre des longueurs d'onde.

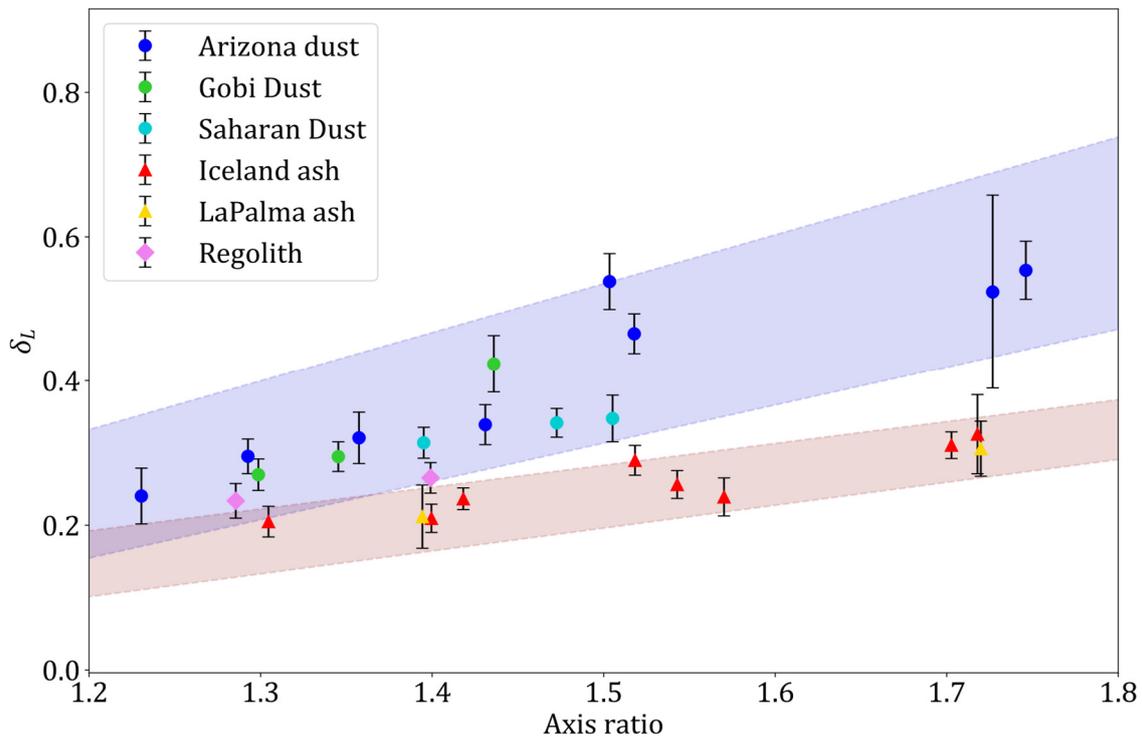


Figure 71 : Dépolarisation linéaire (domaine angulaire :  $[179^\circ-180^\circ]$ ) en rapport avec le rapport d'axe pour un ensemble diversifié de particules, avec trois types de poussières désertiques (les ATD, celles du désert de Gobi et du Sahara) et deux types de cendres volcaniques (cendres islandaises et cendres de La Palma), ainsi que des simulants de régolithes lunaires. Les régions de dépolarisation pour les poussières désertiques et les cendres volcaniques sont respectivement représentées en bleu et en rouge.

L'extension de notre étude sur la dépolarisation à d'autres types de particules, telles que les poussières désertiques du désert de Gobi et du Sahara, les cendres volcaniques du volcan de La Palma, ainsi que les régolithes lunaires, enrichit notre compréhension des propriétés de dépolarisation de divers aérosols. Pour faciliter la visualisation et l'analyse, nous avons opté pour une approche simplifiée, consistant à représenter la dépolarisation en fonction du rapport d'axe en calculant une moyenne sur toutes les longueurs d'onde étudiées, Figure 71. La barre d'erreur associée à chaque point prend en compte la variabilité spectrale et représente seulement l'écart type de la distribution spectrale. En intégrant les données préalablement recueillies pour les ATD et les cendres volcaniques islandaises, et en y ajoutant les mesures relatives aux particules mentionnées ci-dessus, nous obtenons une visualisation globale de la dépolarisation pour ces différents types d'aérosols. Cette démarche nous permet de constater que les points correspondant aux poussières désertiques de Gobi et du Sahara se positionnent sur la même courbe que celle définie par les ATD. De manière similaire, les cendres de La Palma suivent la courbe établie par les cendres volcaniques islandaises. Cette observation renforce l'idée que la dépolarisation des aérosols est fortement influencée par leurs propriétés chimiques et morphologiques, ce qui explique la similarité des comportements de dépolarisation entre particules aux caractéristiques chimiques proches. Les régolithes lunaires semblent partager un comportement assez proche, bien que légèrement supérieure en termes de dépolarisation. Cela s'explique, car ces simulants de régolithes partageant certaines propriétés avec les cendres volcaniques, les régolithes lunaires ne suivent pas la même courbe de dépolarisation que ces

dernières. Il est important de noter que, pour les régolithes lunaires, le nombre limité de points de mesure (deux) constitue une contrainte à une analyse complète et robuste de leurs propriétés de dépolarisation.

L'analyse comparative des différents types de particules offre des perspectives prometteuses pour l'amélioration de notre compréhension des processus atmosphériques et la détection des aérosols à partir de mesures de dépolarisation. Afin de tirer des conclusions définitives sur le comportement des régolithes lunaires et d'autres particules, il est nécessaire d'augmenter le nombre de mesures, et de fournir une analyse statistique plus solide et une meilleure compréhension des mécanismes régissant la dépolarisation des aérosols. L'objectif de ce chapitre étant en priorité de proposer une méthodologie de caractérisation et d'analyse des propriétés spectro-polarimétriques des aérosols.

## V. Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous avons accompli une étude approfondie visant à améliorer la compréhension des aérosols et de leurs interactions avec la lumière en fonction de la longueur d'onde et de la polarisation. Plusieurs catégories d'aérosols atmosphériques ont été étudiés tels que les poussières désertiques, les cendres volcaniques, ainsi que des simulants de régolithes lunaires.

Notre analyse est fondée sur le couplage de l'information en diffusion spectro-polarimétrique et de la mesure par holographie numérique afin de caractériser les propriétés microphysiques des particules telles que leur diamètre ou leur rapport d'aspect. L'analyse a débuté par une évaluation de la diffusion avant, révélant l'influence significative de l'asphéricité sur la fonction de phase et son évolution en fonction de la longueur d'onde. À cette fin, nous avons adapté notre instrument pour développer une méthode de visualisation en trois couleurs permettant d'observer les variations de diffusion selon la longueur d'onde. En rétrodiffusion, l'étude spectro-polarimétrique des particules a révélé plusieurs conclusions :

- Le diamètre ne semble pas avoir d'impact notable sur la dépolarisation, contrairement au rapport d'axe qui affiche une dépolarisation plus élevée pour les particules les plus allongées.
- La poussière désertique paraît dépolariser plus que les cendres volcaniques et l'augmentation de la dépolarisation en fonction du rapport d'axes est plus forte pour les poussières désertiques.
- Les poussières désertiques ont une dispersion spectrale de la dépolarisation plus élevée que les cendres volcaniques
- Tous les types de poussières désertiques se trouvent sur un même axe de dépolarisation en fonction du rapport d'axe, il en est de même pour les cendres volcaniques.

Une distinction notable entre les poussières désertiques et les cendres volcaniques, ces dernières tendant à présenter une moindre dépolarisation. Cette analyse sur les ATD et les cendres volcaniques a permis de mettre en lumière différentes propriétés spectro-polarimétriques liées tant à la morphologie qu'aux propriétés chimiques des particules. Ces résultats ont démontré l'originalité et l'apport du couplage entre la technique d'holographie numérique et les mesures de diffusion spectro-polarimétriques. La méthodologie permet d'enrichir notre compréhension de leurs propriétés radiatives et encourage sa poursuite vers une étude plus exhaustive et statistiquement représentative, en vue d'application dans le domaine des lidars à rétrodiffusion élastique.



## Conclusion générale

---

L'objectif de cette thèse était de concevoir et de développer un instrument de mesure innovant, capable de réaliser des analyses couplant les techniques de diffusion de la lumière spectro-polarimétrique et d'holographie numérique dans le contexte de la mesure lidar aérosol ou à rétrodiffusion élastique. Cet objectif englobait la capacité de mesurer des paramètres essentiels pour les applications lidar, en particulier la rétrodiffusion des aérosols.

Les ambitions de ces travaux se décomposent en deux sous-objectifs :

- i. La conception et la mise au point d'un instrument de mesure multifonctionnel, intégrant des dispositions spectro-polarimétriques et holographiques, pour fournir des données radiatives des aérosols en lien avec leurs propriétés microphysiques. Une phase de calibration et de vérification a été conduite et développée dans le Chapitre 2 pour évaluer les performances de l'instrument et assurer la fiabilité des mesures obtenues.
- ii. La proposition d'une analyse originale fondée sur les mesures sur des aérosols atmosphériques, non sphériques, tels que les poussières ou les cendres volcaniques. La motivation de cette analyse était de pouvoir établir un lien entre les caractéristiques microphysiques des aérosols (ex. taille, forme) et leurs propriétés radiatives.

Une analyse approfondie de l'état de l'art a été entreprise dans le Chapitre 1. L'objectif était double : d'une part, identifier et comprendre les instruments dédiés à la mesure de la diffusion de la lumière par les particules dans divers contextes ; d'autre part, discerner précisément quels étaient les composants fondamentaux constituant de tels instruments. Cette démarche préliminaire nous a permis d'appréhender le principe de fonctionnement des dispositifs existants dédiés à l'analyse de la diffusion de la lumière. À partir de cet état de l'art, nous avons pu sélectionner les éléments constitutifs de notre instrument de mesure, adapté à nos besoins spécifiques en lien avec la mesure lidar aérosol.

L'architecture de l'instrument a été décrite dans le Chapitre 2. Notre choix s'est porté sur une source lumineuse de type supercontinuum, caractérisée par un spectre lumineux large et continu couvrant le domaine visible et proche infra-rouge. Cette source a été filtrée à l'aide d'un système de sélection spectrale combinant des filtres passe-haut et passe-bas pour une précision spectrale accrue. Le capteur sélectionné pour notre étude est un modèle sCMOS hautement sensible, capable de réaliser des mesures bidimensionnelles de la diffusion de la lumière. Quant à la méthode d'échantillonnage retenue, elle repose sur le dépôt des particules sur une lame de verre. Bien que cette approche ne soit pas la plus adaptée pour la mesure d'aérosols, elle présente l'avantage de permettre des mesures sur des durées prolongées sans que les particules ne se déplacent, garantissant ainsi la fiabilité et la reproductibilité des mesures. Parallèlement, une technique d'imagerie par holographie a été spécifiquement développée pour ce projet. L'architecture de l'instrument conçu pour cette étude repose sur trois axes de mesure principaux : une voie dédiée à la mesure de la diffusion avant, une deuxième à la rétrodiffusion, et une troisième axée sur l'holographie. La première voie est dotée d'un système de miroirs paraboliques avec un perçage central, conçu pour éliminer la lumière transmise directement par le faisceau incident, facilitant ainsi des mesures précises à deux angles de diffusion distincts à l'aide d'une caméra CMOS. La voie de rétrodiffusion, quant à elle, intègre un beam splitter choisi pour sa stabilité spectrale en termes de réflectance. Les mesures sont également réalisées en 2D, à l'aide d'un capteur CMOS associé à une lentille achromatique. La source lumineuse pour cette voie demeure un supercontinuum, filtré par le système « bebop ». Enfin, la voie holographique représente la voie centrale de notre dispositif. Elle utilise une source laser à 532 nm pour générer un large faisceau, permettant de mesurer l'interférence entre la lumière diffusée et la partie transmise du faisceau. Un algorithme a été mis au point pour la reconstruction et l'analyse détaillée, tant morphologique que granulométrique, des particules. Les premiers tests réalisés ont confirmé la fiabilité et la précision des mesures de diffusion en avant et en rétrodiffusion sur des particules sphériques, en accord avec les prédictions théoriques issues de la théorie de Mie.

Une méthode originale a été proposée au Chapitre 3 pour coupler les propriétés radiatives des aérosols analysés et les caractéristiques morphologiques des particules. Une fois testé et validée sur des particules sphériques, la méthode a été étendue à des particules non sphériques, telles que des poussières désertiques, des cendres volcaniques, ou des simulants de régolithes lunaires, révélant des aspects uniques de la mesure spectro-polarimétrique de ces particules, notamment pour la dépolarisation en fonction de la longueur d'onde et de l'angle de diffusion. Des analyses complémentaires ont permis d'établir une corrélation entre la dépolarisation observée et la morphologie des particules, en particulier pour les poussières désertiques et les cendres

volcaniques. Il a été observé comment la dépolarisation augmentait avec le rapport d'axe des particules, une tendance plus marquée avec les poussières désertiques, suggérant ainsi une influence significative de la composition chimique sur le phénomène de dépolarisation. Par contraste, les cendres volcaniques ont montré une variabilité spectrale de la dépolarisation moins prononcée, offrant donc une piste prometteuse pour l'identification spécifique de certains types de particules. Ce lien entre dépolarisation et rapport d'axe, souvent considéré comme implicite, a été pour la première fois quantifié sur plusieurs particules en fonction de la longueur d'onde.

Les résultats obtenus à l'issue de cette thèse indiquent que les objectifs fixés ont été atteints. L'instrument de mesure est pleinement opérationnel, offrant la possibilité d'effectuer des mesures détaillées des propriétés radiatives des aérosols, tant en diffusion avant qu'en rétrodiffusion. De plus, l'appareil est capable de caractériser la morphologie des particules, incluant leur diamètre et leur rapport d'axe ou rapport d'aspect. Bien que les travaux de cette thèse soient centrés sur la mesure spectro-polarimétrique des paramètres radiatifs des aérosols, l'instrument est conçu pour explorer d'autres propriétés lors d'études futures, telles que la rétrodiffusion des surfaces par exemple.

En résumé, l'instrument développé offre une nouvelle plateforme versatile pour mesurer les fonctions de phase en diffusion avant et en rétrodiffusion sur un large domaine spectral, ainsi que pour déterminer les caractéristiques morphologiques des aérosols. Il permet également d'en déduire des mesures de dépolarisation en rétrodiffusion, essentielles pour l'exploitation et l'inversion des données lidar aérosol à rétrodiffusion élastique. À terme, cet instrument devrait permettre de déterminer de manière précise les paramètres radiatifs critiques pour les applications lidar, tels que l'extinction, mesurée par holographie, et le coefficient de rétrodiffusion, ouvrant ainsi la voie à une meilleure compréhension des aérosols atmosphériques et à l'amélioration des modèles climatiques.

## VI. Perspectives

Dans cette section, nous aborderons plusieurs perspectives d'améliorations en cours ou qui sont encore en conceptualisation. Nous commencerons par discuter des optimisations envisagées pour les voies de mesure, pour ensuite explorer un projet plus applicatif et réalisé en parallèle à la thèse. Ce projet porte le développement d'un instrument de mesure portable fondé sur la technique d'holographie pour déterminer des paramètres morphologiques des aérosols en circulation dans un environnement spécifique.

### 1. Instrument de laboratoire SOPHOS

Pour la voie de diffusion avant, une amélioration significative serait d'intégrer une méthode de sélection spectrale utilisant un filtre spectral de type « bebop », comme évoqué dans le chapitre 2. L'utilisation actuelle d'un monochromateur entraîne une réduction excessive de la puissance lumineuse et affecte la qualité du faisceau d'illumination. Concernant la voie de rétrodiffusion, l'utilisation de polariseurs linéaires a été identifiée comme une approche partiellement satisfaisante. Cette méthode, bien que fonctionnelle, ne permet pas de prendre en compte les changements de polarisation de linéaire à circulaire, ce qui affecte les éléments finaux de la matrice de Mueller. La capacité à mesurer ces éléments pourrait non seulement renforcer la robustesse de la calibration, mais également fournir une analyse plus détaillée de la matrice de Mueller des particules, offrant ainsi une perspective plus riche sur leurs propriétés radiatives. Comme mentionné précédemment, cette approche nécessiterait l'utilisation de lames quart d'onde spécifiques. Cependant, ces lames dépendent fortement de la longueur d'onde incidente, ce qui pose un problème pour des mesures multispectrales. Une solution serait d'utiliser des lames retardatrices à cristaux liquides, capables d'ajuster la polarisation incidente pour différentes longueurs d'onde grâce à l'application d'un champ électrique [199]. D'autres méthodes, telles que l'emploi de lames de Fresnel Rhomb [200] ou de lames quart d'onde en cascade [201], ont par ailleurs été explorées, bien que leurs limitations en termes d'angle d'incidence et d'encombrement ne les rendent pas idéales pour toutes les applications. Enfin, une dernière amélioration technique envisagée est le remplacement des éléments optiques actuels par des versions plus grandes, de deux pouces de diamètre, notamment pour les lentilles et le beam splitter, afin d'élargir la couverture angulaire et d'observer les régimes de diffusion sur de plus grands angles.

Concernant la voie holographique, l'une des limitations actuelles de l'instrument réside dans la distance importante entre la caméra et la particule analysée, ce qui réduit le nombre de franges d'interférence visibles sur l'image holographique. Cet effet affecte négativement la résolution et, par conséquent, la qualité de la reconstruction holographique. Pour remédier à cela, il serait bénéfique de positionner la caméra à une distance optimale de la particule. Cependant, la platine de translation actuellement utilisée est trop encombrante, ce qui limite les possibilités de rapprochement. Ainsi, la première amélioration proposée consiste à développer une platine de translation moins volumineuse, permettant d'améliorer significativement la résolution des images holographiques. Une fois la résolution améliorée, l'étape suivante consisterait à opter pour une caméra à plus haute résolution, c'est-à-dire une caméra dotée de pixels plus petits. Les pixels de plus petite taille permettent une meilleure résolution des franges d'interférence, ce qui

améliore la qualité de l'image reconstruite. Présentement, les caméras utilisées ont des pixels de  $2,4 \mu\text{m}$ , mais il existe des caméras avec des pixels de seulement  $1,5 \mu\text{m}$ . Toutefois, ces caméras ont généralement des capteurs plus petits, ce qui souligne l'importance de rapprocher la caméra de la particule pour maximiser l'efficacité de cette amélioration.

En plus d'obtenir les paramètres microphysiques des particules par holographie, il a été démontré par M. Berg [157] qu'il était possible de mesurer la section efficace d'extinction par holographie. Cette mesure serait une amélioration majeure de l'instrument, car, couplée à la mesure de la rétrodiffusion, elle inférerait le rapport lidar (ou rapport entre extinction et rétrodiffusion). Un paramètre majeur et indispensable à l'inversion du signal lidar. Cette méthode [157] ne sera pas développée en détail ici, mais nous nous proposons de donner un aperçu de celle-ci sur des mesures holographiques réalisées pendant la thèse.

La méthode procède en deux étapes par :

(i) par intégration bi-dimensionnelle autour du centre de l'image de contraste (hologramme-référence),

(ii) puis par interpolation d'une courbe de tendance de cette fonction d'intégration vers  $\theta = 0$ .

Un résultat par intégration progressive est présenté sur la Figure 72, où l'on peut voir la particule, son hologramme et la courbe d'intégration après filtration du bruit. L'interpolation est représentée ici par la ligne rouge nous donnant ainsi la valeur de l'extinction de cette particule. Il faut savoir que lorsque la particule est très grande comparée à la longueur d'onde, l'extinction est égale à 2 fois la surface projetée de la particule, ici, on l'appelle  $C^{geo}$ . Avec l'holographie, il est assez simple de déterminer la valeur de  $C^{geo}$  comme l'image de reconstruction est directement la surface projetée de cette particule. Ainsi, on peut voir que la valeur d'extinction tend vers la limite de  $2C^{geo}$ . Sur la Figure 72, on obtient  $C^{ext} = 1886 \mu\text{m}^2$  pour une particule sphérique de  $32 \mu\text{m}$  proche, donc de  $2.C^{geo} = 2\pi r^2 = 1608 \mu\text{m}^2$ . Cette mesure est un résultat préliminaire et démontre la capacité de notre instrument à déterminer aussi l'extinction des particules non-sphériques. Pour les particules plus fines (inférieure à  $10 \mu\text{m}$ ), la méthode reste fonctionnelle, mais nous sommes actuellement limités par la résolution de notre caméra et la taille de ses pixels. Également, le rapport signal sur bruit pour de petites particules est plus faible et la fonction d'intégration aussi plus difficile à calculer. On pourra utiliser une méthode de filtration par reconstruction de l'hologramme et filtrage binaire en déterminant les pixels composant l'image de la particule et ensuite l'inverse d'une reconstruction pour retrouver un hologramme propre sans le bruit dépendant seulement de la surface reconstruite de la particule [202].

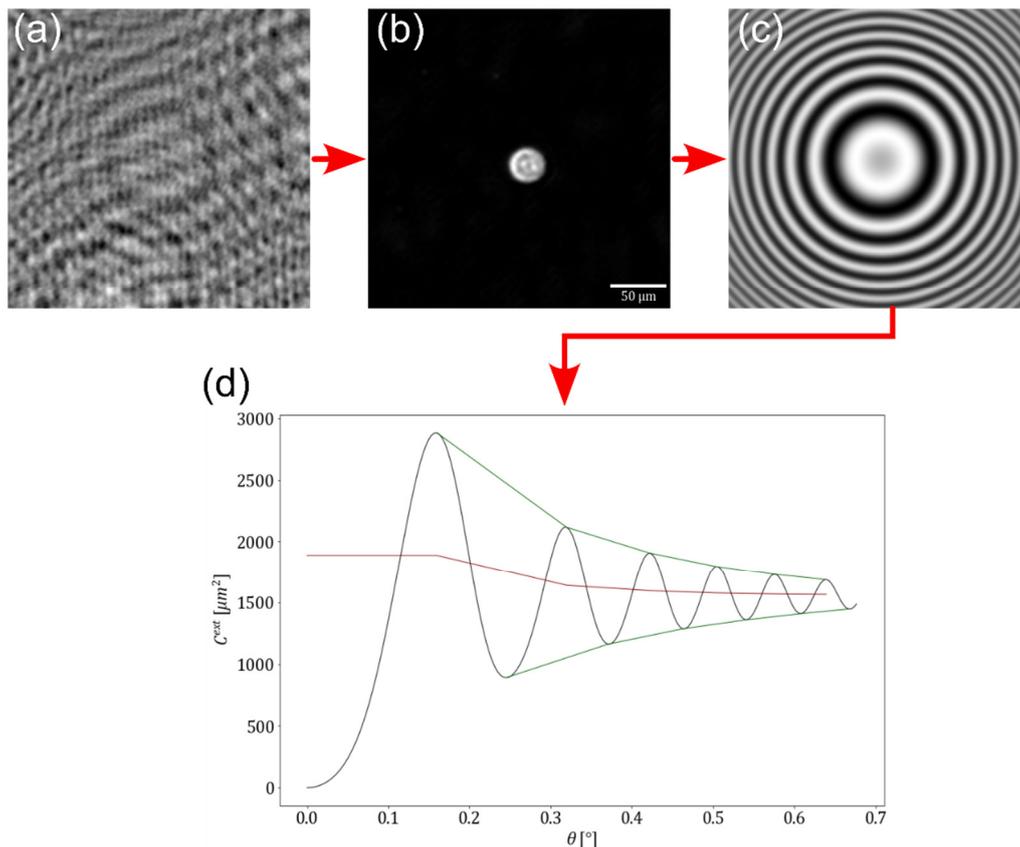


Figure 72 : Étape pour calculer l'extinction d'une particule sphérique de 32  $\mu\text{m}$  de diamètre. (a) représente l'hologramme de contraste sans filtration, (b) est la reconstruction de l'image de la particule issue de (a) et (c) est l'hologramme filtré en inversant la reconstruction tout en ayant filtré au préalable l'image de la particule pour supprimer le bruit d'après [202].

## 2. Instrument portable HALO

L'instrument HALO a été développé comme une initiative de valorisation parallèle à la démarche principale de la thèse. Cette initiative vise à développer un instrument de mesure holographique capable d'imager et de caractériser les aérosols en suspension dans l'air. Cela a nécessité une conception particulière pour s'adapter aux contraintes environnementales et techniques inhérentes.

Tout d'abord, l'aspect de portabilité de l'instrument était essentiel. Il devait être conçu pour être facilement transportable en extérieur, comme dans une chambre atmosphérique (ex. chambre aérosol VOLCAN développée à l'ONERA). Ceci a nécessité de rendre l'instrument étanche afin de limiter le dépôt de particules à l'intérieur de l'appareil et ne pas compromettre la fiabilité des données recueillies. Pour pallier ce problème, il est prévu que les particules circulent à travers un conduit dédié, évitant ainsi leur accumulation au sein de l'instrument. Concernant la configuration matérielle requise, l'un des éléments clés est la source lumineuse développée par LEUKOS spécifiquement pour ce projet. Le faisceau émis doit présenter des caractéristiques de pureté et d'uniformité élevées, à savoir une forme homogène et circulaire. La solution retenue pour atteindre cet objectif repose sur l'emploi d'une fibre monomode en sortie du laser. Cette technologie permet de limiter la propagation à un seul mode, résultant en un faisceau gaussien. Les propriétés de ce type de faisceau, notamment sa régularité et sa symétrie, sont

particulièrement adaptées aux applications holographiques. En aval de la chaîne optique se trouve le capteur de mesure, dont les spécifications doivent répondre à des critères précis. La résolution de l'image est directement liée à la dimension des pixels du capteur, ceux-ci devant être suffisamment petits pour capturer des détails fins. De plus, le mode de fonctionnement de l'obturateur du capteur revêt une importance déterminante. Les capteurs traditionnels, dotés d'un obturateur à balayage, ne sont pas adaptés à la capture d'images de particules en mouvement rapide en raison des distorsions induites par le phénomène de *rolling shutter*. À l'inverse, les capteurs équipés d'un obturateur global, bien que plus coûteux, permettent une acquisition instantanée de l'ensemble des pixels, éliminant ainsi les déformations sur les objets en mouvement.

La problématique de la capture d'images nettes de particules en déplacement rapide est adressée par l'utilisation d'impulsions laser de très courte durée. Le laser sélectionné pour ce projet est capable de générer des impulsions d'une nanoseconde, ce qui est nettement inférieur au temps de pose minimal requis par la caméra. Cette technique permet de « figer » efficacement les particules en mouvement, évitant l'apparition de traînées sur les images capturées. L'interconnexion entre la caméra et le laser est réalisée via un signal de déclenchement, assurant la synchronisation parfaite de l'émission de l'impulsion laser avec le début de l'acquisition d'une image. La taille d'un pixel étant de  $2,7\mu\text{m}$  et le temps d'impulsion d'une nano seconde, on peut donc en déduire qu'on est capable de figer une particule se déplaçant moins vite que  $2700\text{ m/s}$  soit environ 2 fois la vitesse du son dans l'air, donc largement suffisant pour notre utilisation.

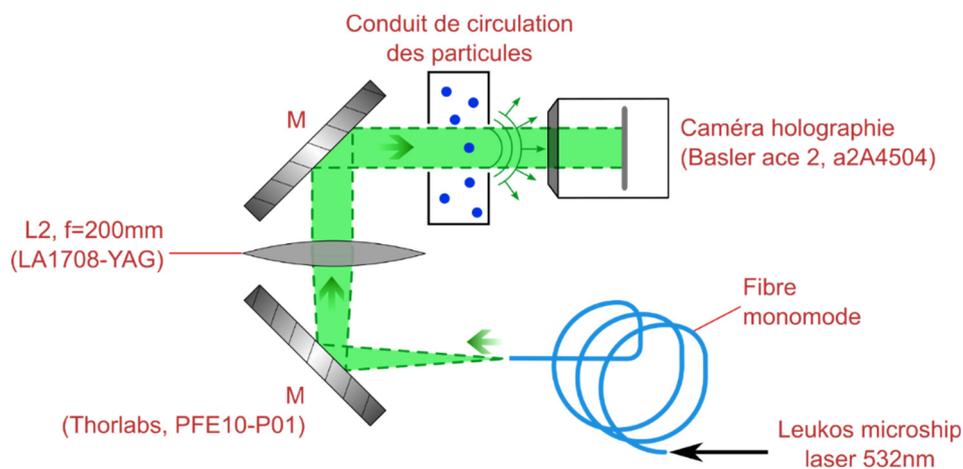


Figure 73 : Schéma optique du projet HALO utilisant un laser fibré monomode et une caméra pour faire de l'holographie sur des particules en circulation dans un conduit dédié.

Avec l'ensemble de l'équipement désormais disponible, nous allons examiner la configuration optique de l'instrument, illustrée par la Figure 73. La source lumineuse choisie est un laser Leukos de 532 nm, connecté par fibre optique, dont la sortie est dirigée vers un premier miroir incliné à  $45^\circ$ . Ce miroir a pour fonction de réfléchir le faisceau à un angle de  $90^\circ$ , tandis qu'un second miroir est disposé pour réorienter le faisceau pour augmenter la compacité de l'ensemble. Une lentille, placée entre ces deux miroirs et possédant une distance focale de 200 mm, tend à collimater le faisceau, produisant ainsi un faisceau d'environ 2 cm de diamètre. Le rayon lumineux traverse

ensuite le conduit où se déplacent les particules, et une caméra est positionnée derrière ce conduit afin de capturer les hologrammes générés par ces particules. L'architecture optique est conçue pour répondre aux exigences d'étanchéité du système et est intégrée à l'intérieur d'un boîtier en aluminium, également représenté sur la figure, avec les particules circulant dans un conduit à doubles-fenêtres optiques (BK7) permettant le passage du faisceau lumineux tout en préservant l'étanchéité de l'ensemble. Il est conçu pour favoriser un flux laminaire des particules devant les vitres, minimisant ainsi le dépôt de particules sur ces dernières. Des connecteurs sont installés sur le boîtier pour faciliter la communication, l'automatisation des mesures et l'alimentation du laser.

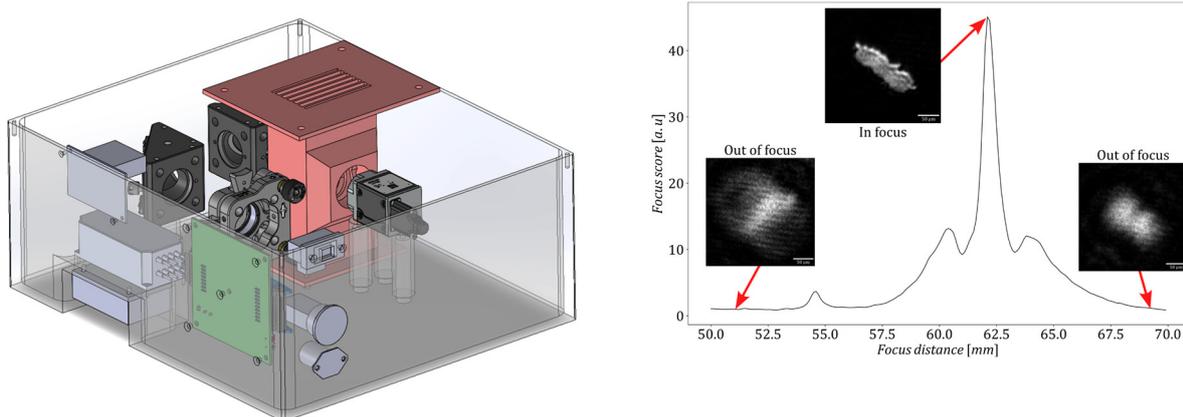


Figure 74 : A gauche. Dessin 3D de la boîte hermétique et du conduit de circulation des aérosols (pièce rouge). A droite. Score de focus en fonction de la distance particule/caméra en mm. Le score de focus est calculé avec la méthode de DarkFocus dont le principe est illustré par trois images de reconstruction de l'hologramme en fonction de la distance de reconstruction définie par la flèche rouge. Le score de focus le plus haut correspond à la distance de focus qui forme une image nette de la particule.

Un logiciel avec son interface homme-machine a aussi été développé pour l'analyse et la reconstruction des images holographiques. Cette phase est déterminante pour l'interprétation précise des données capturées par l'instrument. Une caractéristique distinctive de cette approche par rapport à l'instrument de mesure de diffusion réside dans la variabilité de la distance de reconstruction. Contrairement aux systèmes où les particules sont immobilisées sur un support fixe, dans le cas présent, les particules sont en mouvement libre dans l'air. Ce mouvement implique que chaque particule capturée par la caméra se trouve à une distance unique par rapport à celle-ci. Comme la caméra peut enregistrer jusqu'à 20 images par seconde, il devient impraticable de définir une distance de reconstruction manuellement pour chaque particule sur chaque image capturée. Pour surmonter cette contrainte, l'intégration d'un nouvel algorithme d'autofocus a été rendu nécessaire. Ce terme est emprunté à la terminologie de la photographie, où des algorithmes similaires sont utilisés pour ajuster la mise au point de l'appareil photo automatiquement. La première étape de l'autofocus est de trouver la position des particules sur l'image, mais il est complexe de déterminer cette position sans faire de reconstruction et sans connaître la distance de reconstruction. Une solution simple pour réaliser, cela a été de faire une reconstruction à une distance donnée qui va correspondre à la distance entre le centre du conduit et la caméra. Bien que cette reconstruction initiale ne corresponde pas à la distance réelle et soit de qualité médiocre, elle permet néanmoins de visualiser les particules sous forme de taches floues et sombres, suffisantes pour localiser chaque particule. La méthode de reconstruction par *angular*

*spectrum* permet de faire le calcul de reconstruction sur une image moins résolue, accélérant ainsi significativement le temps de calcul. L'étape suivante implique l'application de l'algorithme d'autofocus, pour lequel une variété de méthodes existe. Dans ce contexte, la méthode *darkfocus* a été utilisée [203] et consiste à évaluer une métrique fondée sur la netteté de l'image : plus l'image est nette, plus la valeur de la métrique est élevée.

$$DF(d) = grad(var(abs(U(d)))) \quad (80)$$

La formule de *darkfocus* calcule la variance du gradient de l'image reconstruite. Malgré l'utilisation d'images de faible résolution concentrées uniquement sur une petite région centrée sur la particule, cette métrique permet d'optimiser la distance de reconstruction pour atteindre une valeur maximale. La Figure 74 illustre cette métrique en fonction de la distance de reconstruction, on observe bien que lorsque cette métrique est la plus élevée l'image est nette, ainsi, on peut faire une reconstruction automatique et rapide grâce à cette méthode d'optimisation de cette métrique. Une fois la distance optimale de reconstruction déterminée, une reconstruction d'image en haute résolution centrée sur la particule peut être réalisée. La méthode complète prend environ 1 s par particule. L'étape suivante de ce projet est donc le test grandeur nature avec des particules dans un environnement donné pour trouver une granulométrie, on a pu voir que l'instrument est fonctionnel et que l'algorithme de reconstruction est efficace pour ce type de mesure.

## VII. Conclusions et ouverture

Lors de la thèse, j'ai accompli les objectifs principaux de mon projet de recherche en concevant et en mettant au point un instrument de mesure de la diffusion de la lumière innovant et complet. Cet instrument, capable de déterminer avec les paramètres radiatifs des aérosols dans le contexte de mesures lidar, ainsi que d'analyser les caractéristiques morphologiques des particules au moyen de l'holographie, représente une avancée significative dans le domaine de l'étude des aérosols atmosphériques. L'approche adoptée, combinant analyse multispectrale et polarimétrique, permet une caractérisation détaillée des aérosols, offrant ainsi une base solide pour les recherches futures dans ce domaine. A ma connaissance, il n'existe aucun dispositif similaire dans la littérature.

Les instruments, SOPHOS et HALO, ouvrent des perspectives nouvelles et pour la constitution de bases de données détaillées de propriétés radiatives et morphologiques des aérosols. L'objectif de cette base de données est de fournir une source d'informations fiables et précises pour l'analyse des données lidar, facilitant ainsi la détermination empirique des caractéristiques microphysiques des aérosols dans l'atmosphère. En effet, l'accès à de telles informations serait d'une grande aide pour les chercheurs effectuant des mesures directes dans l'atmosphère, en offrant un soutien robuste à leurs analyses et en améliorant la précision et la fiabilité des résultats obtenus. Une interprétation plus précise des mesures lidar permettrait un suivi amélioré des aérosols dans l'atmosphère, leur concentration, et pourrait contribuer à mieux anticiper et prévenir les risques liés à l'environnement, à la santé publique et à la sécurité de la navigation

aérienne. Une compréhension approfondie du lien entre la morphologie des particules et leur comportement en termes de diffusion de la lumière est capitale pour avancer dans cette direction. De plus, l'émergence de mesures lidar hyperspectrales [51,204] grâce aux développements de laser supercontinuum, associées aux données de notre instrument, rendra les informations recueillies encore plus robustes sur un large spectre de longueurs d'onde.

Les mesures fournies par l'instrument seraient particulièrement adaptées pour simuler les propriétés radiatives des aérosols à partir de modèles complexes de diffusion de la lumière, telles que celles établies sur l'approche par DDA (modélisation par éléments finis de dipôles discrets), représente une autre voie de recherche potentielle. Cette interaction promet d'affiner les modèles tridimensionnels des particules aérosols, grâce aux informations fournies par l'holographie. Cette convergence entre observations empiriques et modélisation théorique ouvre la voie à une meilleure compréhension des propriétés microphysiques des particules.

Le projet HALO, ayant prouvé son efficacité en laboratoire, se profile comme un développement futur prometteur pour des applications en milieu extérieur. La capacité de cet instrument à identifier les caractéristiques morphologiques des aérosols dans divers environnements, tels que les chambres atmosphériques ou les zones fortement affectées par des émissions de particules (incendies, émissions industrielles), est de nature à enrichir notre compréhension des types d'aérosols présents dans l'air étudié. L'utilisation de chambres atmosphériques, permettant de simuler des conditions atmosphériques contrôlées, facilite la corrélation entre les comportements radiatifs et morphologiques des aérosols, développant de nouvelles possibilités pour l'étude de ces particules dans un contexte proche de celui de l'atmosphère réelle.

Au-delà des aérosols, la caractéristique multispectrale de l'instrument SOPHOS se révèle extrêmement pertinente pour l'analyse de surfaces diffusantes. Cette compétence offre notamment la possibilité de caractériser de manière non destructive des états de surface et des peintures dans le spectre visible, ce qui représente un avantage considérable dans le secteur industriel. De plus, l'étude des surfaces peut s'étendre à des applications biomédicales, comme la détection de cellules cancéreuses à partir du comportement radiatif de la peau en multispectral [93,104,107,108]. En somme, les capacités de caractérisation spectro-polarimétrique de l'instrument SOPHOS dépasse largement le cadre de l'étude des aérosols, en offrant des applications prometteuses pour l'analyse de diverses surfaces diffusantes. La convergence de ces applications illustre la polyvalence de l'instrument SOPHOS, qui, par sa capacité à fournir une diverse gamme de mesure, ouvre de nouvelles voies dans le domaine de la recherche atmosphérique ainsi que dans les applications industrielles et médicale.

## Références bibliographiques

---

1. W. K. Tao, J. P. Chen, Z. Li, C. Wang, and C. Zhang, "Impact of aerosols on convective clouds and precipitation," *Reviews of Geophysics* **50**, (2012).
2. Y. J. Kaufman, D. Tanré, and O. Boucher, "A satellite view of aerosols in the climate system," *Nature* **419**, 215–223 (2002).
3. V. Ramanathan, P. J. Crutzen, J. T. Kiehl, and D. Rosenfeld, "Aerosols, Climate, and the Hydrological Cycle," *Science* (1979) **294**, 2119–2124 (2001).
4. U. Pöschl, "Atmospheric Aerosols: Composition, Transformation, Climate and Health Effects," *Angewandte Chemie International Edition* **44**, 7520–7540 (2005).
5. H. W. Hsu, F. Postberg, Y. Sekine, T. Shibuya, S. Kempf, M. Horányi, A. Juhász, N. Altobelli, K. Suzuki, Y. Masaki, T. Kuwatani, S. Tachibana, S. I. Sirono, G. Moragas-Klostermeyer, and R. Srama, "Ongoing hydrothermal activities within Enceladus," *Nature* **519**, 207–210 (2015).
6. M. M. Hedman, P. D. Nicholson, M. R. Showalter, R. H. Brown, B. J. Buratti, and R. N. Clark, "Spectral observations of the enceladus plume with cassini-vims," *Astrophysical Journal* **693**, 1749–1762 (2009).
7. T. C. Bond, S. J. Doherty, and D. W. Fahey, "Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment," *Journal of Geophysical Research Atmospheres* **118**, 5380–5552 (2013).
8. S. Menon, J. Hansen, L. Nazarenko, and Y. Luo, "Climate Effects of Black Carbon Aerosols in China and India," *Science* (1979) **297**, 2250–2253 (2002).
9. A. N. Sarkar, "Evolving Green Aviation Transport System: A Hoilistic Approach to Sustainable Green Market Development," *Am J Clim Change* **01**, 164–180 (2012).
10. J. Barton, "Tackling Aviation Emissions: the Challenges ahead," *Journal for European Environmental & Planning Law* **3**, 316–324 (2006).
11. F. Prata and B. Rose, "Volcanic Ash Hazards to Aviation," in *The Encyclopedia of Volcanoes* (Elsevier, 2015), pp. 911–934.
12. Th. I. Lekas, J. Kushta, S. Solomos, and G. Kallos, "Some considerations related to flight in dusty conditions," *Journal of Aerospace Operations* **3**, 45–56 (2014).
13. M. V. Berry, "Nature's optics and our understanding of light," *Contemp Phys* **56**, 2–16 (2015).
14. B. Vohnsen, "A Short History of Optics," *Phys Scr* **T109**, 75 (2004).

15. D. Renker and E. Lorenz, "Advances in solid state photon detectors," *Journal of Instrumentation* **4**, (2009).
16. D. M. Winker, W. H. Hunt, and M. J. McGill, "Initial performance assessment of CALIOP," *Geophys Res Lett* **34**, (2007).
17. D. M. Winker and J. Pelon, "The CALIPSO Mission," in *International Geoscience and Remote Sensing Symposium* (2003), Vol. 2, pp. 1329–1331.
18. C. A. Northend, R. C. Honey, and W. E. Evans, "Laser radar (lidar) for meteorological observations," *Review of Scientific Instruments* **37**, 393–400 (1966).
19. R. T. H. Collis, "Lidar: A new atmospheric probe," *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* **92**, 220–230 (1966).
20. A. Ansmann and D. Müller, "Lidar and Atmospheric Aerosol Particles," in *Lidar* (Springer-Verlag, 2005), pp. 105–141.
21. A. Comerón, C. Muñoz-Porcar, F. Rocadenbosch, A. Rodríguez-Gómez, and M. Sicard, "Current research in lidar technology used for the remote sensing of atmospheric aerosols," *Sensors (Switzerland)* **17**, (2017).
22. J. R. Simard, G. Roy, P. Mathieu, V. Larochelle, J. McFee, and J. Ho, "Standoff sensing of bioaerosols using intensified range-gated spectral analysis of laser-induced fluorescence," *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* **42**, 865–874 (2004).
23. L. Mona, A. Amodeo, G. D'Amico, A. Giunta, F. Madonna, and G. Pappalardo, "Multi-wavelength Raman lidar observations of the Eyjafjallajökull volcanic cloud over Potenza, southern Italy," *Atmos Chem Phys* **12**, 2229–2244 (2012).
24. R. Ceolato and M. J. Berg, "Aerosol light extinction and backscattering: A review with a lidar perspective," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **262**, 107492 (2021).
25. H. Wolfram and T. Wriedt, *The Mie Theory*, Springer Series in Optical Sciences (Springer Berlin Heidelberg, 2012), Vol. 169.
26. L. D. Travis and D. W. Mackowski, "T-matrix computations of light scattering nonspherical particles: a review," **55**, (1996).
27. R. Ceolato, L. Paulien, J. B. Maughan, C. M. Sorensen, and M. J. Berg, "Radiative properties of soot fractal superaggregates including backscattering and depolarization," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **247**, (2020).
28. L. Paulien, R. Ceolato, L. Soucasse, F. Enguehard, and A. Soufiani, "Lidar-relevant radiative properties of soot fractal aggregate ensembles," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **241**, (2020).
29. L. Paulien, "Modeling of polarization-resolved lidar signals for the characterization of soot fractal aggregates accounting for multiple scattering," (2022).

30. M. A. Yurkin and A. G. Hoekstra, "The discrete dipole approximation: An overview and recent developments," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **106**, 558–589 (2007).
31. A. M. de Oliveira, C. T. Souza, N. P. M. de Oliveira, A. K. S. Melo, F. J. S. Lopes, E. Landulfo, H. Elbern, and J. J. Hoelzemann, "Analysis of Atmospheric Aerosol Optical Properties in the Northeast Brazilian Atmosphere with Remote Sensing Data from MODIS and CALIOP/CALIPSO Satellites, AERONET Photometers and a Ground-Based Lidar," *Atmosphere (Basel)* **10**, 594 (2019).
32. A. A. Floutsi, H. Baars, R. Engelmann, D. Althausen, and A. Ansmann, "DeLiAn - a growing collection of depolarization ratio, lidar ratio and Ångström exponent for different aerosol types and mixtures from ground-based lidar observations," *Atmos Meas Tech* **16**, 2353–2379 (2023).
33. S. Groß, M. Esselborn, B. Weinzierl, M. Wirth, A. Fix, and A. Petzold, "Aerosol classification by airborne high spectral resolution lidar observations," *Atmos Chem Phys* **13**, 2487–2505 (2013).
34. S. Groß, V. Freudenthaler, M. Wirth, and B. Weinzierl, "Towards an aerosol classification scheme for future EarthCARE lidar observations and implications for research needs," *Atmospheric Science Letters* **16**, 77–82 (2015).
35. O. Muñoz, F. Moreno, D. Guirado, D. Dabrowska, H. Volten, and J. Hovenier, "The Amsterdam–Granada Light Scattering Database," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **113**, 565–574 (2012).
36. S. Kaasalainen, J. Piironen, K. Muinonen, H. Karttunen, and J. Peltoniemi, "Laboratory experiments on backscattering from regolith samples," *Appl Opt* **41**, 4416 (2002).
37. A. Miffre, D. Cholleton, and P. Rairoux, "Laboratory evaluation of the scattering matrix elements of mineral dust particles from 176.0° up to 180.0°-exact backscattering angle," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **222–223**, 45–59 (2019).
38. G. David, B. Thomas, E. Coillet, A. Miffre, and P. Rairoux, "Polarization-resolved exact light backscattering by an ensemble of particles in air," *Opt Express* **21**, 18624 (2013).
39. B. M. Heffernan, Y. W. Heinson, J. B. Maughan, A. Chakrabarti, and C. M. Sorensen, "Backscattering measurements of micron-sized spherical particles," *Appl Opt* **55**, 3214 (2016).
40. O. Muñoz, F. Moreno, D. Guirado, J. L. Ramos, A. López, F. Girela, J. M. Jerónimo, L. P. Costillo, and I. Bustamante, "Experimental determination of scattering matrices of dust particles at visible wavelengths: The IAA light scattering apparatus," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **111**, 187–196 (2010).
41. E. Järvinen, O. Kemppinen, T. Nousiainen, T. Kociok, O. Möhler, T. Leisner, and M. Schnaiter, "Laboratory investigations of mineral dust near-backscattering depolarization ratios," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **178**, 192–208 (2016).

42. A. Miffre, T. Mehri, M. Francis, and P. Rairoux, "UV-VIS depolarization from Arizona Test Dust particles at exact backscattering angle," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **169**, 79–90 (2016).
43. M. J. Berg and G. Videen, "Digital holographic imaging of aerosol particles in flight," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **112**, 1776–1783 (2011).
44. M. J. Berg and S. Holler, "Simultaneous holographic imaging and light-scattering pattern measurement of individual microparticles," *Opt Lett* **41**, 3363 (2016).
45. J. D. Klett, "Stable analytical inversion solution for processing lidar returns," *Appl Opt* **20**, 211 (1981).
46. R. Ceolato, "Data fusion system for hyperspectral, polarimetric, and angular scattering Application to optical diagnostic of dense and complex media," (2013).
47. J. Heintzenberg, H. Müller, H. Quenzel, and E. Thomalla, "Information content of optical data with respect to aerosol properties: numerical studies with a randomized minimization-search-technique inversion algorithm," *Appl Opt* **20**, 1308 (1981).
48. P. Qing, H. Nakane, Y. Sasano, and S. Kitamura, *Numerical Simulation of the Retrieval of Aerosol Size Distribution from Multiwavelength Laser Radar Measurements* (1989).
49. D. A. Ligon, J. B. Gillespie, and P. Pellegrino, *Aerosol Properties from Spectral Extinction and Backscatter Estimated by an Inverse Monte Carlo Method* (2000).
50. M. Haarig, A. Ansmann, R. Engelmann, H. Baars, C. Toledano, B. Torres, D. Althausen, M. Radenz, and U. Wandinger, "First triple-wavelength lidar observations of depolarization and extinction-to-backscatter ratios of Saharan dust," *Atmos Chem Phys* **22**, 355–369 (2022).
51. F. Gaudfrin, O. Pujol, N. Riviere, G. Huss, and R. Ceolato, "A New Lidar Technique Based on Supercontinuum Laser Sources for Aerosol Soundings: Simulations and Measurements - The PERFALIS Code and the COLIBRIS Instrument," *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* **61**, (2023).
52. K. Sassen, "Polarization in Lidar," in *Lidar* (Springer-Verlag, 2005), pp. 19–42.
53. V. Freudenthaler, M. Esselborn, M. Wiegner, B. Heese, M. Tesche, A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, M. Wirth, A. Fix, G. Ehret, P. Knippertz, C. Toledano, J. Gasteiger, M. Garhammer, and M. Seefeldner, "Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006," *Tellus B Chem Phys Meteorol* **61**, 165–179 (2009).
54. J. Antonio Bravo-Aranda, L. Belegante, V. Freudenthaler, L. Alados-Arboledas, D. Nicolae, M. J. Granados-Munõz, J. Luis Guerrero-Rascado, A. Amodeo, G. D'Amico, R. Engelmann, G. Pappalardo, P. Kokkalis, R. Mamouri, A. Papayannis, F. Navas-Guzmán, F. José Olmo, U. Wandinger, F. Amato, and M. Haefelin, "Assessment of lidar depolarization uncertainty by means of a polarimetric lidar simulator," *Atmos Meas Tech* **9**, 4935–4953 (2016).

55. M. I. Mishchenko, J. M. Dlugach, and L. Liu, "Linear depolarization of lidar returns by aged smoke particles," *Appl Opt* **55**, 9968 (2016).
56. J. C. Gómez Martín, D. Guirado, E. Frattin, M. Bermudez-Edo, P. Cariñanos Gonzalez, F. J. Olmo Reyes, T. Nousiainen, P. J. Gutiérrez, F. Moreno, and O. Muñoz, "On the application of scattering matrix measurements to detection and identification of major types of airborne aerosol particles: Volcanic ash, desert dust and pollen," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **271**, (2021).
57. S. P. Burton, J. W. Hair, M. Kahnert, R. A. Ferrare, C. A. Hostetler, A. L. Cook, D. B. Harper, T. A. Berkoff, S. T. Seaman, J. E. Collins, M. A. Fenn, and R. R. Rogers, "Observations of the spectral dependence of linear particle depolarization ratio of aerosols using NASA Langley airborne High Spectral Resolution Lidar," *Atmos Chem Phys* **15**, 13453–13473 (2015).
58. M. I. Mishchenko, *Electromagnetic Scattering by Particles and Particle Groups* (Cambridge University Press, 2014).
59. A. V. Romanov and M. A. Yurkin, "Single-Particle Characterization by Elastic Light Scattering," *Laser Photon Rev* **15**, 1–18 (2021).
60. M. I. Mishchenko, J. W. Hovenier, and L. D. Travis, "Light scattering by nonspherical particles: theory, measurements, and applications," (2000).
61. D. Lee, "Structural investigation of Carboxypol ETD2050 by light scattering," (2009).
62. C. F. Bohren, "Absorption and scattering of light by small particles," *Absorption and scattering of light by small particles* (1983).
63. E. Collett, *Field Guide to Polarization* (SPIE, 2005).
64. A. Young, "Rayleigh scattering," *Phys Today* **35**, 42–48 (1982).
65. W. J. Glantschnig and S.-H. Chen, "Light scattering from water droplets in the geometrical optics approximation," *Appl Opt* **20**, 2499 (1981).
66. X. Dou, Y. Han, D. Sun, H. Xia, Z. Shu, R. Zhao, M. Shangguan, and J. Guo, "Mobile Rayleigh Doppler lidar for wind and temperature measurements in the stratosphere and lower mesosphere," *Opt Express* **22**, A1203 (2014).
67. J. A. Lock and G. Gouesbet, "Generalized Lorenz-Mie theory and applications," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **110**, 800–807 (2009).
68. M. I. Mishchenko, D. J. WIELAARD, and B. E. Carlson, "T-matrix computations of zenith-enhanced lidar backscatter from horizontally oriented ice plates," *Geophys Res Lett* **24**, 771–774 (1997).
69. G. David, B. Thomas, T. Nousiainen, A. Miffre, and P. Rairoux, "Retrieving simulated volcanic, desert dust and sea-salt particle properties from two/three-component particle mixtures using UV-VIS polarization lidar and T matrix," *Atmos Chem Phys* **13**, 6757–6776 (2013).

70. M. A. Yurkin, V. P. Maltsev, and A. G. Hoekstra, "The discrete dipole approximation for simulation of light scattering by particles much larger than the wavelength," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **106**, 546–557 (2007).
71. W. M. Grundy, S. Douté, and B. Schmitt, "A Monte Carlo ray-tracing model for scattering and polarization by large particles with complex shapes," *J Geophys Res Planets* **105**, 29291–29314 (2000).
72. P. Yang and K. N. Liou, "Geometric-optics–integral-equation method for light scattering by nonspherical ice crystals," *Appl Opt* **35**, 6568 (1996).
73. O. Sourdeval, E. Gryspeerd, M. Krämer, T. Goren, J. Delanoë, A. Afchine, F. Hemmer, and J. Quaas, "Ice crystal number concentration estimates from lidar-radar satellite remote sensing - Part 1: Method and evaluation," *Atmos Chem Phys* **18**, 14327–14350 (2018).
74. D. Gabor, "A New Microscopic Principle," *Nature* **161**, 777–778 (1948).
75. H. Byeon, T. Go, and S. J. Lee, "Precise measurement of orientations of transparent ellipsoidal particles through digital holographic microscopy," *Opt Express* **24**, 598 (2016).
76. J. Garcia-Sucerquia, W. Xu, S. K. Jericho, P. Klages, M. H. Jericho, and H. J. Kreuzer, "Digital in-line holographic microscopy," *Appl Opt* **45**, 836 (2006).
77. F. C. Cheong, P. Kasimbeg, D. B. Ruffner, E. H. Hlaing, J. M. Blusewicz, L. A. Philips, and D. G. Grier, "Holographic characterization of colloidal particles in turbid media," *Appl Phys Lett* **111**, (2017).
78. E. Malkiel, J. N. Abras, and J. Katz, "Automated scanning and measurements of particle distributions within a holographic reconstructed volume," *Meas Sci Technol* **15**, 601–612 (2004).
79. J. Fung, K. E. Martin, R. W. Perry, D. M. Kaz, R. McGorty, and V. N. Manoharan, "Measuring translational, rotational, and vibrational dynamics in colloids with digital holographic microscopy," *Opt Express* **19**, 8051 (2011).
80. J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*, 2nd ed. (Roberts and Company Publishers, 1996).
81. U. Schnars and W. P. O. Jptner, "Digital recording and numerical reconstruction of holograms," *Meas Sci Technol* **13**, R85–R101 (2002).
82. T. Kozacki, "Numerical errors of diffraction computing using plane wave spectrum decomposition," *Opt Commun* **281**, 4219–4223 (2008).
83. T. Latychevskaia and H.-W. Fink, "Practical algorithms for simulation and reconstruction of digital in-line holograms," *Appl Opt* **54**, 2424 (2015).
84. M. J. Berg, "Tutorial: Aerosol characterization with digital in-line holography," *J Aerosol Sci* **165**, 106023 (2022).

85. T. Dalgleish, J. M. G. Williams, A.-M. J. Golden, N. Perkins, L. F. Barrett, P. J. Barnard, C. Au Yeung, V. Murphy, R. Elward, K. Tchanturia, and E. Watkins, "Digital Holography," in *Digital Holography*, Springer (Springer-Verlag, 2007), Vol. 136, pp. 41–69.
86. P. Picart and S. Montresor, "Digital holography," in *Optical Holography: Materials, Theory and Applications* (2019), pp. 83–87.
87. J. A. Ratcliffe, "Some Aspects of Diffraction Theory and their Application to the Ionosphere," *Reports on Progress in Physics* **19**, 306 (1956).
88. D. Doxaran, K. Ruddick, D. McKee, B. Gentili, D. Tailliez, M. Chami, and M. Babin, "Spectral variations of light scattering by marine particles in coastal waters, from visible to near infrared," *Limnol Oceanogr* **54**, 1257–1271 (2009).
89. T. Li, A. J. Senesi, and B. Lee, "Small Angle X-ray Scattering for Nanoparticle Research," *Chem Rev* **116**, 11128–11180 (2016).
90. F. B. Khambatta, F. Warner, T. Russell, and R. S. Stein, "Small-angle x-ray and light scattering studies of the morphology of blends of poly( $\epsilon$ -caprolactone) with poly(vinyl chloride)," *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition* **14**, 1391–1424 (1976).
91. B. A. Brice, M. Halwer, and R. Speiser, "Photoelectric Light-Scattering Photometer for Determining High Molecular Weights\*," *J Opt Soc Am* **40**, 768 (1950).
92. A. Bain and T. C. Preston, "Mie scattering from strongly absorbing airborne particles in a photophoretic trap," *J Appl Phys* **125**, (2019).
93. R. S. Gurjar, V. Backman, L. T. Perelman, I. Georgakoudi, K. Badizadegan, I. Itzkan, R. R. Dasari, and M. S. Feld, "Imaging human epithelial properties with polarized light-scattering spectroscopy," *Nat Med* **7**, 1245–1248 (2001).
94. A. J. A. Smith, D. M. Peters, R. McPheat, S. Lukanihins, and R. G. Grainger, "Measuring black carbon spectral extinction in the visible and infrared," *J Geophys Res* **120**, 9670–9683 (2015).
95. T. Müller, M. Laborde, G. Kassell, and A. Wiedensohler, "Design and performance of a three-wavelength LED-based total scatter and backscatter integrating nephelometer," *Atmos Meas Tech* **4**, 1291–1303 (2011).
96. Y. W. Heinson, C. M. Sorensen, and R. K. Chakrabarty, "Portable device to determine particle asymmetry parameter," *Opt Express* **27**, 10152 (2019).
97. K. Nishida, H. Ogawa, G. Matsuba, T. Konishi, and T. Kanaya, "A high-resolution small-angle light scattering instrument for soft matter studies," *J Appl Crystallogr* **41**, 723–728 (2008).
98. P. H. Kaye, E. Hirst, J. M. Clark, and F. Micheli, "Airborne particle shape and size classification from spatial light scattering profiles," *J Aerosol Sci* **23**, 597–611 (1992).
99. P. A. Bonczyk and R. J. Hall, "Measurement of the fractal dimension of soot using UV laser radiation," *Langmuir* **8**, 1666–1670 (1992).

100. R. Ceolato, K. Aleau, L. Paulien, F. Fossard, E. Reynoso-Lara, and M. J. Berg, "Two-dimensional small-angle scattering from single particles in infrared with a lensless technique," *Opt Express* **28**, 25114 (2020).
101. R. R. Alfano and S. L. Shapiro, "Emission in the Region 4000 to 7000 Å Via Four-Photon Coupling in Glass," *Phys Rev Lett* **24**, 584–587 (1970).
102. C. Lesvigne, V. Couderc, A. Tonello, P. Leproux, A. Barthélémy, S. Lacroix, F. Druon, P. Blandin, M. Hanna, and P. Georges, "Visible supercontinuum generation controlled by intermodal four-wave mixing in microstructured fiber," *Opt Lett* **32**, 2173 (2007).
103. A. Labruyère, P. Leproux, V. Couderc, V. Tombelaine, J. Kobelke, K. Schuster, H. Bartelt, S. Hilaire, G. Huss, and G. Mélin, "Structured-core GeO<sub>2</sub>-doped photonic-crystal fibers for parametric and supercontinuum generation," *IEEE Photonics Technology Letters* **22**, 1259–1261 (2010).
104. A. Labruyère, A. Tonello, V. Couderc, G. Huss, and P. Leproux, "Compact supercontinuum sources and their biomedical applications," *Optical Fiber Technology* **18**, 375–378 (2012).
105. I. Itzkan, L. Qiu, H. Fang, M. M. Zaman, E. Vitkin, and I. C. Ghiran, "Confocal light absorption and scattering spectroscopic microscopy monitors organelles in live cells with no exogenous labels," *Proceedings of the National Academy of Sciences* **104**, 17255–17260 (2007).
106. L. Qiu, V. Turzhitsky, E. Vitkin, L. Guo, E. B. Hanlon, I. Itzkan, and L. T. Perelman, "Coherent confocal light absorption and scattering spectroscopic microscopy," *Biomedical Optics, BIOMED 2012* (2012).
107. R. Ceolato, N. Riviere, R. Jorand, B. Ducommun, and C. Lorenzo, "Light-scattering by aggregates of tumor cells: Spectral, polarimetric, and angular measurements," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **146**, 207–213 (2014).
108. J. Qi, B. Clement, and D. S. Elson, "Polarized multispectral imaging in a rigid endoscope based on polarized light scattering spectroscopy," *Biomedical Optics, BIOMED 2012* **3**, 2087–2099 (2012).
109. E. Ortiz, F. González, J. Saiz, and F. Moreno, "Experimental measurement of the statistics of the scattered intensity from particles on surfaces," *Opt Express* **10**, 190 (2002).
110. F. Moreno, D. L. Jordan, F. González, J. M. Saiz, and P. J. Valle, "Experimental study of copolarized light scattering by spherical metallic particles on conducting flat substrates," *Journal of the Optical Society of America A* **10**, 141 (1993).
111. J. Chen, H. Wang, and J. Shen, "Light scattering of particles illuminated by a divergent beam," *Opt Lasers Eng* **50**, 1410–1415 (2012).
112. E. Van Der Pol, F. A. W. Coumans, A. Sturk, R. Nieuwland, and T. G. Van Leeuwen, "Refractive index determination of nanoparticles in suspension using nanoparticle tracking analysis," *Nano Lett* **14**, 6195–6201 (2014).

113. M. J. Bogan, D. Starodub, C. Y. Hampton, and R. G. Sierra, "Single-particle coherent diffractive imaging with a soft X-ray free electron laser: Towards soot aerosol morphology," *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **43**, (2010).
114. N. Roth, K. Anders, and A. Frohn, "Refractive-index measurements for the correction of particle sizing methods," *Appl Opt* **30**, 4960 (1991).
115. E. Hirst and P. H. Kaye, "Experimental and theoretical light scattering profiles from spherical and nonspherical particles," *J Geophys Res* **101**, 231–235 (1996).
116. F. T. Gucker, J. Tůma, H. M. Lin, C. M. Huang, S. C. Ems, and T. R. Marshall, "Rapid measurement of light-scattering diagrams from single particles in an aerosol stream and determination of latex particle size," *J Aerosol Sci* **4**, 389–404 (1973).
117. M. J. Berg and G. Videen, "Digital holographic imaging of aerosol particles in flight," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **112**, 1776–1783 (2011).
118. D. Jakubczyk, S. Migacz, G. Derkachov, M. Woźniak, J. Archer, and K. Kolwas, "Optical diagnostics of a single evaporating droplet using fast parallel computing on graphics processing units," *Opto-electronics Review* **24**, 108–116 (2016).
119. D. Watson, N. Hagen, J. Diver, P. Marchand, and M. Chachisvilis, "Elastic light scattering from single cells: Orientational dynamics in optical trap," *Biophys J* **87**, 1298–1306 (2004).
120. M. Kinnunen, J. Tuorila, T. Haapalainen, A. Karmenyan, V. Tuchin, and R. Myllylä, "Optical tweezers-assisted measurements of elastic light scattering," *Saratov Fall Meeting 2013: Optical Technologies in Biophysics and Medicine XV; and Laser Physics and Photonics XV* **9031**, 90310A (2014).
121. G. Maconi, A. Penttilä, I. Kassamakov, M. Gritsevich, P. Helander, T. Puranen, A. Salmi, E. Hægström, and K. Muinonen, "Non-destructive controlled single-particle light scattering measurement," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **204**, 159–164 (2018).
122. P. A. Lane, M. B. Hart, V. Jain, J. E. Tucker, and J. D. Eversole, "Characterization of single particle aerosols by elastic light scattering at multiple wavelengths," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **208**, 188–195 (2018).
123. L. T. Perelman, "Confocal light absorption and scattering spectroscopic microscopy," *Optics InfoBase Conference Papers* 3–5 (2008).
124. P. J. Wyatt, K. L. Schehrer, S. D. Phillips, C. Jackson, Y.-J. Chang, R. G. Parker, D. T. Phillips, and J. R. Bottiger, "Aerosol particle analyzer," *Appl Opt* **27**, 217 (1988).
125. A. Abdelmonem, M. Schnaiter, P. Amsler, E. Hesse, J. Meyer, and T. Leisner, "First correlated measurements of the shape and light scattering properties of cloud particles using the new Particle Habit Imaging and Polar Scattering (PHIPS) probe," *Atmos Meas Tech* **4**, 2125–2142 (2011).

126. M. Nakagawa, T. Nakayama, H. Sasago, S. Ueda, D. S. Venables, and Y. Matsumi, "Design and characterization of a novel single-particle polar nephelometer," *Aerosol Science and Technology* **50**, 392–404 (2016).
127. D. H. Tycko, M. H. Metz, E. A. Epstein, and A. Grinbaum, "Flow-cytometric light scattering measurement of red blood cell volume and hemoglobin concentration," *Appl Opt* **24**, 1355 (1985).
128. W. W. Szymanski, A. Nagy, A. Czitrovsky, and P. Jani, "A new method for the simultaneous measurement of aerosol particle size, complex refractive index and particle density," *Meas Sci Technol* **13**, 303–307 (2002).
129. J. L. Castagner and I. J. Bigio, "Polar nephelometer based on a rotational confocal imaging setup for scattering measurements from cells," *Optics InfoBase Conference Papers* (2006).
130. V. P. Maltsev, "Scanning flow cytometry for individual particle analysis," *Review of Scientific Instruments* **71**, 243–255 (2000).
131. R. Cotton, S. Osborne, Z. Ulanowski, E. Hirst, P. H. Kaye, and R. S. Greenaway, "The ability of the small ice detector (SID-2) to characterize cloud particle and aerosol morphologies obtained during flights of the FAAM BAe-146 research aircraft," *J Atmos Ocean Technol* **27**, 290–303 (2010).
132. K. B. Aptowicz, Y. Le Pan, S. D. Martin, E. Fernandez, R. K. Chang, and R. G. Pinnick, "Decomposition of atmospheric aerosol phase function by particle size and asphericity from measurements of single particle optical scattering patterns," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **131**, 13–23 (2013).
133. L. Cipelletti and D. A. Weitz, "Ultralow-angle dynamic light scattering with a charge coupled device camera based multispeckle, multitau correlator," *Review of Scientific Instruments* **70**, 3214–3221 (1999).
134. M. H. Asghar, F. Placido, and S. Naseem, "Characterization of reactively evaporated TiO<sub>2</sub> thin films as high and medium index layers for optical applications," *The European Physical Journal Applied Physics* **35**, 177–184 (2006).
135. S. Walters, J. Zallie, G. Seymour, Y. Le Pan, G. Videen, and K. B. Aptowicz, "Characterizing the size and absorption of single nonspherical aerosol particles from angularly-resolved elastic light scattering," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **224**, 439–444 (2019).
136. A. Ansmann, A. Petzold, K. Kandler, I. Tegen, M. Wendisch, D. Müller, B. Weinzierl, T. Müller, and J. Heintzenberg, "Saharan Mineral Dust Experiments SAMUM-1 and SAMUM-2: What have we learned?," *Tellus B Chem Phys Meteorol* **63**, 403–429 (2011).
137. N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, I. Uno, K. Asai, T. Endoh, and T. Nakajima, "Observation of dust and anthropogenic aerosol plumes in the Northwest Pacific with a two-wavelength polarization lidar on board the research vessel Mirai," *Geophys Res Lett* **29**, (2002).

138. B. Redding, Y.-L. Pan, C. Wang, and H. Cao, "Polarization-resolved near-backscattering of airborne aggregates composed of different primary particles," *Opt Lett* **39**, 4076 (2014).
139. R. Fu, C. Wang, O. Muñoz, G. Videen, J. L. Santarpia, and Y. Le Pan, "Elastic back-scattering patterns via particle surface roughness and orientation from single trapped airborne aerosol particles," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **187**, 224–231 (2017).
140. T. Sakai, T. Nagai, Y. Zaizen, and Y. Mano, "Backscattering linear depolarization ratio measurements of mineral, sea-salt, and ammonium sulfate particles simulated in a laboratory chamber," *Appl Opt* **49**, 4441–4449 (2010).
141. A. J. Hunt and D. R. Huffman, "A new polarization-modulated light scattering instrument," *Review of Scientific Instruments* **44**, 1753–1762 (1973).
142. I. Yamaguchi, "Phase-Shifting Digital Holography," in *Digital Holography and Three-Dimensional Display*, T.-C. Poon, ed. (Springer US, 2006), pp. 145–171.
143. S. Tamano, Y. Hayasaki, and N. Nishida, "Phase-shifting digital holography with a low-coherence light source for reconstruction of a digital relief object hidden behind a light-scattering medium," *Appl Opt* **45**, 953–959 (2006).
144. S. Boucherit, L. Bouamama, H. Benchickh, J.-M. Lenoir, and S. Simoëns, "Three-dimensional solid particle positions in a flow via multiangle off-axis digital holography," *Opt Lett* **33**, 2095 (2008).
145. S. Feng and J. Wu, "Resolution enhancement method for lensless in-line holographic microscope with spatially-extended light source," *Opt Express* **25**, 24735 (2017).
146. P. Petruck, R. Riesenbergh, and R. Kowarschik, "Partially coherent light-emitting diode illumination for video-rate in-line holographic microscopy," *Appl Opt* **51**, 2333 (2012).
147. E. Darakis, T. Khanam, A. Rajendran, V. Kariwala, T. J. Naughton, and A. K. Asundi, "Microparticle characterization using digital holography," *Chem Eng Sci* **65**, 1037–1044 (2010).
148. W. Zhang, H. Zhang, L. Cao, M. Gehm, Q. Jiang, D. J. Brady, and G. Jin, "Resolution and sampling analysis in digital in-line holography with spherical wave illumination," *Optical Engineering* **59**, 1 (2019).
149. J. Sheng, E. Malkiel, and J. Katz, "Digital holographic microscope for measuring three-dimensional particle distributions and motions," *Appl Opt* **45**, 3893 (2006).
150. H. J. Byeon, K. W. Seo, and S. J. Lee, "Precise measurement of three-dimensional positions of transparent ellipsoidal particles using digital holographic microscopy," *Appl Opt* **54**, 2106 (2015).
151. J. F. Restrepo and J. Garcia-Sucerquia, "Automatic three-dimensional tracking of particles with high-numerical-aperture digital lensless holographic microscopy," *Opt Lett* **37**, 752 (2012).

152. J. Huang, S. Li, Y. Zi, Y. Qian, W. Cai, M. Aldén, and Z. Li, "Clustering-based particle detection method for digital holography to detect the three-dimensional location and in-plane size of particles," *Meas Sci Technol* **32**, (2021).
153. D. J. Stigliani, R. Mittra, and R. G. Semonin, "Particle-Size Measurement Using Forward-Scatter Holography\*," *J Opt Soc Am* **60**, 1059 (1970).
154. K. L. Carder, R. G. Steward, and P. R. Betzer, "In situ holographic measurements of the sizes and settling rates of oceanic particulates.," *J Geophys Res* **87**, 5681–5685 (1982).
155. T. Khanam, M. Nurur Rahman, A. Rajendran, V. Kariwala, and A. K. Asundi, "Accurate size measurement of needle-shaped particles using digital holography," *Chem Eng Sci* **66**, 2699–2706 (2011).
156. J. Sheng, E. Malkiel, and J. Katz, "Digital holographic microscope for measuring three-dimensional particle distributions and motions," *Appl Opt* **45**, 3893–3901 (2006).
157. M. J. Berg, N. R. Subedi, and P. A. Anderson, "Measuring extinction with digital holography: nonspherical particles and experimental validation," *Opt Lett* **42**, 1011 (2017).
158. M. J. Berg, Y. W. Heinson, O. Kemppinen, and S. Holler, "Solving the inverse problem for coarse-mode aerosol particle morphology with digital holography," *Sci Rep* **7**, (2017).
159. M. K. Swami, S. Manhas, P. Buddhiwant, N. Ghosh, A. Uppal, and P. K. Gupta, "Polar decomposition of  $3 \times 3$  Mueller matrix: a tool for quantitative tissue polarimetry," *Opt Express* **14**, 9324 (2006).
160. A. Ben-David, "Mueller matrices and information derived from linear polarization lidar measurements: theory," *Appl Opt* **37**, 2448 (1998).
161. P. Drap and J. Lefèvre, "An Exact Formula for Calculating Inverse Radial Lens Distortions," *Sensors* **16**, 807 (2016).
162. J. Dupont, X. Orlik, R. Ceolato, and T. Dartigalongue, "Spectralon spatial depolarization: towards an intrinsic characterization using a novel phase shift distribution analysis," *Opt Express* **25**, 9544 (2017).
163. A. Bhandari, B. Hamre, Ø. Frette, L. Zhao, J. J. Stamnes, and M. Kildemo, "Bidirectional reflectance distribution function of Spectralon white reflectance standard illuminated by incoherent unpolarized and plane-polarized light," *Appl Opt* **50**, 2431 (2011).
164. T. M. Kreis, M. Adams, and W. P. O. Jueptner, "Methods of digital holography: a comparison," in *Optical Inspection and Micromasurements II*, C. Gorecki, ed. (1997), Vol. 3098, pp. 224–233.
165. R. C. Gonzalez, R. E. Woods, and P. Prentice Hall, *Digital Image Processing*, Pearson Education (2008).
166. L. Vincent and P. Soille, "Watersheds in digital spaces: an efficient algorithm based on immersion simulations," *IEEE Trans Pattern Anal Mach Intell* **13**, 583–598 (1991).

167. C. Leiva, C. Acuña, and D. Castillo, "Development and validation of an online analyzer for particle size distribution in conveyor belts," *Minerals* **11**, (2021).
168. S. R. Biswal, T. Sahoo, and S. Sahoo, "Prediction of grain boundary of a composite microstructure using digital image processing: A comparative study," in *Materials Today: Proceedings* (Elsevier Ltd, 2021), Vol. 41, pp. 357–362.
169. C. M. Sorensen, Y. W. Heinson, W. R. Heinson, J. B. Maughan, and A. Chakrabarti, "Q-space analysis of the light scattering phase function of particles with any shape," *Atmosphere (Basel)* **8**, (2017).
170. M. J. Berg, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti, "Reflection symmetry of a sphere's internal field and its consequences on scattering: a microphysical approach," *Journal of the Optical Society of America A* **25**, 98 (2008).
171. L. Bi, W. Lin, D. Liu, and K. Zhang, "Assessing the depolarization capabilities of nonspherical particles in a super-ellipsoidal shape space," *Opt Express* **26**, 1726 (2018).
172. M. Saito and P. Yang, "Advanced Bulk Optical Models Linking the Backscattering and Microphysical Properties of Mineral Dust Aerosol," *Geophys Res Lett* **48**, (2021).
173. O. Kemppinen, T. Nousiainen, and H. Lindqvist, "The impact of surface roughness on scattering by realistically shaped wavelength-scale dust particles," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **150**, 55–67 (2015).
174. Y. Noh, D. Müller, K. Lee, K. Kim, K. Lee, A. Shimizu, S. W. Kim, I. Sano, and C. Bong Park, "Depolarization ratios retrieved by AERONET sun-sky radiometer data and comparison to depolarization ratios measured with lidar," *Atmos Chem Phys* **17**, 6271–6290 (2017).
175. A. Sinyuk, A. Sinyuk, B. N. Holben, T. F. Eck, T. F. Eck, D. M. Giles, D. M. Giles, I. Slutsker, I. Slutsker, S. Korokin, S. Korokin, J. S. Schafer, J. S. Schafer, A. Smirnov, A. Smirnov, M. Sorokin, M. Sorokin, and A. Lyapustin, "The AERONET Version 3 aerosol retrieval algorithm, associated uncertainties and comparisons to Version 2," *Atmos Meas Tech* **13**, 3375–3411 (2020).
176. O. Dubovik, D. Fuertes, P. Litvinov, A. Lopatin, T. Lapyonok, and I. Dubovik, "A Comprehensive Description of Multi-Term LSM for Applying Multiple a Priori Constraints in Problems of Atmospheric Remote Sensing: GRASP Algorithm, Concept, and Applications," *Frontiers in Remote Sensing* **2**, (2021).
177. D. B. Curtis, B. Meland, M. Aycibin, N. P. Arnold, V. H. Grassian, M. A. Young, and P. D. Kleiber, "A laboratory investigation of light scattering from representative components of mineral dust aerosol at a wavelength of 550 nm," *Journal of Geophysical Research Atmospheres* **113**, (2008).
178. J. C. Gómez Martín, D. Guirado, E. Frattin, M. Bermudez-Edo, P. Cariñanos Gonzalez, F. J. Olmo Reyes, T. Nousiainen, P. J. Gutiérrez, F. Moreno, and O. Muñoz, "On the application of scattering matrix measurements to detection and identification of major types of airborne

- aerosol particles: Volcanic ash, desert dust and pollen," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **271**, (2021).
179. A. Glen and S. D. Brooks, "A new method for measuring optical scattering properties of atmospherically relevant dusts using the Cloud and Aerosol Spectrometer with Polarization (CASPOL)," *Atmos Chem Phys* **13**, 1345–1356 (2013).
180. J. M. Alexander, O. Laskina, B. Meland, M. A. Young, V. H. Grassian, and P. D. Kleiber, "A combined laboratory and modeling study of the infrared extinction and visible light scattering properties of mineral dust aerosol," *Journal of Geophysical Research Atmospheres* **118**, 435–452 (2013).
181. J. C. Gómez Martín, D. Guirado, E. Frattin, M. Bermudez-Edo, P. Cariñanos Gonzalez, J. Olmo Reyes Francisco, T. Nousiainen, P. J. Gutiérrez, F. Moreno, and O. Muñoz, "On the application of scattering matrix measurements to detection and identification of major types of airborne aerosol particles: Volcanic ash, desert dust and pollen," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **271**, (2021).
182. A. J. Durant, C. Bonadonna, and C. J. Horwell, "Atmospheric and environmental impacts of volcanic particulates," *Elements* **6**, 235–240 (2010).
183. O. Munoz, H. Volten, J. W. Hovenier, B. Veihelmann, W. J. van der Zande, L. B. F. M. Waters, and W. I. Rose, "Scattering matrices of volcanic ash particles of Mount St. Helens, Redoubt, and Mount Spurr Volcanoes," *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres* **109**, 1–16 (2004).
184. S. Merikallio, O. Muñoz, A. Sundström, T. H. Virtanen, M. Horttanainen, G. de Leeuw, and T. Nousiainen, "Optical modeling of volcanic ash particles using ellipsoids," *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* **120**, 4102–4116 (2015).
185. M. Manzoli, O. Tamaro, A. Marocco, B. Bonelli, G. Barrera, P. Tiberto, P. Allia, J. C. Matéo-Vélez, A. Roggero, E. Dantras, R. Arletti, M. Pansini, and S. Esposito, "New Insights in the Production of Simulated Moon Agglutinates: The Use of Natural Zeolite-Bearing Rocks," *ACS Earth Space Chem* **5**, 1631–1646 (2021).
186. F. S. Freyria, A. Marocco, S. Esposito, B. Bonelli, G. Barrera, P. Tiberto, P. Allia, P. Oudayer, A. Roggero, J. C. Matéo-Vélez, E. Dantras, and M. Pansini, "Simulated Moon Agglutinates Obtained from Zeolite Precursor by Means of a Low-Cost and Scalable Synthesis Method," *ACS Earth Space Chem* **3**, 1884–1895 (2019).
187. J. Escobar-Cerezo, O. Muñoz, F. Moreno, D. Guirado, J. C. Gómez Martín, J. D. Goguen, E. J. Garboczi, A. N. Chiramonti, T. Lafarge, and R. A. West, "An Experimental Scattering Matrix for Lunar Regolith Simulant JSC-1A at Visible Wavelengths," *Astrophys J Suppl Ser* **235**, 19 (2018).
188. A. Bain, A. Rafferty, and T. C. Preston, "The Wavelength-Dependent Complex Refractive Index of Hygroscopic Aerosol Particles and Other Aqueous Media: An Effective Oscillator Model," *Geophys Res Lett* **46**, 10636–10645 (2019).

189. K. B. Aptowicz, Y. Le Pan, S. D. Martin, E. Fernandez, R. K. Chang, and R. G. Pinnick, "Decomposition of atmospheric aerosol phase function by particle size and asphericity from measurements of single particle optical scattering patterns," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **131**, 13–23 (2013).
190. J. Jung and Y. Park, "Spectro-angular light scattering measurements of individual microscopic objects," *Opt Express* **22**, 4108 (2014).
191. R. Cotton, S. Osborne, Z. Ulanowski, E. Hirst, P. H. Kaye, and R. S. Greenaway, "The ability of the small ice detector (SID-2) to characterize cloud particle and aerosol morphologies obtained during flights of the FAAM BAe-146 research aircraft," *J Atmos Ocean Technol* **27**, 290–303 (2010).
192. M. I. Mishchenko, J. W. Hovenier, and D. W. Mackowski, "Single scattering by a small volume element," *Journal of the Optical Society of America A* **21**, 71 (2004).
193. M. I. Mishchenko, L. Liu, and G. Videen, "Conditions of applicability of the single-scattering approximation," *Opt Express* **15**, 7522 (2007).
194. E. Zubko, H. Kimura, Y. Shkuratov, K. Muinonen, T. Yamamoto, H. Okamoto, and G. Videen, "Effect of absorption on light scattering by agglomerated debris particles," *J Quant Spectrosc Radiat Transf* **110**, 1741–1749 (2009).
195. D. D. Duncan and M. E. Thomas, "Particle shape as revealed by spectral depolarization," *Appl Opt* **46**, 6185 (2007).
196. W. Tan, Y. Yu, C. Li, J. Li, L. Kang, H. Dong, L. Zeng, and T. Zhu, "Profiling Aerosol Liquid Water Content Using a Polarization Lidar," *Environ Sci Technol* **54**, 3129–3137 (2020).
197. V. Le, H. Lobo, E. J. O'Connor, and V. Vakkari, "Long-term aerosol particle depolarization ratio measurements with HALO Photonics Doppler lidar," *Atmos Meas Tech* **17**, 921–941 (2024).
198. J. Ren, W. Tan, X. Tian, Z. Wu, C. Li, J. Li, C. Zhao, D. Liu, L. Kang, and T. Zhu, "Retrieval of aerosol liquid water content from high spectral resolution lidar," *Science of the Total Environment* **799**, (2021).
199. M. J. Abuleil and I. Abdulhalim, "Tunable achromatic liquid crystal waveplates," *Opt Lett* **39**, 5487 (2014).
200. A. Messaadi, M. M. Sánchez-López, A. Vargas, P. García-Martínez, and I. Moreno, "Achromatic linear retarder with tunable retardance," *Opt Lett* **43**, 3277 (2018).
201. J. M. Herrera-Fernandez, J. L. Vilas, L. M. Sanchez-Brea, and E. Bernabeu, "Design of superachromatic quarter-wave retarders in a broad spectral range," *Appl Opt* **54**, 9758–9762 (2015).
202. M. J. Berg, K. Aleau, and R. Ceolato, "Measuring extinction with digital holography: noisy holograms," *Opt Express* **31**, 43213 (2023).

203. M. Trusiak, J. A. Picazo-Bueno, P. Zdankowski, and V. Micó, "DarkFocus: numerical autofocusing in digital in-line holographic microscopy using variance of computational dark-field gradient," *Opt Lasers Eng* **134**, (2020).
204. F. Gaudfrin, "Lidar supercontinuum pour la caractérisation spectrale des milieux diffusants à haute résolution spatiale : Étude numérique et développement instrumental," (2020).

## **Annexe : Articles publiés**

---





# Two-dimensional small-angle scattering from single particles in infrared with a lensless technique

ROMAIN CEOLATO,<sup>1,\*</sup> KILLIAN ALEAU,<sup>1</sup> LUCAS PAULIEN,<sup>1</sup> FREDERIC FOSSARD,<sup>1,2</sup> EDMUNDO REYNOSO-LARA,<sup>3</sup> AND MATTHEW J. BERG<sup>4</sup>

<sup>1</sup>ONERA, The French Aerospace Lab, FR 31055, France

<sup>2</sup>LEM, UMR 104 CNRS-ONERA, Université Paris Saclay, F-92322 Châtillon, France

<sup>3</sup>Benemérita Universidad Autónoma de Puebla, Puebla 72570, Mexico

<sup>4</sup>Kansas State University, Department of Physics, 1228 N. 17<sup>th</sup> Street, Manhattan, KS 66506-2601, USA

\*[Romain.Ceolato@onera.fr](mailto:Romain.Ceolato@onera.fr)

**Abstract:** An experiment is described where two-dimensional small-angle light scattering (2D-SALS) patterns from single particles are measured in the infrared through a lens-free approach. Spatial filtering is employed to separate scattered light from unscattered light to within approximately one degree from the forward direction. Non-planar reflective elements are used in the filtering process, permitting 2D-SALS measurements to be done without chromatic aberrations over a broad spectral range and from 0.8 to 8 degrees in the polar scattering angle and zero to 360 degrees in the azimuthal angle. Patterns from spherical microparticles are presented along with nonspherical particles including volcanic ash and salt. An asymmetry analysis is applied to demonstrate an ability to differentiate spherical from nonspherical particles from the 2D-SALS patterns.

© 2020 Optical Society of America under the terms of the [OSA Open Access Publishing Agreement](#)

## 1. Introduction

Aerosol-radiation interactions directly affect Earth's radiation budget and new measurement techniques for the radiative properties of aerosols are of utmost importance for improved remote sensing capabilities [1]. Laboratory knowledge about how aerosols scatter light is crucial for quantitative radiative-transfer calculations and climate modeling efforts, which rely on accurate information about the light-scattering properties of aerosols, e.g. carbonaceous aerosols, volcanic ash, and mineral dust [2,3]. Although aerosol particles are known to present non-spherical geometries in general, many radiative transfer and climate models continue to use spherical-particle proxies to account for the light-scattering effects of real aerosols. Such approximations for particle shape are known to yield incorrect estimations in remote-sensing retrievals [4,5].

Light-scattering is a powerful method to characterize micron-scale particulate matter, especially aerosol particles, where the collection of particle samples for detailed analysis is either impractical or impossible. By measuring how light disperses in angle upon scattering, a variety of characteristics can be estimated. For example, a particle will exhibit a so-called Guinier region where the scattered-light intensity as a function of the polar scattering angle  $\theta$  exhibits a simple power-law relationship [6]. If the particle is larger than the wavelength, this relationship yields an estimate for the particle size. More information, related to particle shape for example, can be obtained if the scattering pattern is measured over two angles, i.e., the polar  $\theta$  and azimuthal  $\phi$  angles. By changing the wavelength, these analyses can be extended to cover a wider variety of particle size and shapes, thus enhancing their analytical value.

The  $\theta$ -dependence of a light-scattering pattern for small  $\theta$  is related to the particle's largest physical dimensions. Particle sizing via Guinier analysis, for example, can therefore require measuring the scattering pattern to angles close to the forward direction. A wide variety of

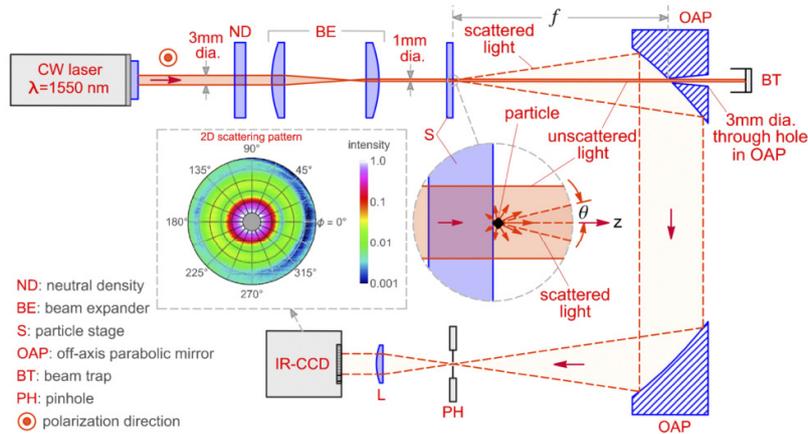
particles sizes and shapes can be characterized by such analysis. These measurements are challenging, however, because in many situations the majority of light incident on a particle is unscattered and will dominate the scattered light at a detector viewing small angles. One approach to separate intense unscattered light from near-forward scattered light involves a lens that removes the former light in the lens's Fourier plane via a spatial filter [7–12]. Yet, refractive elements introduce chromatic aberration, which complicate the use of this approach with broadband light for instance, and often only one-dimensional, i.e., single angle, scattering measurements are made as in [8,11,12]. Here, we describe an experiment based on the spatial-filtering concept in [9] where two-dimensional small angle light scattering (2D-SALS) patterns of microparticles are measured using reflective elements only. This is achieved with a pair of silver off-axis parabolic mirrors, which are immune to chromatic aberrations over a broad spectral range.

## 2. Experiment design

Figure 1 shows the experimental arrangement for lens-free 2D-SALS measurements. An infrared, CW laser of wavelength  $\lambda = 1550$  nm (Thorlabs, LDM1550, 4.5 mW) and beam diameter of 3 mm is attenuated by a neutral density filter (ND). The beam is then contracted to  $\sim 1$  mm in diameter by a reversed beam-expander (BE) and then illuminates microparticles deposited on an anti-reflection (AR) coated  $\text{CaF}_2$  window, which is called the particle stage (S). Particles are deposited on S from bulk-powder samples of the various particle types discussed below. The particle coated surface of S is then observed by a microscope while compressed air is applied to remove particles such that the number-density remaining is low enough to permit a only single particle to be illuminated by the incident beam. Once done, S is placed in the experimental arrangement and translated until a single particle resides in the beam. As shown in the inset in Fig. 1, the particle resides on the side of S facing away from the laser source. As such, it is only backscattered light from the particle that can interact with the stage glass. This interaction is weak, however, because the backscattered light is much weaker than the forward-scattered light and because the stage is AR coated. For this reason, we neglect the interaction of the particle with the stage glass.

Because the particles are approximately 50  $\mu\text{m}$  in size, the majority of the beam passes by the particles unscattered. Scattered and unscattered light are then received by a 52 mm diameter off-axis parabolic mirror (OAP) containing a 3 mm diameter through-hole (Thorlabs, MPD249H-P01) as shown in Fig. 1. The focal length of this mirror is  $f = 102$  mm, which corresponds to the separation between S and the mirror. The diverging scattered light from the particle received by the mirror is thus collimated and reflected by  $90^\circ$ , while the unscattered (collimated) beam passes through the hole in the mirror. With the  $z$ -axis along the incident-beam direction, scattered light over the polar  $\theta$  and azimuthal  $\phi$  scattering angles is collected and relayed by another OAP mirror (Thorlabs, MPD249-P01) without a through-hole to an infrared CCD sensor (Xenics, Bobcat-320). In this way, weak intensity 2D-SALS scattering patterns are readily separated from the intense unscattered incident beam.

The range of scattering angles is determined by the OAP mirror diameter (52 mm), the through-hole diameter (3 mm), and focal length  $f$  (102 mm). These parameters show that the (polar) scattering angle  $\theta$  ranges from approximately  $0.8^\circ \lesssim \theta \lesssim 14^\circ$  and all azimuthal angles  $\phi$  are collected,  $0^\circ \leq \phi < 360^\circ$ . In practice, however, the range of  $\theta$  is more restricted as described below due to stray light noise. Once the scattered light reflects from the second OAP mirror in Fig. 1, it passes through a 1 mm diameter pinhole (PH, Thorlabs, P1000D), and is then collimated by a lens ( $L, f = 16$  mm), and is finally received by the IR-CCD sensor. The lens used here is for convenience but could be replaced by another curved, metal mirror if chromatic aberrations are a concern. The purpose of this PH is to block light not originating from the particles on the stage, S. In particular, due to the Gaussian character of the incident-beam profile, a portion of the light will scatter from the rim of the through-hole in the first OAP mirror. If this light is not removed,



**Fig. 1.** Diagram of the arrangement used to measure infrared 2D-SALS patterns from microparticles. Particles are deposited onto the anti-reflection coated window, the stage, labeled S in the diagram, where the right inset shows the  $z$ -axis and polar scattering angle  $\theta$ . Incident, i.e., unscattered light, is indicated by solid lines and scattered light is shown in dash. Scattered light is separated from unscattered light by the off-axis parabolic (OAP) mirror with a 3 mm diameter through hole. The scattered light is then relayed by another OAP to the IR-CCD sensor. An example of a typical 2D-SALS pattern is shown in false color in the left inset.

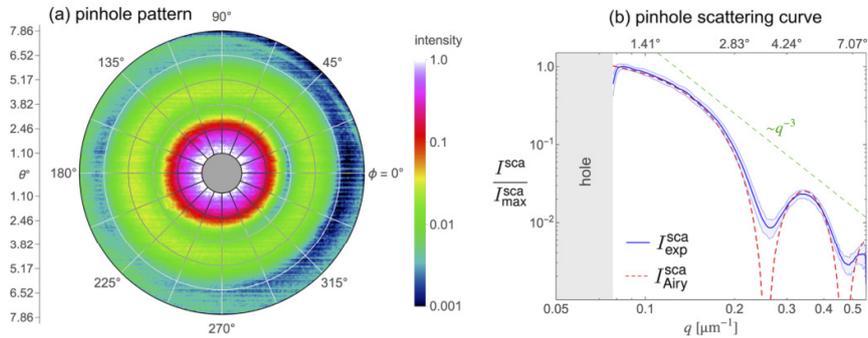
it can significantly disturb the scattering pattern. The majority of this unwanted light is blocked by the PH and clear 2D-SALS patterns are resolved. The cost of doing so, however, is that the scattering pattern is vignetted, reducing the maximum range of  $\theta$  to approximately  $\theta \lesssim 8^\circ$ .

### 3. Calibration

The 2D scattering patterns measured by the sensor must be mapped from sensor-pixel number to scattering direction as measured by the angles  $(\theta, \phi)$ . To achieve this, a 30  $\mu\text{m}$  diameter pinhole (Thorlabs, P30D) is placed at the location of the particle stage, producing the Airy far-field diffraction pattern across the first OAP mirror in Fig. 1. The center of the recorded pattern is then found by estimating the center of the missing portion of the pattern that is due to the through-hole in the OAP mirror. This center point corresponds to the forward-scattering direction,  $\theta = 0$ . Next, the measured pattern is fitted to the theoretical expectation, the Airy function. With  $k = 2\pi/\lambda$ , that expectation is given by:

$$I_{\text{Airy}}^{\text{sca}}(\theta, \phi) = I_0 \left[ \frac{2J_1(kR_{\text{ph}} \sin \theta)}{kR_{\text{ph}} \sin \theta} \right]^2, \quad (1)$$

where  $I_0 = I(\theta = 0)$  is the intensity of the incident beam,  $J_1$  is the first-order Bessel function, and  $R_{\text{ph}}$  is the radius of the pinhole. The radial distance  $d$  from the center of the pattern in terms of the number of pixels is related to the  $\theta$  scattering angle by a constant  $\alpha$  as:  $\theta = \arctan d/\alpha$ . From Fig. 1,  $\alpha$  can be understood as approximately the focal length of the lens L before the sensor. By adjusting  $\alpha$  iteratively, the Airy pattern is fit to the measured pattern, thus establishing the mapping from sensor pixels to  $\theta$ , i.e.,  $\theta = \theta(\alpha, d)$ . This same mapping is then used for the other scattering patterns that follow. Figure 2(a) shows the measured 2D-SALS pattern for this pinhole in false-color on a log scale.



**Fig. 2.** Measured and calculated pinhole diffraction pattern used for calibration of the arrangement in Fig. 1. In (a) is the 2D-SALS pattern in false color on a log scale. Plot (b) shows the azimuthal average of this pattern, i.e., the scattering curve  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$ , as a function of  $q$  on a log-log scale normalized by the maximum measured intensity  $I_{\text{max}}^{\text{sca}}$ . The polar scattering angle is also shown in degrees on the top horizontal axis for comparison to (a). The fit Airy-pattern  $I_{\text{Airy}}^{\text{sca}}$  is shown in red dash. Blue shaded regions around the curve in (b) represent the extent of variation in  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$  for different  $\phi$  angles in the average. Note, the gray-shaded region in both plots show the portion of the pattern lost from the through-hole in the OAP mirror in Fig. 1.

By averaging the measured pattern over the azimuthal angle  $\phi$ , a scattering curve can be generated  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}(\theta) = \langle I_{\text{exp}}^{\text{sca}}(\theta, \phi) \rangle_{\phi}$ , which is plotted in Fig. 2(b) on a log-log scale as a function of the scattering wave-vector magnitude  $q = 2k \sin(\theta/2)$ . The purpose of doing so is because scattering curves often exhibit average power-law functionalities that depend on the size and physical dimension of the scattering object [13]. Here we find an average  $q^{-3}$  power-law in Fig. 2(b), which is in agreement with [14]. A portion of the curve for small  $q$  is missing due to the light lost from the through-hole in the OAP mirror as is shown by the gray shaded region labeled "hole" in the plot. The scattering curve is normalized by the maximum intensity  $I_{\text{max}}^{\text{sca}}$  measured in the 2D pattern, and thus, its extrapolation to  $\theta = 0$ , or  $q = 0$ , exceeds one. The blue shaded region about the scattering curve displays the maximum extent of variation of the scattered intensity at different  $\phi$  angles for a given  $q$ . Also shown in Fig. 2(b) is the Airy pattern,  $I_{\text{Airy}}^{\text{sca}}$ , revealing the close agreement between this theoretical expectation and the measured pattern.

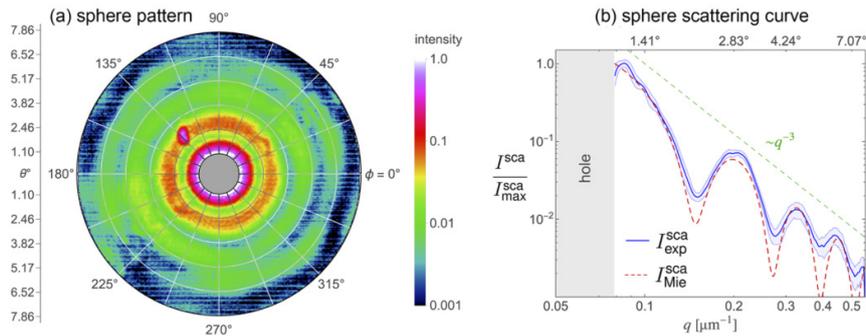
#### 4. Measurements for single microparticles

To explore the capability of the method, several types of particles ranging from spherical to irregularly shaped are deposited on the stage S in Fig. 1 and the 2D-SALS patterns are measured and analyzed in the following. While these particles are fixed to S, and thus are not aerosols, they are representative of important classes of aerosols occurring in the coarse-mode aerosol (CMA) size range in the atmosphere, i.e., particles larger than one micron in size. One such class examined below is that of volcanic ash particles.

##### 4.1. Monodisperse spherical particles

Figure 3 shows the measured 2D-SALS pattern and scattering curve for a red-dyed polyethylene microsphere (Cospheric, REDPMS-0.98 45-53 $\mu\text{m}$ ). One can see the expected nested-ring structure in the 2D pattern. In Fig. 3(b), a comparison to Mie theory  $I_{\text{Mie}}^{\text{sca}}$  is shown. Here, the Mie solution to Maxwell's equations based on [15] is coded in Mathematica, which provides  $I_{\text{Mie}}^{\text{sca}}(\theta, \phi)$  assuming given values for the sphere diameter  $D$  and complex-valued refractive index

$m$ . By adjusting  $D$  and  $m$ , and azimuthally averaging  $I_{\text{Mie}}^{\text{sca}}(\theta, \phi)$ , a curve is found that qualitatively agrees with the measured curve,  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$ . The values  $D = 50.66 \mu\text{m}$  and  $m = 1.43 + 0.0245i$  yield this curve (in red dashed line). Based on the manufacturer-reported particle-size variance of  $D = 45 - 53 \mu\text{m}$ , the  $D$  fit-value appears reasonable. However, the refractive index for pure polyethylene is reported in [16] to be approximately  $m = 1.54261 + 2.45 \times 10^{-6}i$  at  $\lambda = 1550 \text{ nm}$ , which differs substantially from the fit-value of  $m = 1.43 + 0.0245i$ . A possible explanation for this disagreement is that the exact chemical properties of the sphere material are not available from the manufacturer. This uncertainty must affect the refractive index  $m$  to some degree in relation to the literature value and the extent of this effect is not known.



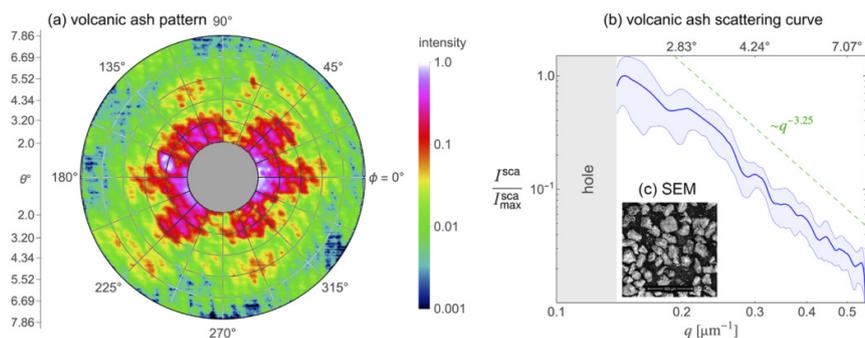
**Fig. 3.** Measured 2D-SALS pattern and scattering curve for a spherical microparticle. A 50  $\mu\text{m}$  diameter polyethylene microspheres is placed on S in Fig. 1 and the measured 2D-SALS pattern is shown in (a) in false color on a log scale. Plot (b) shows the azimuthal average of this pattern, i.e., the scattering curve  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$ , as a function of  $q$  on a log-log scale. The red-dashed curve in (b) shows the Mie theory result using a sphere diameter of  $D = 50.66 \mu\text{m}$  and refractive index  $m = 1.43 + 0.0245i$ .

#### 4.2. Volcanic ash

Clouds of volcanic ash generated during explosive eruptions have significant consequences on climate, weather, air quality and health, and aircraft flight safety. Ash particles show a wide variety of irregular shapes with wide size distributions from hundreds of nm to hundreds of  $\mu\text{m}$ . Among these, very fine volcanic ash with diameters less than 60  $\mu\text{m}$ , following the physical volcanology-derived terminology [17], are of particular interest as they can remain suspended for days to weeks [18]. Limited information is available for the radiative and optical properties of volcanic ash, which complicates efforts to reliably characterize ash in remote-sensing retrievals [19] using infrared signatures [20].

Figure 4 shows the 2D-SALS measurements for a single volcanic ash particle. The ash is collected from the vicinity of the Popocatepetl volcano (coordinates 19.02°N, 98.62°W, 5454 m above sea-level), one of Mexico's most active volcanoes threatening a densely populated area of 30 million inhabitants including Mexico City and Puebla. Scanning electron microscope (SEM) images of the ash are shown inset in Fig. 4(b). Here, one can see the irregular nonspherical shape of these particles with a fragmented porous structure originating from the rupture of expanding gas bubbles during magma solidification in explosive decompression. With regard to angular structure, the ash pattern in Fig. 4(a) shows a significantly greater degree of complexity than the spherical particle in Fig. 3, which is typical of a highly nonspherical particle. However, if the pattern is azimuthally averaged to obtain the scattering curve, Fig. 4(b), one finds a relatively smooth power-law behavior of  $q^{-3.25}$ . Such behavior is reminiscent of the single power-law

seen in scattering curves of mineral dust in [21]. Yet the power laws found for dust in [21] differs from the  $q^{-3.25}$  seen here, which may be due to the detailed difference between mineral dust and volcanic-ash particle morphology. While for fractal aggregates such as soot-aerosol particles where the  $q$ -space power law is related to the fractal dimension of the particle's shape, no clear explanation is known for the power law behavior for non-fractal irregular particles like the ash here. The power-law behavior for dust in [21] is empirically established and a physical explanation for the behavior remains unknown. Such an explanation is known, to some extent, for scattering from spheres and spheroids, see [22,23], and we suspect that a similar explanation may apply to dust measurements as well. Yet, we do not investigate this point here.

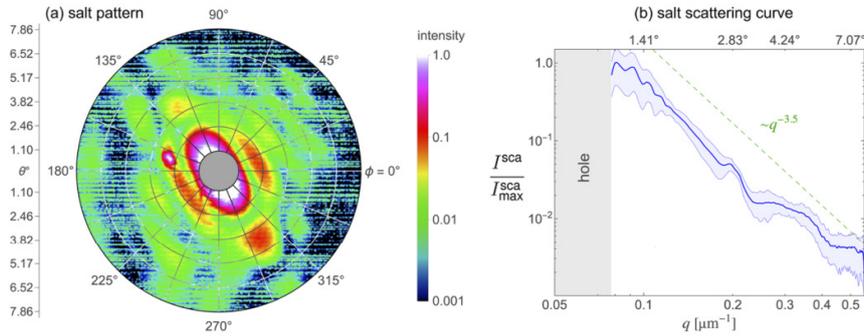


**Fig. 4.** Measured 2D-SALS pattern (a) and scattering curve (b) for a single volcanic ash particle. The ash sample originates from the Popocatépetl volcano in Mexico. Inset in (b) is an SEM image of representative particles taken from the ash sample and shows a wide variety of irregularly shaped particles.

#### 4.3. Sea-spray particles

Another important category of particles are sea-spray aerosols. These particles are composed primarily of salt crystals, or agglomerates thereof, and can vary from less than one micron to several microns in size [24]. Micron scale salt particles also serve as a good particle source to examine shape nonsphericity in scattering patterns as the particles are often cubic or cube-like in morphology.

Figure 5 presents the measured 2D-SALS pattern and curve for a single salt crystal, where the azimuthal symmetry seen in Fig. 3 is completely lost. Indeed, one finds here a pattern reminiscent of diffraction from a rectangular aperture in an opaque screen, implying that the particle observed is somewhat rectangular in profile. Such a conclusion is supported by the similar-structure scattering patterns measured in [25] where the particle shape is known unambiguously.



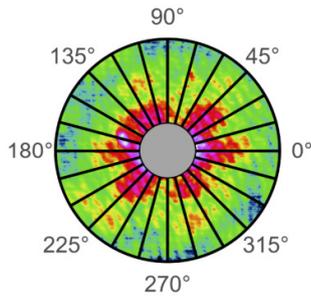
**Fig. 5.** Measured 2D-SALS pattern (a) and scattering curve (b) for a single salt crystal particle. Notice the qualitative similarity of the 2D pattern's shape with diffraction from a rectangular aperture in an opaque screen.

#### 4.4. Asymmetry analysis

The differentiation between spherical and nonspherical particle shapes can be useful, for example, to infer the presence of liquid-drop particles and ice or mineral dust in atmospheric aerosols. While this is readily achieved from backscattering measurements, a simple method is also available to do so from scattering around the near-forward direction [26,27]. In short, the concept is to partition the 2D-SALS pattern into  $N$  total angular segments of equal size in the azimuthal angle  $\phi$ , see Fig. 6. The scattered-light intensity in each segment is found and averaged to arrive at a single number, the asymmetry factor  $A_f$ , that describes the degree of azimuthal asymmetry in the pattern. If  $I_{\text{tot}}^{\text{sca}}$  is the average scattered intensity in the entire 2D-SALS pattern and  $I_i^{\text{sca}}$  is the intensity in the  $i^{\text{th}}$  azimuthal segment, then the asymmetry factor is given by

$$A_f = \frac{k_N}{I_{\text{tot}}^{\text{sca}}} \sqrt{\sum_{i=1}^N (I_{\text{tot}}^{\text{sca}} - I_i^{\text{sca}})^2}, \quad (2)$$

where  $k_N = 100/\sqrt{N(N-1)}$  such that  $0 \leq A_f < 100$  [27]. Particles producing a 2D pattern with a high degree of azimuthal symmetry, such as spheres, exhibit  $A_f \lesssim 10$  whereas nonspherical particles typically give values of  $A_f > 10$  [26].



Particle type	$A_f$ [0-100]
Polyethylene microsphere	$6.92 \pm 1.50$
Volcanic ash	10.5
Sea-spray particle	16.8

**Fig. 6.** Asymmetry factor for the particles presented in Figs. 3–5. Equation (2) is applied to the patterns for each particle and the inset image shows the ash pattern from Fig. 4 with the azimuthal zones specified.

Following [26], we choose  $N = 24$  and apply Eq. (2) to the patterns in Figs. 3–5, reporting the values for  $A_f$  in Fig. 6. In the case of spherical particles, 2D-SALS patterns for nine different spheres are measured, permitting the variation in the  $A_f$  reported. The results are consistent with the conclusions in [26], showing that the asymmetry factor is indeed effective in differentiating between spherical and nonspherical particles from the 2D-SALS patterns.

## 5. Conclusion

This work demonstrates a new method to measure two-dimensional small-angle light scattering patterns from single microparticles. All-reflective optical elements achieve spatial filtering that separates scattered and unscattered light down to approximately one degree from the forward direction. The absence of lenses means that chromatic aberrations would be avoided if scattering measurements were performed with broadband light. Examples of scattering patterns are presented for spherical and nonspherical microparticles fixed to a glass stage including polyethylene microspheres, volcanic ash, and a salt crystal. Using an asymmetry analysis, we show that spherical-particle patterns can be differentiated from nonspherical-particle patterns based on the azimuthal-angle symmetry. While only super-micron sized particles are investigated ( $\sim 50 \mu\text{m}$ ), the approach has potential for smaller particles with further improvement in the experimental design. For example, decreasing the wavelength and increasing the OAP-mirror diameters may allow scattering patterns for single-micron particles, or smaller, to be measured in this manner and thereby expand its applicability to a wider variety of particles.

## Funding

ONERA, The French Aerospace Lab (PROMETE project); National Science Foundation (1665456); Air Force Office of Scientific Research (FA9550-19-1-0078); Light-scattering project (BUAP University project).

## Acknowledgments

The authors are grateful for helpful discussions with Nicolas Riviere and Chris Sorensen.

## Disclosures

The authors declare that there are no conflicts of interest related to this article.

## References

1. S. J. Ghan, X. Liu, R. C. Easter, R. Zaveri, P. J. Rasch, J.-H. Yoon, and B. Eaton, "Toward a minimal representation of aerosols in climate models: Comparative decomposition of aerosol direct, semidirect, and indirect radiative forcing," *J. Clim.* **25**(19), 6461–6476 (2012).
2. L. Paulien, R. Ceolato, L. Soucasse, F. Enguehard, and A. Soufiani, "Lidar-relevant radiative properties of soot fractal aggregate ensembles," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **241**, 106706 (2020).
3. A. Miffre, D. Cholleton, and P. Rairoux, "Laboratory evaluation of the scattering matrix elements of mineral dust particles from 176.0 up to 180.0-exact backscattering angle," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **222-223**, 45–59 (2019).
4. A. Vogel, S. Diplas, A. J. Durant, A. S. Azar, M. F. Sunding, W. I. Rose, A. Sytchkova, C. Bonadonna, K. Krüger, and A. Stohl, "Reference data set of volcanic ash physicochemical and optical properties," *J. Geophys. Res.: Atmos.* **122**(17), 9485–9514 (2017).
5. R. Ceolato, F. Gaudfrin, O. Pujol, N. Riviere, M. J. Berg, and C. M. Sorensen, "Lidar cross-sections of soot fractal aggregates: Assessment of equivalent-sphere models," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **212**, 39–44 (2018).
6. C. M. Sorensen and D. Shi, "Guinier analysis for homogeneous dielectric spheres of arbitrary size," *Opt. Commun.* **178**(1-3), 31–36 (2000).
7. M. J. Berg, S. C. Hill, Y.-L. Pan, and G. Videen, "Two-dimensional guinier analysis: Application to single aerosol particles in-flight," *Opt. Express* **18**(22), 23343–23352 (2010).
8. F. Ferri, "Use of a charge coupled device camera for low-angle elastic light scattering," *Rev. Sci. Instrum.* **68**(6), 2265–2274 (1997).

9. M. J. Berg, S. C. Hill, G. Videen, and K. P. Gurton, "Spatial filtering technique to image and measure two-dimensional near-forward scattering from single particles," *Opt. Express* **18**(9), 9486–9495 (2010).
10. M. J. Berg, Y. W. Heinson, O. Kempainen, and S. Holler, "Solving the inverse problem for coarse-mode aerosol particle morphology with digital holography," *Sci. Rep.* **7**(1), 9400 (2017).
11. Y. C. Agrawal and O. A. Mikkelsen, "Empirical forward scattering phase functions from 0.08 to 16 deg. for randomly shaped terrigenous 1-21  $\mu\text{m}$  sediment grains," *Opt. Express* **17**(11), 8805–8814 (2009).
12. I. MacCallum, A. Cunningham, and D. McKee, "The measurement and modelling of light scattering by phytoplankton cells at narrow forward angles," *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **6**(7), 698–702 (2004).
13. C. M. Sorensen, "Q-space analysis of scattering by particles: A review," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **131**, 3–12 (2013).
14. W. R. Heinson, A. Chakrabarti, and C. M. Sorensen, "Crossover from spherical particle mie scattering to circular aperture diffraction," *J. Opt. Soc. Am. A* **31**(11), 2362–2364 (2014).
15. C. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, 1983).
16. X. Zhang, J. Qiu, X. Li, J. Zhao, and L. Liu, "Complex refractive indices measurements of polymers in visible and near-infrared bands," *Appl. Opt.* **59**(8), 2337–2344 (2020).
17. W. Rose and A. Durant, "Fine ash content of explosive eruptions," *J. Volcanol. Geotherm. Res.* **186**(1-2), 32–39 (2009).
18. W. I. Rose and A. J. Durant, "Fate of volcanic ash: Aggregation and fallout," *Geology* **39**(9), 895–896 (2011).
19. P. Chazette, M. Bocquet, P. Royer, V. Winiarek, J.-C. Raut, P. Labazuy, M. Gouhier, M. Lardier, and J.-P. Cariou, "Eyjafjallajökull ash concentrations derived from both lidar and modeling," *J. Geophys. Res. Atmospheres* **117**(D20), (2012).
20. A. Kylling, M. Kahnert, H. Lindqvist, and T. Nousiainen, "Volcanic ash infrared signature: porous non-spherical ash particle shapes compared to homogeneous spherical ash particles," *Atmos. Meas. Tech.* **7**(4), 919–929 (2014).
21. Y. W. Heinson, J. B. Maughan, W. R. Heinson, A. Chakrabarti, and C. M. Sorensen, "Light scattering q-space analysis of irregularly shaped particles," *J. Geophys. Res.: Atmos.* **121**(2), 682–691 (2016).
22. M. J. Berg, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti, "Explanation of the patterns in mie theory," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **111**(5), 782–794 (2010).
23. M. J. Berg, "Power-law patterns in electromagnetic scattering: A selected review and recent progress," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **113**(18), 2292–2309 (2012).
24. P. K. Quinn, D. B. Collins, V. H. Grassian, K. A. Prather, and T. S. Bates, "Chemistry and related properties of freshly emitted sea spray aerosol," *Chem. Rev.* **115**(10), 4383–4399 (2015).
25. R. Giri, C. Morello, Y. W. Heinson, O. Kempainen, G. Videen, and M. J. Berg, "Generation of aerosol-particle light-scattering patterns from digital holograms," *Opt. Lett.* **44**(4), 819–822 (2019).
26. K. B. Aptowicz, Y.-L. Pan, S. D. Martin, E. Fernandez, R. K. Chang, and R. G. Pinnick, "Decomposition of atmospheric aerosol phase function by particle size and asphericity from measurements of single particle optical scattering patterns," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **131**, 13–23 (2013).
27. R. Cotton, S. Osbprne, Z. Ulanowski, E. Hirst, P. H. Kaye, and R. S. Greenaway, "The ability of the small ice detector (sid-2) to characterize cloud particle and aerosol morphologies obtained during flights of the faam bae-146 research aircraft," *J. Atmos. Ocean Tech.* **27**(2), 290–303 (2010).



## Multispectral small-angle light scattering from particles

ROMAIN CEOLATO,<sup>1,\*</sup>  KILLIAN ALEAU,<sup>1</sup> LUCAS PAULIEN,<sup>1</sup> EDMUNDO REYNOSO-LARA,<sup>2</sup> AND MATTHEW J. BERG<sup>3</sup>

<sup>1</sup>ONERA, The French Aerospace Lab, FR 31055, France

<sup>2</sup>Benemérita Universidad Autónoma de Puebla, Puebla 72570, Mexico

<sup>3</sup>Department of Physics, Kansas State University, 1228 N. 17th St., Manhattan, Kansas 66506-2601, USA

\*Corresponding author: Romain.Ceolato@onera.fr

Received 13 April 2021; revised 20 May 2021; accepted 2 June 2021; posted 2 June 2021 (Doc. ID 427580); published 24 June 2021

**Using a supercontinuum laser, reflective optics, and a spatial filter, we measure two-dimensional small-angle light-scattering patterns for a variety of microparticles including spheres, salt, sand, and volcanic dust. The measurements are done at 13 wavelengths from 450–850 nm, where the absence of refractive optical elements minimizes the effects of chromatic aberration. Qualitative particle-material sensitivity is demonstrated by layering differently colored patterns. Last, the multispectral capability of our device demonstrates a new possibility to probe different  $q$ -space regimes for a given particle in a single measurement.** © 2021 Optical Society of America

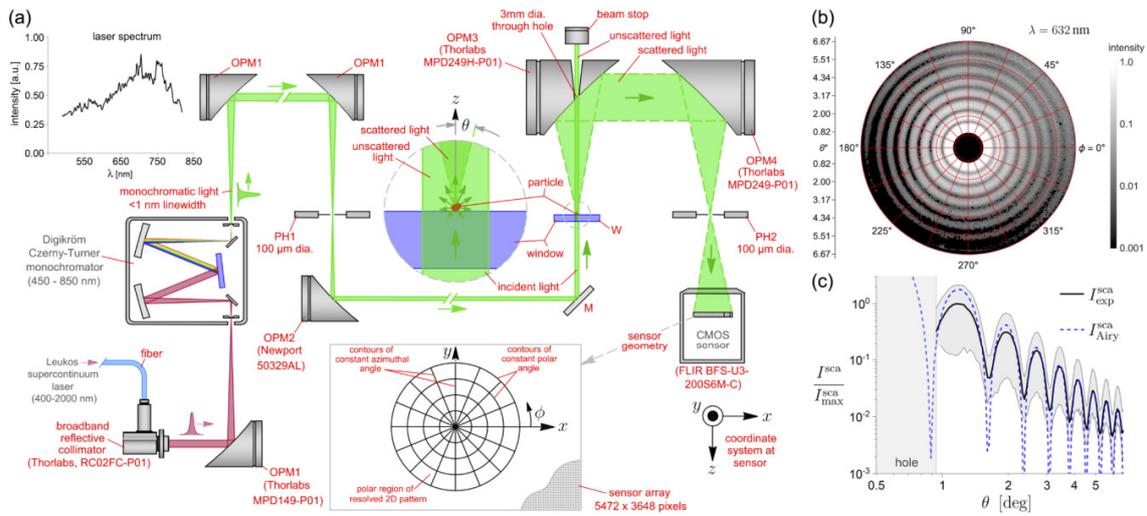
<https://doi.org/10.1364/OL.427580>

Elastic light scattering is a commonly used technique to characterize particles micrometers in size, and smaller, in a contact-free and rapid manner. Small-angle light-scattering (SALS) techniques are especially useful when the particles cannot be collected or immobilized, such as with aerosols. By illuminating a particle with a laser beam, the distribution of scattered light intensity can be measured over one or two angles. Features in this scattering pattern then permit one to occasionally infer important microphysical properties of the particle such as its size [1–3], shape [4], and refractive index [5]. The usefulness of such measurements, however, is often hindered by the so-called inverse problem, which in short is the absence of a unique link between the scattered intensity and microphysical properties. Thus, light-scattering inversion works best when supplementary information is available [6]. For example, if a particle is known to be a homogeneous sphere, such as a liquid drop in an aerosol, then the inverse problem may be overcome, and high-quality measurements of particle size are possible, e.g., see [7]. If the particle shape is unknown, other forms of supplementary information may be useful. For example, one could propose to measure the scattering pattern at multiple wavelengths of light and then search for links between the wavelength-dependent structure of the measured patterns and the particle characteristics. While understanding exactly how to extract useful information from such patterns remains an active area of research [8], this Letter presents a new method

demonstrating how these patterns can be measured over a wavelength range spanning the visible to the near infrared using a supercontinuum laser.

Complications arise from multispectral measurements as the behavior of refractive optical elements varies with wavelength leading to, e.g., the chromatic aberration of lenses. The wavenumber  $k = 2\pi/\lambda$  varies, meaning that a particle with characteristic size  $R$  will have a wavelength-dependent size parameter  $kR$ , which affects the scattering pattern. Moreover, the refractive index  $m$  is also wavelength dependent, and this too affects the pattern's structure. While the wavelength dependence of  $kR$  and  $m$  may be useful for particle characterization, the chromatic aberration of elements in the measurement apparatus is not, and thus, there is reason to eliminate it. In previous work, we show that the lenses typically used in light-scattering apparatuses may be replaced by curved mirrors without negatively impacting the capability and quality of the measurement for a single wavelength [9]. By using only reflective metal optical elements, we extend the concept to a wide selection of monochromatic wavelengths and demonstrate its capabilities with a selection of microparticles.

The experimental arrangement is shown in Fig. 1(a) and begins with a supercontinuum laser with an emission spectrum spanning  $\lambda = 400\text{--}2000$  nm. The laser is fiber-coupled to a broadband reflective collimator, the output of which is focused by a silver off-axis parabolic mirror (OPM1) to the input of a Czerny–Turner monochromator. Here, monochromatic output can be selected with a linewidth less than 1 nm where 13 arbitrary discrete wavelengths are chosen in the range of  $\lambda = 450\text{--}850$  nm. The output of the monochromator is collimated by another OPM1 and relayed to yet another OPM1 that focuses the light into a 100  $\mu\text{m}$  diameter pinhole (PH1). The pinhole removes stray light from the monochromator. Next, a shorter focal-length parabolic mirror (OPM2) collimates and reduces the beam to a diameter of approximately 1 mm and directs it via a mirror (M) to the particle. The particle is placed on an anti-reflection coated glass window (W). The beam scatters from the particle as shown in the center inset in Fig. 1(a). Due to the particle's small size, the majority of the beam passes unperturbed. The small portion of the beam that does scatter proceeds with the unscattered portion to OPM3,



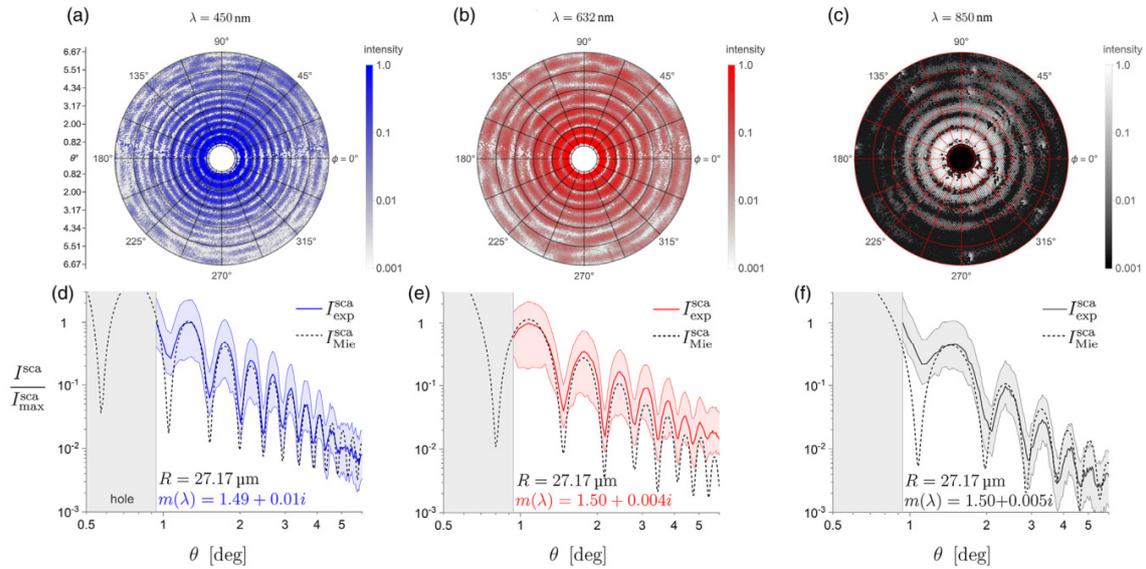
**Fig. 1.** Measurement of multispectral 2D small-angle light-scattering patterns (2D-SALS) from microparticles. (a) Arrangement used to illuminate a particle with wavelengths of light from  $\lambda = 450\text{--}850\text{ nm}$  and record the scattering patterns. The particle resides on the window (W) with detail shown in the inset to the left, while the coordinate system used to analyze the pattern is shown in the bottom inset. (b) Measured pinhole diffraction pattern in log scale used to determine the sensor pixel to scattering angle mapping. (c) Azimuthal average of the pinhole pattern,  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$ , in log–log scale in black and theoretical Airy curve  $I_{\text{Airy}}^{\text{sca}}$  in blue dash. The gray-shaded region around  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$  displays the maximum variation of scattered intensity in  $\phi$  for a given  $\theta$  in the azimuthal average.

which has a 3 mm diameter through-hole at its center. In this configuration, the collimated unscattered beam passes through the hole while the diverging scattered light is collimated by the mirror and redirected to a similar mirror (OPM4) without a through-hole. Upon reaching OPM4, the scattered light is focused into another 100  $\mu\text{m}$  diameter pinhole, which removes most stray light originating from the hole in OPM3. Finally, the scattered light is received by a CMOS image sensor. With the  $z$  axis being the direction of (unscattered) light propagation, as shown in the center inset in Fig. 1(a), the scattered light fills a 2D or two-angle pattern across the sensor in the  $x$ – $y$  plane as shown in the bottom inset. A polar grid with polar (scattering) angle  $\theta$  and azimuthal angle  $\phi$  is shown in the inset to analyze the pattern. In this way, 2D-SALS patterns are measured over the angular ranges of  $\theta \in [0.90^\circ, 6.7^\circ]$  and  $\phi \in [0^\circ, 360^\circ]$  without interference from the intense unscattered portion of the illumination beam. The hole in OPM3 defines the smallest polar angle resolved,  $\theta_{\text{hole}}$ , whereas the (50.8 mm) diameter of the mirror defines the largest angle resolved  $\theta_{\text{max}}$ .

The pixels of a sensor must be associated with angles  $(\theta, \phi)$  through a calibration process. Here, this is done by placing a 50  $\mu\text{m}$  diameter pinhole at the location of the particle stage with the stage removed. This casts the Airy diffraction pattern across the sensor as  $I_{\text{Airy}}^{\text{sca}}(\theta, \phi) = I_0 [2J_1(kR_{\text{ph}} \sin \theta) / (kR_{\text{ph}} \sin \theta)]^2$ , where  $I_0$  is the incident-light intensity,  $J_1(\dots)$  is the Bessel function of the first kind and order, and  $R_{\text{ph}}$  is the pinhole radius. The measurement is performed for  $\lambda = 632\text{ nm}$ . The hole in OPM3 means that on the sensor, this pattern will be missing the central diffraction peak, which provides a way to center the polar grid on the pattern. By comparing the measured Airy pattern to the theoretical form, a mapping of each pixel to the pair  $(\theta, \phi)$  is found as described in [9,10]. The result is shown in log scale in Fig. 1(c),

where the exact forward-scattering direction is the center point of the polar grid. Here, one can see the missing portion of the pattern due to the mirror hole as the black disk at the center. Averaging the 2D pattern in Fig. 1(b) over the azimuthal angle  $\phi$  provides the conventional (polar) scattering curve. The average is obtained by integrating the 2D pattern over  $\phi$  for a given  $\theta$ , i.e.,  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}(\theta) = (1/2\pi) \int_0^{2\pi} I_{\text{exp}}^{\text{sca}}(\theta, \phi) d\phi$ . The resulting curve is then compared to  $I_{\text{Airy}}^{\text{sca}}(\theta)$  to map pixels to scattering angle  $\theta$ . Figure 1(c) shows the result in log–log scale and its comparison to the Airy curve, where the gray rectangular region labeled “hole” denotes the lost portion of the pattern due to the hole in OPM3. Note that the curves are normalized to the maximum measured intensity  $I_{\text{max}}^{\text{sca}}$  in the averaged curve.

With the pixel-to-angle calibration complete, we now investigate in the spectral domain a variety of microparticles with different sizes, shapes, and  $m(\lambda)$ . In Fig. 2, a single microsphere is placed on the stage (W) in Fig. 1(a). The sphere material is polyethylene with a red dye of unspecified identity by the manufacturer (Cospheric, REDPMS-0.98), and it is selected from a polydisperse sample of spheres with sizes ranging from 53–63  $\mu\text{m}$  in diameter. Figures 2(a)–2(c) shows the 2D-SALS patterns in log scale at different wavelengths. One can see the characteristic nested-ring structure of scattering from a sphere and the increasing angular spacing between the rings as well as the decreasing number of rings with  $\lambda$ . In Figs. 2(d)–2(f), the azimuthal average of these patterns is displayed along with a comparison to Mie theory,  $I_{\text{Mie}}^{\text{sca}}$ . To calculate a Mie curve, both the sphere radius  $R$  and refractive index  $m(\lambda)$  must be estimated. While  $R$  is known to be within 26.5–31.5  $\mu\text{m}$ ,  $m(\lambda)$  is not known. Thus, we treat  $R$  and  $m(\lambda)$  as parameters and adjust them until agreement with the measured curve  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$ . This process results in  $R = 27.17\ \mu\text{m}$  and the values of  $m$  shown. We note that this fitting procedure is simplistic, and a variety

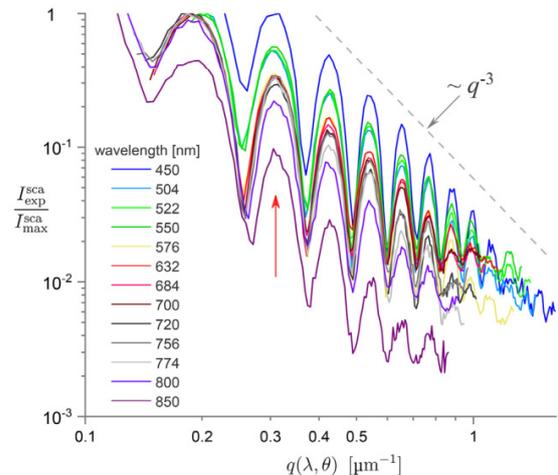


**Fig. 2.** 2D-SALS pattern measurements of a single polyethylene microsphere at different wavelengths. (a)–(c) 2D-SALS patterns for  $\lambda = 450$  nm, 632 nm, and 850 nm, respectively. These patterns are plotted in log scale as indicated. (d)–(f) Azimuthal average (solid line) of the patterns in (a)–(c) shown in log–log scale as a function of  $\theta$ , similar to Fig. 1(c). Also displayed in (d)–(f) are the Mie-theory fits for a sphere with radius  $R = 27.17 \mu\text{m}$  and the wavelength-dependent  $m(\lambda)$  indicated.

of  $m$  values can be used for a given  $\lambda$  while still providing some agreement with the measured curve. The angular positions of the peaks in  $I_{\text{Mie}}^{\text{sca}}$  are significantly more sensitive to  $R$  than to  $m$  in this small-angle region.

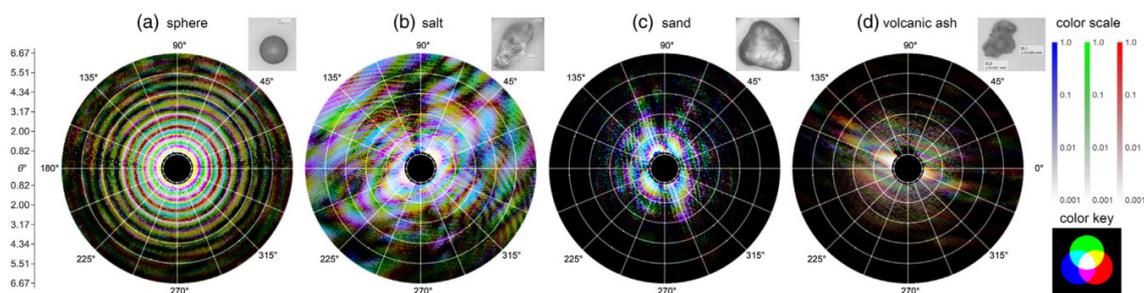
Figure 3 presents  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$  for the microsphere in Fig. 2 for all 13 wavelengths considered, ranging from  $\lambda = 450$ –850 nm. Here, the curves are plotted in log–log scale in terms of the scattering wave vector magnitude  $q$ , where  $q(\lambda, \theta) = (4\pi/\lambda) \sin(\theta/2)$ . The utility of doing so can be seen by comparing the positions of the curve peaks in Figs. 2(d)–2(f) to those in this plot. That is, plotting the curves in terms of  $q$  rather than  $\theta$  aligns the first few maxima in the curves across all wavelengths as indicated by the red arrow. Also, a power-law trend of  $I^{\text{sca}} \sim q^{-3}$  appears, which is a general feature of scattering from spheres known from [11]. The unifying ability of analysis in terms of  $q$  may have merit in future studies to extract useful information from such multispectral measurements. Note that each curve in Fig. 3 begins at a different  $q$  value between  $q \sim 0.12$  and 0.23. The reason for this is that although the hole in OPM3 is constant in angular size,  $\theta_{\text{hole}} \sim 0.90^\circ$ , it is not constant in  $q$ , i.e.,  $q(\lambda, \theta_{\text{hole}})$  is different for each  $\lambda$  due to the  $\lambda$  dependence in  $q$ . This demonstrates the capability of our device to probe different  $q$ -space regimes for a given particle.

The ability to measure multispectral 2D-SALS patterns from the same particle presents many possibilities to display and analyze the data. Given that half of the wavelengths considered cover the visible spectrum, we attempt to render a simple approximation for how the pattern may appear to the eye when produced by scattering of the primary colors blue, green, and red. For example, a particle scattering strongly in red and green, but relatively weakly in blue, would yield a yellow appearance to its pattern. If all three colors are scattered approximately the same in intensity, then the pattern would



**Fig. 3.** Multispectral light scattering curves  $I_{\text{exp}}^{\text{sca}}$  for the  $R = 27.17 \mu\text{m}$  red-dyed polyethylene microsphere in Fig. 2. Each curve is the azimuthal average of the 2D-SALS pattern measured for the wavelength indicated. All curves are normalized to the maximum measured intensity,  $I_{\text{max}}^{\text{sca}}$ , for the given  $\lambda$ . Data are plotted in log–log scale in terms of  $q$  rather than  $\theta$ , which approximately aligns the first few maxima of the curves as indicated by the red arrow.

have a white appearance. In Fig. 4, we investigate this color-based combination of 2D-SALS patterns. For blue, we select the wavelength  $\lambda_b = 450$  nm, for green,  $\lambda_g = 550$  nm, and for red,  $\lambda_r = 632$  nm. For a given particle, the 2D-SALS patterns for each of these wavelengths is first plotted in shades of the associated color based on the intensity values in log scale. These



**Fig. 4.** Measured multispectral 2D-SALS patterns for particles as labeled. Each pattern is obtained by plotting the 2D-SALS patterns measured at wavelengths  $\lambda_b = 450$  nm,  $\lambda_g = 550$  nm, and  $\lambda_r = 632$  nm, coloring them as blue, green, or red, respectively, and overlaying the patterns. The result is an approximation for how the eye may see the pattern when the particle is illuminated by these colors simultaneously. The color shades are rendered in log scale as shown at the right. The color key shows how the primary colors add to produce other colors seen in the patterns. Microscope images of each particle are presented as insets to the right of the associated pattern with approximate sizes as follows: (a)  $50 \mu\text{m}$  diameter, (b)  $332 \times 167 \mu\text{m}$ , (c)  $314 \times 300 \mu\text{m}$ , and (d)  $41 \times 30 \mu\text{m}$ .

patterns constitute color layers. For example, the  $\lambda_b$  (blue) layer for the microsphere in Fig. 4(a) is the same as Fig. 2(a). Then, the three color layers are additively combined against a black background to produce a single simulated-color 2D-SALS pattern. The log-scale color shades for each layer are displayed at the right in Fig. 4 along with a color key illustrating how the color layers add.

Four particles are considered in Fig. 4. Plot (a) shows the same  $R = 27.17 \mu\text{m}$  sphere as in Figs. 2(a) and 3, (b) shows a salt particle, (c) presents a sand particle, and (d) displays an ash particle from the Popocatepetl volcano in Mexico. Microscope images of the particles are shown next to each pattern, where one can see that the sizes range from nominally  $30 \mu\text{m}$  to over  $300 \mu\text{m}$ . The conditions of the multispectral measurements leading to each of these patterns, i.e., spectral laser power and sensor exposure time, are the same across the selection of particles. Thus, the patterns may be qualitatively compared to each other. For example, the sand particle in Fig. 4(c) is the largest of the particles and appears to show the narrowest spread of scattered intensity around the forward direction. A more detailed comparison of the angular structure of the patterns (aside from the sphere) is difficult because  $m(\lambda)$  is not known. Perhaps the more interesting features of these simulated-color patterns are the colors themselves. The salt and sand patterns, Figs. 4(b) and 4(c), appear to display more white color than the sphere and volcanic ash particles in Figs. 4(a) and 4(d). Qualitatively, this can be understood by the fact that the particle materials have different spectral variations in their refractive indices. Thus, it is logical that the particles scatter the primary colors unequally in intensity.

While such color-based analysis is qualitative and objective to some degree, it does clearly illustrate that there is particle-material sensitivity in these multispectral 2D-SALS measurements. Only three of the 13 wavelengths measured are used in Fig. 4, and it is possible that incorporating more wavelengths may enhance the information that can be obtained from these data. For example, it is known that for a spherical particle, multispectral scattering *curve* measurements like those in Fig. 3 can be compared to Mie theory to estimate  $m(\lambda)$  [7]. Yet, when a particle is nonspherical, its 2D scattering pattern is not azimuthally symmetric like the sphere's pattern is, and its asymmetry factor can be retrieved as in [4,9]. Consequently, a similar

analysis aimed at estimating  $m(\lambda)$  for a nonspherical particle will perform best when applied to the full 2D pattern, and this work demonstrates how such measurements can be done. We note that the work of Jung *et al.* [12] also achieves measurements similar to ours, except through a holographic approach and in a manner that may include chromatic aberrations.

**Funding.** ONERA; The French Aerospace Lab (PROMETE project); National Science Foundation (1665456); Air Force Office of Scientific Research (FA9550-19-1-0078); Army Research Office (W911NF2120053); Light-scattering project (BUAP University project).

**Acknowledgment.** The authors thank Guillaume Huss and Paul-Henri Pioiger from Leukos (<https://www.leukos-laser.com/>) for developing and proving the laser source, and Nicolas Riviere (ONERA, France) for his valuable advice in optics.

**Disclosures.** The authors declare no conflicts of interest.

**Data Availability.** Data underlying the results presented in this paper are not publicly available at this time but may be obtained from the authors upon reasonable request.

## REFERENCES

1. C. M. Sorensen and D. Shi, *Opt. Commun.* **178**, 31 (2000).
2. F. Ferri, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 2265 (1997).
3. S. Abmann, B. Münsterjohann, F. J. T. Huber, and S. Will, *Appl. Phys. B* **126**, 92 (2020).
4. K. B. Aptowicz, Y.-L. Pan, S. D. Martin, E. Fernandez, R. K. Chang, and R. G. Pinnick, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **131**, 13 (2013).
5. W. D. Dick, P. J. Ziemann, and P. H. McMurry, *Aerosol Sci. Technol.* **41**, 549 (2007).
6. G. E. Shaw, *Appl. Opt.* **18**, 988 (1979).
7. A. Bain, A. Rafferty, and T. C. Preston, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **221**, 61 (2018).
8. A. V. Romanov, A. I. Konokhova, E. S. Yastrebova, K. V. Gilev, D. I. Strokotov, A. V. Chernyshev, V. P. Maltsev, and M. A. Yurkin, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **200**, 280 (2017).
9. R. Ceolato, K. Aleau, L. Paulien, F. Fossard, E. Reynoso-Lara, and M. J. Berg, *Opt. Express* **28**, 25114 (2020).
10. M. J. Berg, Y. W. Heinson, O. Kempainen, and S. Holler, *Sci. Rep.* **7**, 9400 (2017).
11. C. M. Sorensen, Y. Heinson, W. R. Heinson, J. B. Maughan, and A. Chakrabarti, *Atmosphere* **8**, 68 (2017).
12. J. Jung and Y. Park, *Opt. Express* **22**, 4108 (2014).



# Measuring extinction with digital holography: noisy holograms

MATTHEW J. BERG,<sup>1,\*</sup> KILLIAN ALEAU,<sup>2</sup> AND ROMAIN CEOLATO<sup>2</sup> 

<sup>1</sup>Department of Physics, Kansas State University, 1228 N. Martin Luther King Jr. Dr., Manhattan, Kansas 66502-2601, USA

<sup>2</sup>ONERA, The French Aerospace Lab, FR 31055, France

\*[matt.berg@phys.ksu.edu](mailto:matt.berg@phys.ksu.edu)

**Abstract:** Digital in-line holography is a versatile method to obtain lens-less images of small particles, such as aerosol particles, ranging from several to over one hundred microns in size. It has been shown theoretically, and verified by measurement, that a particle's extinction cross section can also be obtained from a digital hologram. The process involves a straightforward integration, but if noise is present it fails to give accurate results. Here we present a method to reduce the noise in measured holograms of single particles for the purpose of rendering the cross-section estimation more effective. The method involves masking the complex-valued particle image-amplitude obtained from a noisy hologram followed by a Fresnel transformation to generate a new noise-reduced hologram. Examples are given at two wavelengths, 440 nm and 1040 nm, where the cross section is obtained for a micro-sphere particle and several non-spherical particles approximately 50 microns in size.

© 2023 Optica Publishing Group under the terms of the [Optica Open Access Publishing Agreement](#)

## 1. Introduction

When a small particle, such as an aerosol particle, enters a collimated beam of light, a portion of the beam will be absorbed and scattered. If a sensor is positioned to face the oncoming beam, it will receive a net amount of radiant power that is less than what it would receive in the particle's absence; this reduction is extinction [1,2]. In other words, extinction is regarded as the shadow cast by the particle, albeit the shadow may not be well-defined and dark, especially if the particle is comparable to the wavelength in size. Extinction is thus quantified by an area, the extinction cross-section  $C^{\text{ext}}$  [2]. A closer examination of the physics involved shows that extinction is fundamental; it represents the conservation of energy in classical elastic electromagnetic scattering and is manifest by the interference between incident and scattered light [3–7]. Measurements of extinction are important in many contexts, such as quantifying the influence of aerosols on Earth's radiation budget, remote sensing including lidar [8,9], and visibility in urban environments [10].

Perhaps surprisingly, there is a fundamental connection between extinction and holography. An in-line, or Gabor-type, hologram is formed by the interference of a particle's scattered wave with the illuminating wave [11,12]. Recording the intensity of this interference pattern with an image-sensor is the basis of digital in-line holography (DIH), which provides a way to image particles in a contact-free manner and is now widely applied. Notice, however, that it is the same interference, i.e., of the incident and scattered waves, that gives rise to the phenomenon of extinction. Thus, it should be possible to measure  $C^{\text{ext}}$  from an in-line hologram. This connection was first proposed theoretically by Berg et al. [13] for spherical particles and later generalized to arbitrary-shaped particles and demonstrated experimentally in [14]. More recently, Ravasio et al. apply the method to mineral dust particles collected in Arctic ice-core melt water [15]. A related connection, discovered by Pettit et al. [16] and later expanded by Potenza et al. [17] and Moteki [18], permits measurement of the complex-valued forward-scattered amplitude of individual particles. By use of the optical theorem [3], the measurement then provides  $C^{\text{ext}}$ . However,

that method relies on the Rayleigh-scattering approximation, which restricts its application to particles much smaller than the wavelength, although modifications for larger particles have been proposed, see [17].

To obtain  $C^{\text{ext}}$  from a recorded hologram, an integral is performed. As explained later, if there is significant noise in the hologram, the integral may either diverge or yield an incorrect value. Unfortunately, it is common for such noise to be present in many practical situations. For example, DIH is performed on individual atmospheric aerosol particles using an airborne instrument by Kemppinen et al. [19] where the recorded holograms exhibit a large degree of noise. The noise is attributed to stray light, speckle, and electronic (sensor) sources, e.g., see Fig. 3 in [19]. While the extent of noise in that example does not significantly degrade the image quality, it would render the  $C^{\text{ext}}$  measurement-method of [14] ineffective. The purpose of this work is to demonstrate a computational method, inspired by [20], to reduce the noise in holograms such that  $C^{\text{ext}}$  can be better estimated.

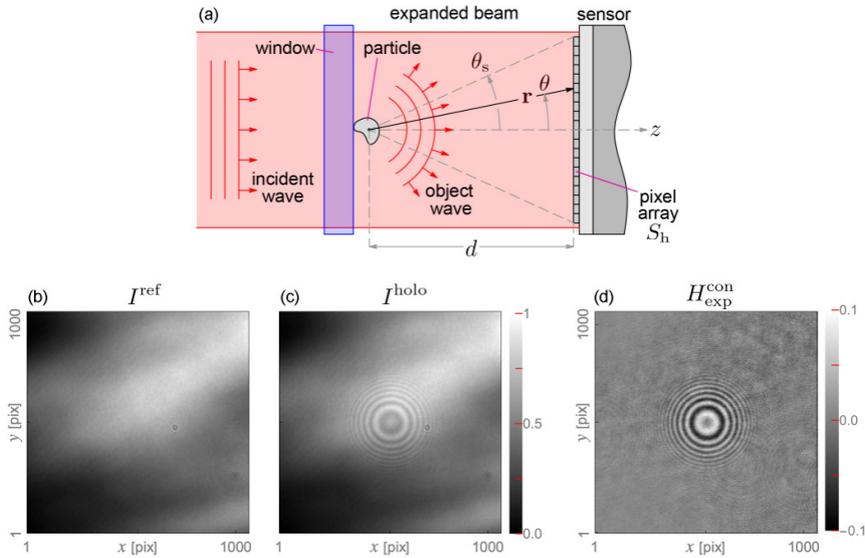
## 2. Background

Consider a single particle in a collimated laser beam that illuminates an image sensor along the  $z$ -axis as shown in Fig. 1(a). The beam diameter is such that it mostly covers the sensor's pixel-array, denoted  $S_h$ , and the particle is located a distance  $d$  from the sensor such that the sensor is in the particle's far-field zone; conditions that are not difficult to achieve in practice. Two measurements are performed: First, a frame from the sensor is taken when no particle is present. This is called the reference,  $I^{\text{ref}}$ , and is simply an image of the beam profile across the sensor. In the simplest case, the profile is approximated by a planar wave of amplitude  $E_o$ , yielding a uniform intensity  $I^{\text{ref}} = |E_o|^2 = I_o$ . Then, another frame, the raw hologram  $I^{\text{holo}}$ , is taken when the particle is present and scattered and unscattered light interfere, producing the hologram interference pattern. These frames are shown in Fig. 1(b) and Fig. 1(c), respectively, for a measurement where the particle is a 50  $\mu\text{m}$  diameter glass sphere and the beam wavelength is  $\lambda = 440$  nm. Next, the difference between these frames is formed, yielding the measured contrast hologram,  $H_{\text{exp}}^{\text{con}} = I^{\text{ref}} - I^{\text{holo}}$ , which is shown in Fig. 1(d). Note that it is important that  $I^{\text{ref}}$  and  $I^{\text{holo}}$  be measured with the beam intensity and sensor exposure-times being as close to the same as possible. If done, the pixel values of  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  should ideally oscillate symmetrically about zero, i.e., if no particle were present when  $I^{\text{holo}}$  is taken, all pixels in the resulting  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  would be zero. Noise in  $I^{\text{ref}}$  and  $I^{\text{holo}}$  carry-over to  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  and become a source of failure to estimate  $C^{\text{ext}}$ . Significant noise and beam non-uniformity are present in Fig. 1.

Figure 2 reviews the method in [14] to estimate  $C^{\text{ext}}$  from  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ . An integration is performed over the square portion  $S$  of  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  that is centered on the interference pattern. The size of this portion is parameterized by the angle  $\theta$ , which varies from  $\theta = 0^\circ$  to the angular size of the sensor  $\theta = \theta_s$ . For a given  $\theta$  in these bounds, the integral value divided by the (constant) intensity of the beam,  $I_o$ , is

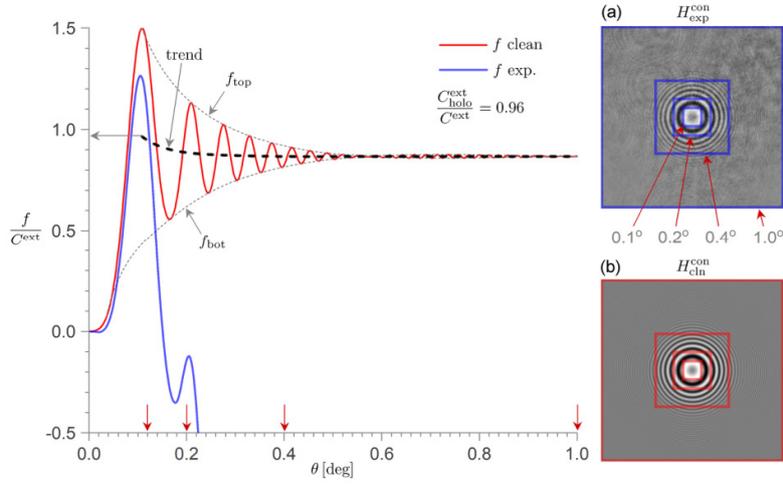
$$f(\theta) = \frac{1}{I_o} \int_S H_{\text{exp}}^{\text{con}}(x, y) \, dx dy \rightarrow \frac{1}{I_o} \sum_{i,j \in S} H_{\text{exp}}^{\text{con}}(x_i, y_j) p^2, \quad (1)$$

where, in practice, the integral is evaluated as a double sum over the pixels  $(x_i, y_j)$  of  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  where the (linear) pixel size is  $p$ . The dimensions of  $f$  are then area, in terms of the pixel area,  $p^2$ . The evaluation of Eq. (1) is repeated for values of  $\theta$  from  $\theta = 0^\circ$  to  $\theta_s$ , i.e., as the square portion  $S$  grows from zero to eventually cover the entire sensor,  $S_h$ . This produces a curve, the  $f$ -curve, that begins at a value of zero, and thereafter increases and oscillates to an asymptote. Often, the asymptotic behavior is observed for angles much smaller than  $\theta_s$ , and so, Eq. (1) does not have to involve the entire sensor in practice.



**Fig. 1.** Arrangement and measurements used to estimate  $C^{\text{ext}}$  for a single, fixed microparticle using DIH. In (a), an expanded laser beam illuminates an anti-reflection coated glass window with a single microparticle on its surface. Shown in (b) and (c) are the sensor frames taken without, and with, the particle present. These constitute the reference measurement and raw hologram,  $I^{\text{ref}}$  and  $I^{\text{holo}}$ , respectively. Subtracting  $I^{\text{holo}}$  from  $I^{\text{ref}}$  yields the contrast hologram,  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ , shown in (d). Note the non-uniformity in (b) and (c), and the noise present in (d).

Figure 2(a) shows the contrast hologram of Fig. 1(d) with nested squares indicating examples of the integration area  $\mathcal{S}$  along with their corresponding angular sizes,  $\theta$ , which are also indicated by red arrows on the plot axis. Integrating *this* contrast hologram produces the blue  $f$ -curve shown in the plot, which quickly diverges (negative) due to the noise present. Obtaining a value for  $C^{\text{ext}}$  fails in this case. The divergent behavior can also be positive, in cases, depending on the hologram's noise content. Shown in Fig. 2(b) is the same hologram following the noise-reduction process described below that yields a cleaned hologram,  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$ . The same integration squares are shown. The (red)  $f$ -curve for  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  now shows the behavior described in [14]. Top and bottom envelopes,  $f_{\text{top}}$  and  $f_{\text{bot}}$ , are fit as polynomials to the oscillating curve, from which a trend curve is obtained by averaging the envelopes. The trend curve begins at the first maxima of the  $f$ -curve, for the  $\theta$  closest, but not equal to,  $\theta = 0^\circ$ . It is this value of the trend curve that provides the hologram-derived estimate for the cross section,  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  as shown in the plot in Fig. 2. Because the size and material of the particle is known in this case, Mie theory is used to calculate the true cross section,  $C^{\text{ext}}$  and both the red and blue  $f$ -curves are plotted normalized by  $C^{\text{ext}}$ . Finally, Fig. 2 also reports the ratio  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}/C^{\text{ext}} = 0.96$ , showing that the method provides the cross section to within 4% error for this particle.



**Fig. 2.** Demonstration of the method of [14] to estimate  $C^{\text{ext}}$  from a hologram. The plot shows the two  $f$ -curves resulting from the nested-squares integration of the contrast hologram of a  $50\ \mu\text{m}$  diameter glass microsphere. In (a) is the measured hologram  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  with examples of the square integration areas  $\mathcal{S}$  shown in blue. The angular size of these areas is indicated (in degrees) by the red arrows, which are also shown in the plot. The same is shown in (b) except for the cleaned hologram  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$ . The holograms in (a) and (b), respectively, yield the blue and red  $f$ -curves in the plot. Notice how the noise present in (a) causes the associated  $f$ -curve to diverge, while (b) results in a good cross-section estimate.

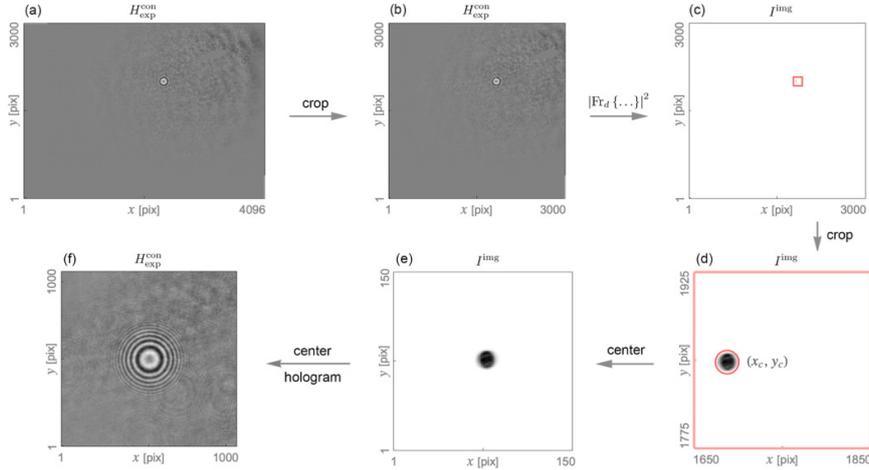
### 3. Method

The process to produce a noise-reduced contrast hologram begins by finding the center of the interference pattern. This step is required because the center defines the  $\theta = 0^\circ$  direction [Fig. 1(a)] around which the successive integration squares in Fig. 2 are defined to ultimately estimate  $C^{\text{ext}}$ , recall [14]. The center of the pattern also identifies the region in the reference measurement  $I^{\text{ref}}$  where the intensity of the incident beam  $I_0$  is found (more detail below). Consider Fig. 3(a), which shows the same  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  of Figs. 1,2, except in its full uncropped form, i.e., portraying the sensor's full format, here rectangular. One can see a small region with concentric fringes due to the particle. Because it is easier to work with square arrays in code, the hologram is cropped symmetrically about the hologram's center, resulting in Fig. 3(b). Next, an image of the particle is generated from the cropped hologram by first evaluating the Fresnel transform,  $\text{Fr}_d\{\dots\}$ , to generate the diffracted wave amplitude  $E^{\text{img}}$  that would be produced across a plane a distance  $z = d$  from the hologram plane  $\mathcal{S}_h$  by illuminating the hologram with a plane wave [12]. Referring to the geometry in Fig. 1(a), this amounts to evaluating:

$$E^{\text{img}}(x, y, z) = \text{Fr}_z \{ H_{\text{exp}}^{\text{con}}(x', y') \} \\ = \frac{\exp(i2\pi z/\lambda)}{i\lambda z} E_0 \iint H_{\text{exp}}^{\text{con}}(x', y') \exp \left\{ \frac{i\pi}{\lambda z} \left[ (x - x')^2 + (y - y')^2 \right] \right\} dx' dy', \quad (2)$$

where the integrals are carried-out over the plane containing the argument of the transform, i.e.,  $\mathcal{S}_h$ , and the subscript on  $\text{Fr}_z\{\dots\}$  denotes the  $z$  value of the plane. Once the diffracted wave amplitude is generated, the particle image is obtained from the absolute square, i.e.,  $I^{\text{img}}(x, y) = |E^{\text{img}}(x, y, z = d)|^2$ , where several unimportant constants have been omitted, e.g., see

Eq. (39) in [12]. The image obtained is displayed in Fig. 3(c). Notice that while the image is real valued, the diffracted wave amplitude  $E^{\text{img}}$  is complex valued, which will be an important detail in the following. Also note that the origin is taken in the  $S_h$  plane in Eq. (2), following [12], whereas Fig. 1(a) places the origin to more clearly relate to the extinction estimation method in [14].

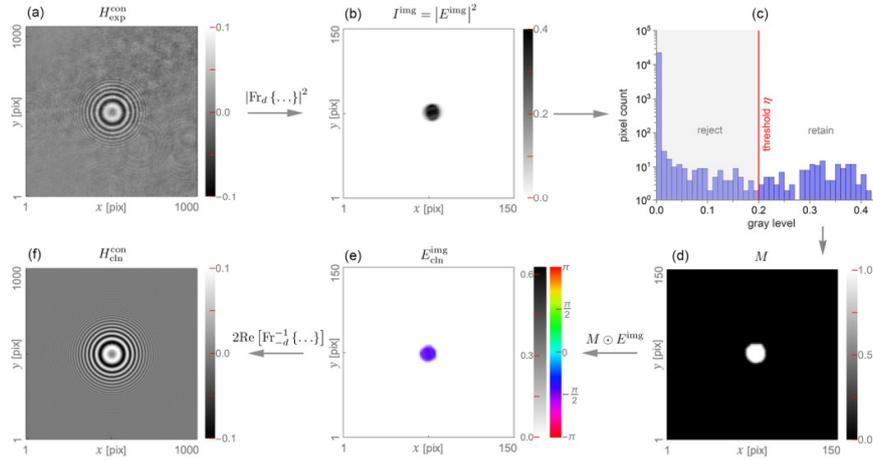


**Fig. 3.** Steps used to crop and center the interference pattern in a contrast hologram. A contrast hologram  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  obtained from the sensor is shown in (a), which is then cropped square to yield (b). Next, the particle image  $I^{\text{img}}$  is reconstructed by applying the Fresnel transform  $|\text{Fr}_d \{ \dots \}|^2$  to the cropped hologram. The resulting image, shown in (c), is then cropped by a square window (red) to yield the zoomed-in view in (d). From this view, the center  $(x_c, y_c)$  of a circumscribing circle is determined, which then allows (d) to be centered, resulting in (e). The cropped hologram, (b), is then centered via the same translation to yield (f).

The process of generating the particle image is generally called image reconstruction and is explained well in many references, e.g., see [12] or [21]. In practice, one does not evaluate the integrals in Eq. (2) directly, but rather, evaluates them by means of Fourier transforms, Eq. (38) in [12], due to the speed at which such transforms may be computed. Open-source code is available in [12] to compute the Fresnel transform. To determine the value for  $d$  required to produce a well-focused image, the reconstruction process can be iterated following a variety of so-called auto-focus routines, e.g., see [22].

The particle appears as a speck in Fig. 3(c) and the next step is to crop the image in an approximate manner to the point where the particle is clearly visible. That is done in Fig. 3(d), which shows the portion of Fig. 3(c) outlined by the red square. The center of the particle  $(x_c, y_c)$  is then determined by circumscribing the particle image by a circle. With knowledge of the particle's center, both  $I^{\text{img}}$  and  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  can then be translated in the  $x$ - $y$  plane so that the image and the hologram fringe-pattern appear at the center of their respective cropped arrays as shown in Fig. 3(e) and Fig. 3(f). The extinction estimation method, Eq. (1), requires knowledge of the incident beam intensity  $I_0$ , which is now readily found by averaging the pixel values in the portion of reference measurement  $I^{\text{ref}}$  contained within the circle determined from  $I^{\text{img}}$ . Due to the small size of the particles compared to the typical nonuniformity of the beam, e.g., Fig. 1(b), the intensity across the particle is uniform to good approximation.

Now consider Fig. 4(a) and Fig. 4(b) where the cropped, centered hologram and particle image are shown with scale bars to clarify the range of pixel gray-level variations. Although the particle image appears with good quality, apparently despite any noise in the hologram  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ , the histogram of the  $I^{\text{img}}$  pixel gray-levels in Fig. 4(c) clearly displays a distribution between zero (white) and 0.4 (black). The smaller gray-levels in particular are due to the hologram's noise even though it is not apparent in the image, Fig. 4(b). A mask is then generated by selecting all pixels with gray-levels in  $I^{\text{img}}$  below a threshold  $\eta$  and re-assigning them to zero, while setting the remaining pixel values to one. In most cases, the particle-image pixel values in the histograms will be obviously separated from the background-noise pixels, which appear at the smallest values. Such is the case in Fig. 4(c) where the noise shows gray-levels smaller than 0.1. Note the log scale in the histogram, revealing that most pixels are noise. As such, the specific value chosen for  $\eta$  is largely arbitrary as long as it is larger than the noise values but not so large as to exclude particle-image pixels, which appear at the largest gray-levels. Often a value for  $\eta$  that is midway between the smallest and largest gray levels in  $I^{\text{img}}$  will perform well. To illustrate the insensitivity of the analysis to the specific value of  $\eta$ , we note that increasing (decreasing)  $\eta$  from its value of  $\eta = 0.2$  here by 50% results in a maximum change of 3% (-3%) in the eventual value for  $C^{\text{ext}}$  obtained from the cleaned hologram.



**Fig. 4.** Demonstration of the noise-reduction method. In (a) and (b) are the hologram and reconstructed image of Fig. 3, except with scale bars revealing the pixel gray-level variations. A histogram of the pixel gray-levels is shown in (c). Setting pixels with levels  $>\eta$  to one while re-assigning those  $\leq \eta$  to zero gives the mask  $M$  in (d). Multiplication of  $M$  with the  $I^{\text{img}}$  gives the cleaned image  $I_{\text{cln}}^{\text{img}}$  of (e) where the background noise is now removed. Here, the complex-valued image is plotted with colors representing phase and color-saturation representing magnitude. Finally, a cleaned contrast hologram  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  is generated via the inverse Fresnel transform in Eq. (8).

Figure 4(d) shows the resulting mask  $M$ , which is essentially a binarization of  $I^{\text{img}}$ . Next, the mask array is multiplied element-by-element with the complex-valued diffracted wave amplitude corresponding to the image, i.e.,  $M \odot E^{\text{img}}$ . The operation results in a new, complex-valued image amplitude  $E_{\text{cln}}^{\text{img}}$  where the (complex) pixel-values within the particle-image portion of  $E^{\text{img}}$  are unaltered, but all surrounding pixels, which may possess noise, are zeroed. Figure 4(e) shows a plot of  $E_{\text{cln}}^{\text{img}}$  where each pixel is a complex number and the colors denote the phase

while the color saturation denotes magnitude. The particle-image portion of the complex image has values with phase of approximately  $-\pi/2$ . The final step is to evaluate the inverse Fresnel transform of the complex image  $E_{\text{cln}}^{\text{img}}$  to produce a new noise-reduced hologram in the original hologram plane,  $S_h$ . The result,  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$ , is shown in Fig. 4(f) and earlier in Fig. 2(b). In cases where the particle in  $I^{\text{img}}$  does not exhibit a sharp boundary with the background, it is advisable to slightly dilate, by several pixels, the particle-image feature in the mask. This is a conservative step to prevent the mask from clipping the particle image and adding unwanted aberrations to the resulting hologram. Such dilation is done in Fig. 4(d), but would likely be superfluous for larger particles where a sharper particle image-boundary would be expected.

We pause to explain several details regarding the generation of  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  from  $E_{\text{cln}}^{\text{img}}$ . Using the scalar-wave approximation [12], the distribution of light intensity  $I^{\text{holo}}$  across the sensor  $S_h$  in Fig. 1(a) when a particle is present is governed by the total wave amplitude  $E(\mathbf{r})$ :

$$E(\mathbf{r}) = E_o \exp(ik_o \hat{\mathbf{n}}^{\text{inc}} \cdot \mathbf{r}) + \frac{\exp(ik_o r)}{r} E_1^{\text{sca}}(\hat{\mathbf{r}}). \quad (3)$$

In Eq. (3),  $k_o = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  is the wavelength,  $\hat{\mathbf{n}}^{\text{inc}}$  is the incident wave (beam) propagation direction, and  $E_1^{\text{sca}}(\hat{\mathbf{r}})$  represents the amplitude of the scattered spherical-wave from the particle. The light intensity described by Eq. (3) is then obtained via  $I = (1/2)\sqrt{\epsilon_o/\mu_o}|E|^2$ , or explicitly, as

$$I(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_o}{\mu_o}} \left\{ |E_o|^2 + E_o^* E_1^{\text{sca}}(\mathbf{r}) \frac{\exp[ik_o(r-z)]}{r} + E_o [E_1^{\text{sca}}(\mathbf{r})]^* \frac{\exp[-ik_o(r-z)]}{r} + \frac{1}{r^2} |E_1^{\text{sca}}(\mathbf{r})|^2 \right\}, \quad \mathbf{r} \in S_h, \quad (4)$$

where  $\epsilon_o$  and  $\mu_o$  are the permittivity and permeability of free space. It is customary to neglect the (constant) prefactor and the last term in Eq. (4) due to its  $r^{-2}$  dependence and express the intensity as

$$I^{\text{holo}}(\mathbf{r}) \approx |R|^2 + R^* \times O(\mathbf{r}) + R \times O^*(\mathbf{r}), \quad (5)$$

where  $R$  and  $O(\mathbf{r})$  are the complex-valued reference and object wave-amplitudes. Forming the contrast hologram amounts to the difference of  $|R|^2$  and Eq. (5), i.e. [23],

$$H_{\text{exp}}^{\text{con}}(\mathbf{r}) \approx -R^* \times O(\mathbf{r}) - R \times O^*(\mathbf{r}). \quad (6)$$

Upon reconstruction, the first term in Eq. (6) generates the original object wave while the second term generates the conjugate of that wave. The image associated with the first term has the appearance of originating from a virtual object to the left of the hologram in Fig. 1(a). Similarly, the image associated with the second term is the real image appearing to originate from an object on the right of the hologram [24,25]. Thus, reconstruction will always contain both images overlapped due to the in-line configuration. When one is in focus, its twin is blurred. The masking process largely suppresses the blurred twin image in addition to the background noise.

Just as application of the Fresnel transform to  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  generates the wave amplitude corresponding to either of the twin images, application of the inverse transform  $\text{Fr}^{-1}\{\dots\}$  to the complex particle image-amplitude generates the (total) wave amplitude across the sensor. Taking the simple case where  $|R|^2 = 1$ , representing a planar reference wave, the measured hologram can be re-generated from the complex particle-image as

$$\text{Re} \left[ \text{Fr}_d^{-1} \{ E^{\text{img}}(\mathbf{r}') \} \right] = H_{\text{exp}}^{\text{con}}(\mathbf{r}). \quad (7)$$

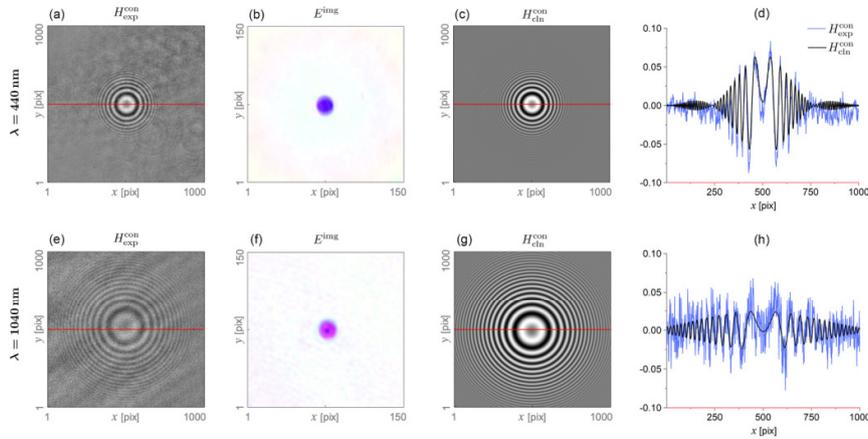
Notice, however, that no masking is done in Eq. (7). If masking is done, then half of the information in the re-generated hologram is lost, that due to the blurred twin, and a factor of two

is required to bring the re-generated hologram into agreement with that which is measured, i.e.,

$$2\text{Re} \left[ \text{Fr}_{-d}^{-1} \left\{ M \odot E^{\text{img}}(\mathbf{r}') \right\} \right] = 2\text{Re} \left[ \text{Fr}_{-d}^{-1} \left\{ E_{\text{cln}}^{\text{img}}(\mathbf{r}') \right\} \right] = H_{\text{cln}}^{\text{con}}(\mathbf{r}). \quad (8)$$

If the factor of two is not included in Eq. (8) and the cross section is estimated from the resulting cleaned hologram, the result will be half of the correct value.

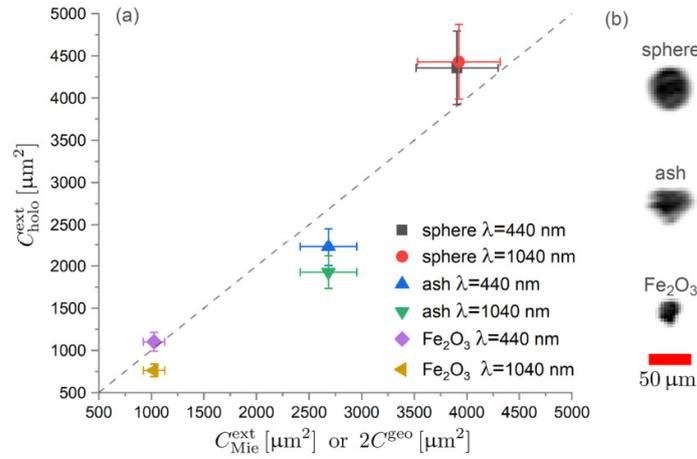
To provide a clearer sense for the performance of the noise-reduction method, Fig. 5, top row, shows the degree to which noise is removed from the measurement depicted in Fig. 1(a) at wavelength  $\lambda = 440$  nm. Shown in (a) is  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  again except with a red line passing through the center of the pattern. In Fig. 5(b) is the reconstructed complex-valued particle image  $E^{\text{img}}$ , which better displays the noise present, i.e., the diffuse background surrounding the particle. In (c) is the noise-free hologram,  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$ , again with a red line through the center. Finally, in Fig. 5(d) is a plot of the hologram pixel values along the red lines, where  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  is shown in blue and  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  in black. Noise is evident in  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  and is mostly removed in  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$ .



**Fig. 5.** Performance of the noise-reduction method of Fig. 4 for two wavelengths,  $\lambda = 440$  nm (top row) and  $\lambda = 1040$  nm (bottom row). The plots in (d) and (h) show the noisy oscillations of the measured contrast holograms  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  in blue and the resulting noise-reduced holograms  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  in black. The color scale for plots (b) and (f) is the same as in Fig. 4(e).

While leaving the particle undisturbed, the laser wavelength is then changed to  $\lambda = 1040$  nm. Repeating the noise-reduction method on the contrast hologram yields the data presented in Fig. 5(e)–5(h). Again, the method is effective at removing the noise in  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ . Notice the increased spacing between the interference fringes, e.g., compare Fig. 5(c) and 5(g). This increase is due to the change in wavelength. One can also see a slight degradation in the resolution of the particle image from  $\lambda = 440$  nm to  $\lambda = 1040$  nm, i.e., compare Fig. 5(b) to 5(f). Such loss in resolution is characteristic of imaging with DIH [12].

Figure 6(a) shows the cross section values resulting from the noise-reduction method applied to the spherical particle above and two non-spherical particles. The latter are an ash particle collected from the eruption of the Cumbre Vieja volcano on La Palma, Spain in the fall of 2021, and an iron(III) oxide,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , particle taken from stock powder of the compound manufactured by Sigma Aldrich. Images of the particles reconstructed from the measured holograms are shown in Fig. 6(b) along with a  $50 \mu\text{m}$  scale bar applying to all images. The cross sections determined from the contrast holograms, denoted  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$ , are plotted against theoretical estimates of the true values,  $C^{\text{ext}}$ . Both  $\lambda = 440$  nm and  $\lambda = 1040$  nm are considered for each particle.



**Fig. 6.** Estimated extinction cross sections  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$ , plot (a), obtained from the noise-reduced contrast holograms  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  of three particles at two wavelengths,  $\lambda = 440$  nm and  $\lambda = 1040$  nm. In (b) are the images  $I^{\text{img}}$  of the particles reconstructed from their holograms. The scale bar applies to all of the images. The values of  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  are plotted against theoretical estimates based on either Mie theory for the sphere,  $C_{\text{Mie}}^{\text{ext}}$ , or the geometric area of the image  $C^{\text{ext}} \approx 2C_{\text{geo}}^{\text{ext}}$  for the volcanic ash and  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  particle.

In the case of the 50  $\mu\text{m}$  diameter glass sphere, Mie theory is used to determine  $C_{\text{Mie}}^{\text{ext}}$  using a refractive index of  $m = 1.526 + 0i$  for  $\lambda = 440$  nm and  $m = 1.507 + 0i$  for  $\lambda = 1040$  nm based on [26] and a particle diameter of  $D = 49.3$   $\mu\text{m}$ , which is based on the manufacturer's reported mean particle size. In the case of the ash and  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  particles, the theoretical cross section  $C^{\text{ext}}$  is based on the so-called extinction paradox, i.e.,  $C^{\text{ext}} \sim 2C_{\text{geo}}^{\text{ext}}$  where  $C_{\text{geo}}^{\text{ext}}$  is the particle's area projected along the beam direction, its geometric cross section. This area is established by summing the pixels constituting the reconstructed particle image. The paradox value may be used when the beam is collimated, i.e., is essentially a plane wave, and the particle is much larger than  $\lambda$  [27]. Such conditions apply here. The error bars represent  $\pm 10\%$  error in both the theoretical and hologram-derived values for  $C^{\text{ext}}$ , which is based on the general error found in [14] for a wide variety of similar particles. In all, Fig. 6 demonstrates that the hologram-derived cross sections,  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$ , are close to the theoretical values, within approximately 15% – 20% error for most cases. Whether such error is acceptable or not would depend on the application. However, as is clear from the blue curve in Fig. 2, cross section values could not be obtained at all without use of the method here.

#### 4. Discussion

One may wonder what effect the particle size has on the noise-reduction method, namely, the mask generation in Fig. 4(d). Several factors are important to consider. First is the image-resolution limit, which is often approximately  $2p$  for a single-shot lens-free holography arrangement like Fig. 1 [12]. Particles smaller than  $2p$  are not well-resolved and any resulting mask would not accurately represent the true particle size and shape. Second is the relative strength of the noise. Referring to the histogram in Fig. 4(c), if the noise gray-levels are not clearly separated from the particle-image levels [unlike Fig. 4(c)], then it may be difficult to choose a suitable  $\eta$  value that prevents noise from appearing in the mask. This could happen if excessive noise is present or if

the particle does not scatter with sufficient intensity to bring the interference pattern above the noise. Notice, however, that a surprisingly strong level of noise can be present, and an accurate mask is still produced, e.g., compare the curves in Fig. 5(h).

The aim of this work is to reduce the noise present in measured holograms for the purpose of rendering the extinction cross section method of [14] more effective. That is, our aim is not to necessarily improve the quality of the reconstructed image, although that does appear to occur to some degree. Indeed, there are many examples in the literature of effective methods to enhance the image quality, such as so-called pixel super-resolution [28,29] and twin image suppression [30]. Our need is to have a method that does not require more than one hologram measurement, which we achieve here, so that aerosol particles may eventually be considered. The important point is that with an aerosol, the particles are inherently in motion, and thus, the multiple hologram-measurements that are required in some image-enhancement methods (namely super-resolution) are not feasible for aerosols. In future work, we envision applying the noise-reduction method to aerosols and test its ability to provide acceptable values for single-particle  $C^{\text{ext}}$ . If successful, an new way to measure this important parameter would be available and may aid studies in aerosol science and remote sensing.

**Funding.** Army Research Office (W911NF2120053); National Science Foundation (2107715); Air Force Office of Scientific Research (FA9550-19-1-0078, FA9550-21-1-0339).

**Acknowledgments.** The authors thank Guillaume Huss from Leukos for developing and proving the laser source.

**Disclosures.** The authors declare no conflicts of interest.

**Data availability.** Data underlying the results presented in this paper are not publicly available at this time but may be obtained from the authors upon reasonable request.

## References

1. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles* (John Wiley & Sons, 2008).
2. H. C. van de Hulst, *Light scattering by small particles* (Courier Corporation, 1981).
3. M. J. Berg, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti, "Extinction and the optical theorem. Part I. Single particles," *J. Opt. Soc. Am. A* **25**(7), 1504–1513 (2008).
4. M. J. Berg, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti, "Extinction and the optical theorem. Part II. Multiple particles," *J. Opt. Soc. Am. A* **25**(7), 1514–1520 (2008).
5. M. J. Berg and C. M. Sorensen, "A review and reassessment of diffraction, scattering, and shadows in electrodynamics," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **210**, 225–239 (2018).
6. M. I. Mishchenko, M. J. Berg, C. M. Sorensen, *et al.*, "On definition and measurement of extinction cross section," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **110**(4-5), 323–327 (2009).
7. R. Ceolato and M. J. Berg, "Aerosol light extinction and backscattering: A review with a lidar perspective," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **262**, 107492 (2021).
8. A. Comeron, C. Munoz-Porcar, and F. Rocadenbosch, "Current research in lidar technology used for the remote sensing of atmospheric aerosols," *Sensors* **17**(6), 1450 (2017).
9. R. Ceolato, A. E. Bedoya-Velasquez, and F. Fossard, "Black carbon aerosol number and mass concentration measurements by picosecond short-range elastic backscatter lidar," *Sci. Rep.* **12**(1), 8443 (2022).
10. P. Kulkarni, P. A. Baron, and K. Willeke, *Aerosol measurement: principles, techniques, and applications* (John Wiley & Sons, 2011).
11. D. Gabor, "A new microscopi principle," *Nature* **161**(4098), 777–778 (1948).
12. M. J. Berg, "Tutorial: Aerosol characterization with digital in-line holography," *J. Aerosol Sci.* **165**, 106023 (2022).
13. M. J. Berg, N. R. Subedi, P. A. Anderson, *et al.*, "Using holography to measure extinction," *Opt. Lett.* **39**(13), 3993–3996 (2014).
14. M. J. Berg, N. R. Subedi, and P. A. Anderson, "Measuring extinction with digital holography: nonspherical particles and experimental validation," *Opt. Lett.* **42**(5), 1011–1014 (2017).
15. C. Ravasio, L. Cremonesi, and C. Artoni, "Optical characterization of mineral dust from the eaiist project with digital holography," *ACS Earth Space Chem.* **5**(10), 2855–2864 (2021).
16. D. R. Pettit and T. W. Peterson, "Coherent detection of scattered light from submicron aerosols," *Aerosol Sci. Technol.* **2**(3), 351–368 (1982).
17. M. A. Potenza, T. Sanvito, and A. Pullia, "Measuring the complex field scattered by single submicron particles," *AIP Adv.* **5**(11), 117222 (2015).
18. N. Moteki, "Measuring the complex forward-scattering amplitude of single particles by self-reference interferometry: Cas-v1 protocol," *Opt. Express* **29**(13), 20688–20714 (2021).

19. O. Kemppinen, J. C. Laning, and R. D. Mersmann, "Imaging atmospheric aerosol particles from a uav with digital holography," *Sci. Rep.* **10**(1), 16085 (2020).
20. T. Latychevskaia and H.-W. Fink, "Resolution enhancement in digital holography by self-extrapolation of holograms," *Opt. Express* **21**(6), 7726–7733 (2013).
21. T. Kreis, *Handbook of holographic interferometry: optical and digital methods* (John Wiley & Sons, 2006).
22. T. Shimobaba and T. Ito, *Computer Holography: Acceleration Algorithms & Hardware* (CRC Press, 2018).
23. L. Denis, C. Fournier, T. Fournel, *et al.*, "Twin-image noise reduction by phase retrieval in in-line digital holography," in *Wavelets XI*, vol. 5914 (SPIE, 2005), pp. 148–161.
24. M. Özcan and M. Bayraktar, "Digital holography image reconstruction methods," in *Practical Holography XXIII: Materials and Applications*, vol. 7233 (SPIE, 2009), pp. 88–97.
25. J. W. Goodman, *Introduction to Fourier optics* (Roberts and Company Publishers, 2005).
26. 'Optical glass data sheets' (2023). <https://www.schott.com/en-gb/products/optical-glass-p1000267/downloads>, Last accessed on 2023-8-25.
27. M. J. Berg, C. Sorensen, and A. Chakrabarti, "A new explanation of the extinction paradox," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **112**(7), 1170–1181 (2011).
28. J. Zhang, J. Sun, and Q. Chen, "Adaptive pixel-super-resolved lensfree in-line digital holography for wide-field on-chip microscopy," *Sci. Rep.* **7**(1), 11777 (2017).
29. C. Fournier, F. Jolivet, and L. Denis, "Pixel super-resolution in digital holography by regularized reconstruction," *Appl. Opt.* **56**(1), 69–77 (2017).
30. C. McElhinney, B. M. Hennelly, L. Ahrenberg, *et al.*, "Removing the twin image in digital holography by segmented filtering of in-focus twin image," in *Optics and Photonics for Information Processing II*, vol. 7072 (SPIE, 2008), pp. 55–60.



# Measuring spectral extinction with digital holography

MATTHEW J. BERG,<sup>1,\*</sup> KILLIAN ALEAU,<sup>2</sup> AND ROMAIN CEOLATO<sup>2</sup> 

<sup>1</sup>Department of Physics, Kansas State University, 1228 N. Martin Luther King Jr. Dr., Manhattan, Kansas 66502-2601, USA

<sup>2</sup>ONERA, The French Aerospace Lab, Toulouse Cedex 4 31055, France

\*matt.berg@phys.ksu.edu

Received 26 September 2023; revised 29 January 2024; accepted 1 February 2024; posted 2 February 2024; published 15 February 2024

The optical extinction caused by a small particle, such as an aerosol particle, is an important measurable quantity. Understanding the influence of atmospheric aerosols on the climate, assessing visibility in urban environments, and remote sensing applications such as lidar all need accurate measurements of particle extinction. While multiple methods are known to measure extinction, digital in-line holography (DIH) features the unique ability to provide contact-free images of particles simultaneously with estimates for the extinction cross section. This is achieved through an integration of a measured hologram followed by an extrapolation. By means of a supercontinuum laser, we investigate the measurement of the cross section via DIH for stationary particles across a broad spectrum, from 440 nm to 1040 nm. The particles considered include a 50  $\mu\text{m}$  glass microsphere, a volcanic ash particle, and an iron(III) oxide particle. The results show the ability to estimate a particle's cross section to within 10% error across portions of the spectrum and approximately 20% error otherwise. An examination of the accompanying hologram-derived particle images reveals details in the images that evolve with wavelength. The behavior suggests a basic means to resolve whether absorption or scattering dominates a particle's extinction. © 2024 Optica Publishing Group under the terms of the Optica Open Access Publishing Agreement

<https://doi.org/10.1364/AO.506873>

## 1. INTRODUCTION

When a small particle, such as an aerosol particle, is introduced into a collimated laser beam, a portion of the beam will be scattered and may also be absorbed. One effect will be a net reduction of the amount of radiant power propagating in the beam downstream from the particle, and this reduction is extinction. It is thus common to state that extinction is the combined effect of absorption and scattering, and usually, it is quantified in terms of a cross section, the extinction cross section  $C^{\text{ext}}$  [1,2]. Indeed, extinction is fundamental; it is the conservation of energy in classical elastic electromagnetic scattering, where  $C^{\text{ext}}$  is equal to the sum of the particle's absorption and (total) scattering cross sections,  $C^{\text{abs}}$  and  $C^{\text{sca}}$ , respectively. In a loose sense,  $C^{\text{ext}}$  may be regarded as the shadow that a particle casts on a sensor facing the oncoming beam, although the shadow may not be well defined and dark depending on the particle size [2]. A careful examination of extinction in terms of the incident and scattered electromagnetic waves, and their associated energy-flow terms, reveals important facts. Extinction is not simply a blocking or deflection of the beam as may be thought [3]. Rather, the beam attenuation is a consequence of a subtle interference process [3–7]. The wave scattered by a particle *interferes* with the incident wave to redistribute the energy flow otherwise attributed to the beam in the particle's absence. When understood in this manner, extinction is seen

to be linked to holography [8], which provides a convenient method to measure  $C^{\text{ext}}$  under certain conditions [9].

Measurements of aerosol-particle extinction are important in many applications, such as quantifying the influence of aerosols on the Earth's radiation budget, remote sensing including lidar [10,11], and visibility in urban environments [12]. In many cases, it is important to know an aerosol's extinction over a spectrum of wavelength,  $\lambda$ . For example, the radiative impact of atmospheric aerosols occurs across, and indeed beyond, the visible spectrum spanning  $\lambda \in (380, 700)$  nm. Most conventional methods to measure aerosol extinction involve cavity ring-down (CRD), where an aerosol sample is introduced into an optical cavity [13–16]. Once calibrated, CRD provides an absolute measurement for the extinction within the cavity [13]. For an aerosol stream, the measurement originates from an ensemble of particles and it is thus difficult to associate the measurement to individual particle properties, such as particle size and shape. Consequently, supplementary analysis or assumptions are required in such measurements [13]. Combining a CRD system with an optical or electrodynamic trap permits the measurement of single particle extinction [15,16]. With the exception of spherical liquid droplets, however, it remains difficult to also know the particle size and shape [16].

The aim of this work is to explain and demonstrate a method to measure  $C^{\text{ext}}$  for fixed single particles across a broad spectrum

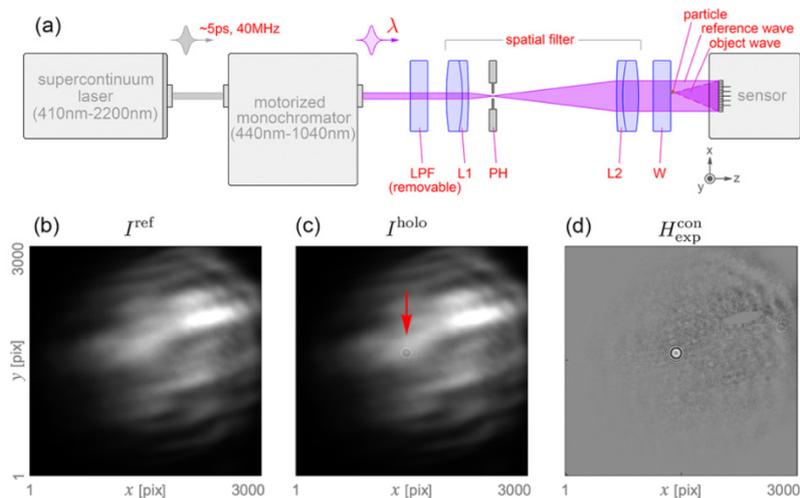
by recording and analyzing an in-line digital hologram. The concept is based on [8,9] where it is shown that  $C^{\text{ext}}$  can be estimated by integrating such holograms; see also Rivasio *et al.* [17]. The method of [18] is incorporated as well to prevent issues with [8,9] that can arise with holograms containing significant noise. Using a supercontinuum laser, the measurements below yield  $C^{\text{ext}}$  for  $\lambda \in [440, 1040]$  nm as well as images of the particles reconstructed from the same holograms. As such, a unique aspect of the method is that the measured  $C^{\text{ext}}$  is simultaneously accompanied by knowledge of the particle size and shape. The particles tested include a glass microsphere, volcanic ash, and an iron(III) oxide particle, all of which are in the  $\sim 30$   $\mu\text{m}$  to  $50$   $\mu\text{m}$  size range. This range is chosen because the images are then well resolved, which permits the use of the extinction paradox to provide an independent estimate for  $C^{\text{ext}}$ , and thus, the method's performance can be quantified across the spectrum. While not as accurate as CRD, the holographic method is comparatively simple to realize and provides particle morphology all from a single measurement. The method may thus find use in a variety of applications where extinction measurements of small particles are needed, e.g., in aerosol science, detection, and remote sensing.

## 2. METHOD

To describe the process to measure spectral extinction begins with Fig. 1(a), where the optical setup used to capture in-line holograms is shown. Here, a supercontinuum laser (Leukos, SMHP-40) emits a pulsed broadband beam with a spectrum of  $\lambda \in [410, 2200]$  nm and an approximate pulse length of 5 ps at a repetition rate of 40 MHz, and an average power of 4 W. The broadband beam, traveling along the  $z$ -axis, is then filtered by a Czerny-Turner type monochromator (Digikröm, CM110)

outputting a quasi-monochromatic beam of wavelength  $\lambda$  tunable in the range  $\lambda \in [440, 875]$  nm from the grating's first diffraction order. By installing a removable long-pass filter (LPF: Semrock, LL01-514-25), the output range is slightly extended into the IR via the grating's second diffraction order. To provide better continuity of the beam intensity  $I_o$  as  $\lambda$  is varied, the filter is installed at  $\lambda = 720$  nm. In all, this provides a tunable output of  $\lambda \in [440, 1040]$  nm, albeit with significantly reduced intensity over the extended portion of the spectrum. The filtered beam is then expanded by a spatial filter consisting of lenses L1 ( $f = 25$  mm) and L2 ( $f = 50$  mm) and a pinhole (PH: 75  $\mu\text{m}$  diameter), to a diameter of approximately 1 cm. The expanded, collimated beam then illuminates an anti-reflection coated fused quartz window (W) where a single particle resides on the window's exit-face, i.e., the face farthest from the laser. The majority of the beam continues on to illuminate a monochrome image sensor (FLIR, Grasshopper) with  $4096 \times 3000$  pixels of size  $p \times p = 3.45$   $\mu\text{m} \times 3.45$   $\mu\text{m}$ . Meanwhile, a small portion scatters from the particle, which is also received by the sensor. These waves interfere and the sensor records the intensity of the interference pattern, constituting a so-called raw hologram  $I^{\text{holo}}$  at the wavelength selected by the monochromator. Note that other optical configurations are possible to perform DIH, e.g., see [19–21].

Shown in Fig. 1(b) is an example of the sensor's output when no particle is present on W. The wavelength is set to  $\lambda = 440$  nm here. This measurement constitutes the so-called reference image,  $I^{\text{ref}}$ , since it simply resolves the beam profile. Then, a single 50  $\mu\text{m}$  diameter glass microsphere (ThermoFisher, 9000 series) is placed on W and fringes are now present, which can be seen near the red arrow in Fig. 1(c) as a collection of nested rings. This measurement provides  $I^{\text{holo}}$ . Finally, the



**Fig. 1.** (a) Optical arrangement used to record digital in-line holograms of single, fixed, micro-particles at wavelengths  $\lambda$  every 20 nm for  $\lambda \in [440, 1040]$  nm, and (b)–(d) examples of the resulting data. The output of a supercontinuum laser is filtered by a monochromator to provide a wavelength-tunable beam propagating along the  $z$ -axis in (a). The beam is expanded and its profile is partly cleaned by a spatial filter consisting of lenses (L1) and (L2) and a pinhole (PH). Then, a single particle on an anti-reflection window (W) is illuminated. Unscattered and scattered portions of the beam constitute the reference and object waves, respectively, which interfere across the sensor. In (b) is shown the reference measurement  $I^{\text{ref}}$ , the raw hologram measurement  $I^{\text{holo}}$  in (c), and the contrast hologram  $H^{\text{con}}_{\text{exp}}$  in (d). Note the particle's interference fringes in (c) near the red arrow and the same in (d).

difference  $I^{\text{ref}} - I^{\text{holo}}$  is calculated resulting in the contrast hologram,  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ , which is shown in Fig. 1(d). Note that in [22], the contrast is defined differently as  $H_{\text{exp}}^{\text{con}} = (I^{\text{ref}} - I^{\text{holo}}) / I^{\text{ref}}$ , i.e., it is normalized by the reference measurement. When one is interested in imaging particles only, there is little practical difference between these definitions. Here, however, the former definition is required since the contrast hologram should have dimensions of intensity for use in the extinction-extraction method of [9]. By scanning the monochromator in steps of  $\Delta\lambda = 20$  nm, while keeping all other parameters of the experiment constant, a collection of holograms is made covering the spectrum  $\lambda \in [440, 1040]$  nm.

Notice that to obtain  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  at different  $\lambda$ , it is necessary to repeat the measurement of  $I^{\text{ref}}$  and  $I^{\text{holo}}$  each time  $\lambda$  changes. In doing so, it is important that the particle's position in the beam does not significantly change due to the nonuniformity of  $I^{\text{ref}}$ . This is achieved by use of two identical windows  $W$  and a quick-release magnetic mount (Thor Labs, CP44F). The mount allows an optical element (the window) to be precisely positioned in the beam, easily removed, and then later replaced in the same position. One window is particle-free while the other contains the particle. For a given  $\lambda$ , the particle-free window is first installed in the mount and 10 measurements of  $I^{\text{ref}}$  are taken with constant laser and sensor settings. These are then averaged to suppress any minor fluctuations of the beam intensity. The window is then replaced by the particle-laden window and 10 more measurements are taken, and averaged, to constitute  $I^{\text{holo}}$ . Then,  $\lambda$  is changed by  $\Delta\lambda$  and the process is repeated. In this way, there is no significant change in either the position of the particle or the distance  $d$  between the particle and sensor. There is, however, a significant change in the overall beam intensity as  $\lambda$  varies, which is typical of supercontinuum lasers; see, e.g., Fig. 1(a) in [23]. Fortunately, such variation is unimportant here because the particle is stationary and the sensor exposure time can be varied (for a given  $\lambda$ ) as needed to resolve the reference and hologram images.

The contrast holograms are the main data-set used to both reconstruct an image of the particle and estimate the extinction cross section. Notice how the beam profile,  $I^{\text{ref}}$  in Fig. 1(b), is not uniform, or even smoothly varying across the image like one would expect for a Gaussian beam. This is largely due to aberrations introduced by the monochromator that remain following the spatial filter. Similar aberrations are present in  $I^{\text{holo}}$ , and so, the aberrations largely subtract in  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  and the particle's fringes become accentuated. In other words, despite the rather poor quality beam profile, good particle images can be reconstructed since the profile nonuniformity largely cancels in the contrast hologram. However, as explained in [18], there remains a sufficient degree of nonuniformity, i.e., noise, in  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  that the method of [9] to estimate  $C^{\text{ext}}$  would fail. Indeed, such noise is typical of many hologram measurements in practice and it is seen in all of the holograms taken here across the spectrum. Thus, it is necessary to first review the process of [18] used to reduce the noise in  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  before discussing the cross section results.

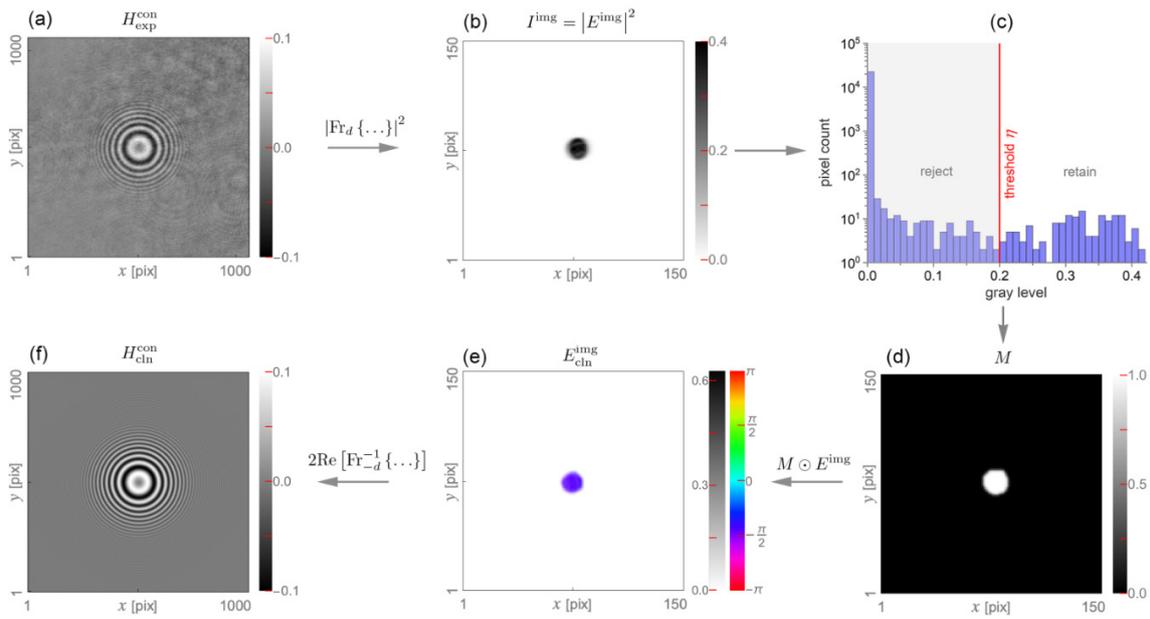
Close inspection of Fig. 1(d) reveals that the particle's interference fringes are not exactly at the center of the image. That is because the particle does not reside at the center of the beam

profile on  $W$ —recall Fig. 1(a)—although it is close to the center. The  $C^{\text{ext}}$  estimation method of [9] is simplest if the fringes do reside at the center of  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ . Also, as explained in [22], the fringes are not resolved across the entire sensor area because of the sensor's limited dynamic range. The area of the sensor not resolving fringes, which is the majority of its total area as can be seen in Fig. 1(d), then serves no useful purpose and will only burden later computations. Thus, the first task is to center and crop  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  so that the fringes appear at the center of a new  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  and its size (in pixels) is moderately larger than what is needed to retain the resolved fringes. Figure 2(a) shows the result of this process applied to Fig. 1(d). Now the particle's fringes are more visible and are seen to oscillate between positive and negative pixel gray levels as indicated by the scale bar. Also notice the noise background.

The first step to reduce the noise is to reconstruct an image  $I^{\text{img}}$  of the particle from the centered, cropped, contrast hologram. The reconstruction process is explained in many references and several approaches may be taken. Here, the Fresnel transform  $\text{Fr}_z\{\dots\}$  is used, which essentially calculates the (scalar) diffraction of a plane wave through the hologram to form the focused particle image  $I^{\text{img}}$  in a parallel image-plane at  $z = d$  as the absolute square of the complex-valued diffracted amplitude, i.e.,  $I^{\text{img}} = |E^{\text{img}}|^2$ . More detail, including the code to perform this reconstruction, is given in the tutorial [22]. The focused image is shown in Fig. 2(b), where the  $50 \mu\text{m}$  spherical particle is clearly resolved. Although it is not obvious in Fig. 2(b), there is significant noise present in the background of the image. Figure 2(c) shows a histogram of the pixel gray levels in  $I^{\text{img}}$ . Noting the log scale in this plot, we see that the majority of pixels exhibit small gray levels, i.e., a light gray or white appearance in Fig. 2(b), while the pixels of the particle image are found at the largest gray levels. Thus, by defining a threshold  $\eta$  in Fig. 2(c), it is possible to differentiate, approximately, between the particle image pixels and those that are mostly noise. In the case when there is only a single particle on  $W$ , it is found that the exact gray-level value for  $\eta$  is not critical; a value approximately at the midpoint of the gray-level range can be selected.

Next, a mask  $M$  is generated by assigning all pixels in  $I^{\text{img}}$  below  $\eta$  a value of zero and those above  $\eta$  a value of one; see Fig. 2(d). Taking the element-wise multiplication of the mask with the complex-valued image amplitude,  $M \odot E^{\text{img}}$ , has the effect of erasing the background noise, resulting in the cleaned image amplitude  $E_{\text{cln}}^{\text{img}}$  shown in Fig. 2(e). Lastly, the reconstruction process is inverted [18], i.e., by applying  $2\text{Re}\{\text{Fr}_{-d}^{-1}\{\dots\}\}$  to  $E_{\text{cln}}^{\text{img}}$ , which generates the new, cleaned hologram  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  shown in Fig. 2(f). Comparing Fig. 2(a) with Fig. 2(f) shows that, indeed, the noise present in  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  is now removed and suitable for use in the method of [9] to estimate  $C^{\text{ext}}$ .

The discussion so far concerns a hologram measurement at  $\lambda = 440$  nm. Consider Fig. 3 for a sense of the performance of the method across the spectrum. The first row shows the  $\lambda = 440$  nm results again, except a slice through  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  and  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  along the  $x$ -axis is selected, indicated by the red line in Figs. 3(a) and 3(c). Also, Fig. 3(b) shows a zoomed-in view of the particle image magnitude  $|E^{\text{img}}|$ . The magnitude better reveals the noise background surrounding the particle than does



**Fig. 2.** Demonstration of the noise-reduction method of [18] applied to the cropped and centered contrast hologram measured in Fig. 1 for  $\lambda = 440$  nm. (a), (b) Hologram and the reconstructed particle image  $I_{img}$  with scale bars revealing the pixel gray-level variations. (c) Histogram of the pixel values of (b) where small (large) gray levels denote white (black) pixels. A mask  $M$ , shown in (d), is formed by binarizing the image using a threshold  $\eta$  to zero all pixels with values less than  $\eta$ . Multiplication of  $M$  with the complex-valued image amplitude  $E_{img}$  gives the cleaned image amplitude  $E_{cln}^{img}$  of (e) where the background noise is now removed. Here, the complex-valued  $E_{cln}^{img}$  is plotted with colors representing phase and color-saturation representing magnitude. (f) A cleaned contrast hologram  $H_{cln}^{con}$  is then produced by evaluating the inverse Fresnel transform  $2Re\{Fr_d^{-1}\{\dots\}\}$  of the cleaned image amplitude.

the image intensity  $|E_{img}^{img}|^2$  in Fig. 2(b). Figure 3(d) plots the pixel gray levels along the red line in  $H_{exp}^{con}$  and  $H_{cln}^{con}$ . Comparing the measured hologram's curve (in blue) to that of the cleaned hologram (in black) clearly demonstrates a significant degree of noise reduction.

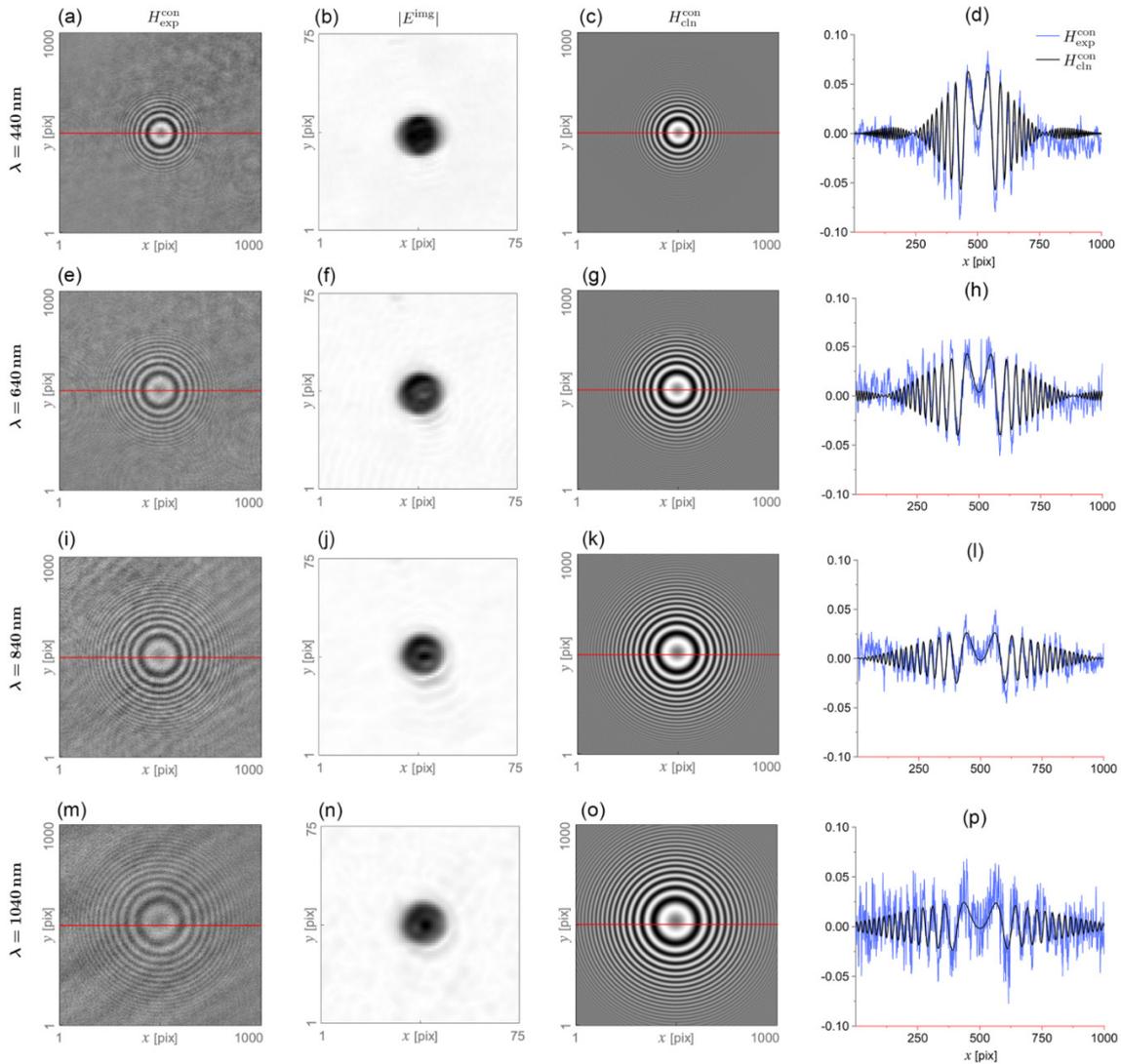
Subsequent rows in Fig. 3 show the same results for other wavelengths for the same  $50 \mu\text{m}$  spherical particle:  $\lambda = 640$  nm for Figs. 3(e)–3(h),  $\lambda = 840$  nm for Figs. 3(i)–3(l), and  $\lambda = 1040$  nm for Figs. 3(m)–3(p). Several features of the data are notable. First, compare the measured holograms as a function of increasing  $\lambda$ , i.e., going down the first column in Fig. 3. The nested-ring fringe pattern is seen to broaden as  $\lambda$  increases. Such behavior is expected from the basic nature of scattering. That is, as  $\lambda$  increases for a particle of a given size  $R$ , the size parameter  $kR = 2\pi R/\lambda$  decreases, and the angular spacing between features in the particle's scattered light will increase. Notice that the strength and structure of the noise in  $H_{exp}^{con}$  varies with  $\lambda$ . One can also see a diagonal, linear fringe pattern at  $\lambda = 840$  nm and  $\lambda = 1040$  nm, which is due to the long-pass filter installed at  $\lambda = 720$  nm. The second column in Fig. 3, going down, shows how the particle's image changes with increasing  $\lambda$ . Remember that this is the *same* particle in each image. Overall, there is an increase in the background noise with  $\lambda$  accompanied by a decrease in the image resolution. The final two columns in Fig. 3 show that despite the overall degradation of both the measured hologram or the reconstructed image, the noise reduction method performs well. Even in the worst case

with respect to noise,  $\lambda = 1040$  nm, the method is able to produce a high quality hologram from a rather low signal-to-noise measurement, which is best seen in the plot of Fig. 3(p). With such results, it is straightforward to process the reduced-noise holograms,  $H_{cln}^{con}$ , to obtain estimates of  $C^{ext}$ .

### 3. RESULTS

The measurements and methods above are applied to three particles of different characteristics: a  $50 \mu\text{m}$  diameter glass sphere, an ash particle collected from the 2021 Tajogaite volcano eruption (Cumbre Vieja ridge) on La Palma island, and an iron(III) oxide ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) particle. The spherical particle is used to calibrate the method. That is, because the particle's size and refractive index  $m(\lambda)$  are known, Lorenz-Mie theory can be used to calculate [1] values for  $C^{ext}$  and verify that the holographic images exhibit the correct particle size. The ash is chosen as an example of a unique particle with relevance to atmospheric remote sensing applications, while the iron(III) oxide particle is chosen as a loose representation of an absorbing mineral-dust particle.

Consider first Fig. 4(a) showing the cross section values obtained via [9] across the spectrum. These values are denoted  $C_{holo}^{ext}$  and are shown in black with gray error bounds. The size of the error,  $\pm 10\%$ , is based on the variability of the data in [9]. The solid red curve shows the Lorenz-Mie theory calculated cross section  $C_{Mie}^{ext}$  using the open-source software MiePlot [24].

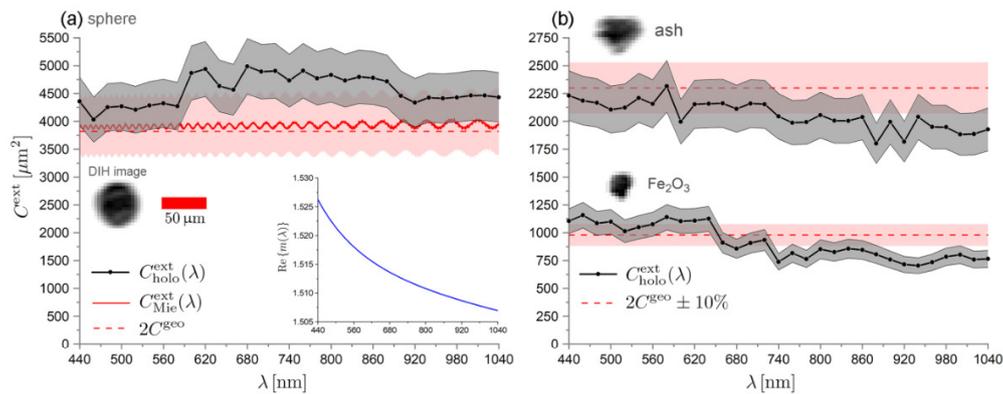


**Fig. 3.** Performance of the noise-reduction method of Fig. 2 for the 50  $\mu\text{m}$  glass microsphere at four wavelengths:  $\lambda = 440$  nm, row (a);  $\lambda = 640$  nm, row (e);  $\lambda = 840$  nm, row (i); and  $\lambda = 1040$  nm, row (m). The plots in column (d) show the noisy oscillations of the measured contrast holograms  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  in blue and the resulting noise-reduced holograms  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  in black corresponding to the red lines in the associated holograms. Column (b) shows the image magnitude,  $|E^{\text{img}}|$ , reconstructed from  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ .

An error bound is also shown, but now is based on calculating  $C_{\text{Mie}}^{\text{ext}}$  for different values of the particle diameter. The manufacturer certifies that the spheres are mono-disperse in size but with some variability, specifically,  $D = 49.3 \pm 1.4 \mu\text{m}$ . Also shown is a straight, dashed, red line representing twice the area of the particle's geometric cross section,  $C^{\text{geo}}$ . This value represents the so-called extinction paradox. In short, when a particle is much larger than the wavelength, i.e., is in the geometric regime,  $C^{\text{ext}} \sim 2C^{\text{geo}}$  independent of  $m(\lambda)$  or  $\lambda$  (provided  $\lambda \ll D$  holds) [25]. Since the sphere here is 50 to 100 times the wavelength, the geometric regime is realized and the paradox can be used as a theoretical estimate for  $C^{\text{ext}}$ . Of course, doing so

here is unnecessary since Lorenz-Mie theory is available. But, in the following, the paradox will be the only theoretical estimate possible for the other particles since Lorenz-Mie theory does not apply to non-spherical particles. Comparing  $C_{\text{Mie}}^{\text{ext}}$  to  $2C^{\text{geo}}$  in Fig. 4(a) shows that the paradox estimates the true cross section well. Lorenz-Mie theory requires  $m(\lambda)$ , which is available in [26] and is plotted in the inset in Fig. 4(a). Note that although the real part of  $m$  varies with  $\lambda$ , its imaginary part (absorption) is negligible over the spectral range.

Now consider Fig. 4(b) showing  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  for the ash and iron(III) oxide particles (black curves). Again, each curve is given a  $\pm 10\%$  error bound. To provide some sense for whether



**Fig. 4.** Hologram-estimated spectral extinction cross sections  $C^{\text{ext}}_{\text{holo}}(\lambda)$  for three particles: 50  $\mu\text{m}$  glass microsphere in (a), and volcanic ash and iron(III) oxide ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) particles in (b). The  $C^{\text{ext}}_{\text{holo}}$  values are plotted in black along with theoretical estimates in red based on either Lorenz-Mie theory for the sphere,  $C^{\text{ext}}_{\text{Mie}}$ , or the geometric area of the image  $C^{\text{ext}} \simeq 2C^{\text{geo}}$  for the other particles. The gray and red bands represent estimated error.

the values are reasonable, the paradox estimate  $C^{\text{ext}} = 2C^{\text{geo}}$  is shown (in red) with similar error bounds. Unlike the sphere, the particle sizes are not known *a priori*; they can, however, be measured from  $I^{\text{img}}$ . Using a reconstructed image of the sphere, which is shown in the inset in Fig. 4(a), the sphere's diameter in numbers of pixels  $N_p$  is found to be  $N_p \sim 17$ . Multiplying by the pixel size  $p$  provides a hologram-derived diameter  $D_b \sim 51 \mu\text{m}$ , which is in good agreement with the manufacturer-stated size range. Thus, to obtain  $C^{\text{geo}}$  for the ash and iron(III) oxide particles, one simply counts  $N_p$  over the (entire) particle image and then multiplies by  $p^2$ . The values found are  $C^{\text{geo}} \sim 1150 \mu\text{m}^2$  for ash and  $C^{\text{geo}} \sim 490 \mu\text{m}^2$  for iron(III) oxide. For reference, the 50  $\mu\text{m}$  scale bar in Fig. 4(a) applies to the holographic particle images in Fig. 4(b) as well.

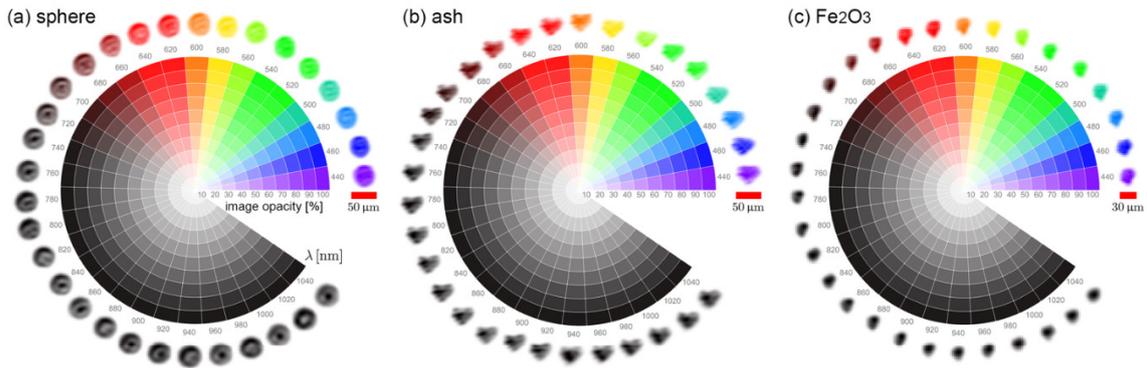
One novelty of the experiment is that by measuring holograms at every 20 nm from  $\lambda = 440 \text{ nm}$  to  $\lambda = 1040 \text{ nm}$ , it is possible to study the evolution of the reconstructed image across the visible-NIR spectrum. Although the sensor is monochrome, the image pixels can be assigned a false color based on  $\lambda$ . In Fig. 5(a), a color wheel is displayed with the reconstructed image at each  $\lambda$  around the wheel's circumference. Starting at the right side of Fig. 5(a) and going counterclockwise, the colors of each angular segment, or slice, of the wheel are selected to mimic the visual appearance of light at the  $\lambda$  indicated, ranging from  $\lambda \in [440, 700] \text{ nm}$ . Beyond  $\lambda = 700 \text{ nm}$ , in the NIR, the color becomes monochrome. Each angular segment is divided into 10 radial portions with varying saturation, or opacity. An opacity of 0%, corresponding to white, would indicate that the particle is fully transparent and no image forms. An opacity of 100% represents a completely opaque particle, and appears as a dark silhouette in the color associated with  $\lambda$  for  $\lambda < 700 \text{ nm}$ . Beyond  $\lambda = 700 \text{ nm}$ , 100% opacity simply corresponds to black.

At first view, the particle images in Fig. 5(a) show the sphere with little apparent variation. However, closer inspection reveals that the internal portions of the image display some structure, in terms of opacity, as  $\lambda$  changes. For example, compare the images for  $\lambda = 1000 \text{ nm}$  and  $\lambda = 1020 \text{ nm}$ . The  $\lambda = 1000 \text{ nm}$  image shows a disk-like region at the center that is more opaque

than the annular portion surrounding it. At  $\lambda = 1020 \text{ nm}$ , the inverse is seen. Overall, the images across all  $\lambda$  exhibit some degree of varying opacity, implying that light is not uniformly transmitted (or attenuated) through the particle, and a degree of transmission is observed in each case. At some level, this is expected because the sphere is glass, with excellent transmission properties across the spectrum, but the curved surface would still deviate the light.

The ash particle in Fig. 5(b) shows much the same qualitative behavior. The images are largely opaque for all  $\lambda$ , although some opacity structure can be discerned in cases. While the exact composition of the particle is unknown, it is likely a silicate mineral with (optically) absorbing compounds. That is, one would expect some degree of transparency, much like the glass sphere, except the opacity should vary more with  $\lambda$  due to the absorbing components. Yet, it is difficult to claim a clear wavelength-dependent change in absorption due to the small particle size and lack of sufficient detail in the images. A significantly larger particle may however, show such behavior. Because the particle is nonspherical, Fig. 5(b) is also useful to appreciate how the image resolution is affected by an increase in  $\lambda$ . The best resolved image is for  $\lambda = 440 \text{ nm}$ , and going around the figure counterclockwise, one sees that the resolution degrades. The sharp edges of the image become smoothed and slight distortions to the shape develop, becoming worse for the largest  $\lambda$ . This behavior is typical of imaging with DIH as explained, e.g., in Sec. 4.3 of [22].

Figure 5(c) shows the results for the iron(III) oxide particle. Unlike the others, here little opacity variation is seen with  $\lambda$ ; the opacity is near 100% overall. One explanation could be that this material is known to be absorbing over the spectrum. According to [27],  $\text{Im}\{m\} = 1.1$  at  $\lambda = 440 \text{ nm}$  and drops to  $\text{Im}\{m\} = 0.012$  at  $\lambda = 1040 \text{ nm}$ . While the latter value may seem comparatively small, realize that this particle is approximately 30  $\mu\text{m}$  in size, and with such size, the absorption can manifest to a significant degree. That is, consider a simple exponential description [28] of light intensity  $I$  at  $\lambda$  through a thickness  $\ell$  of material:  $I(\ell, \lambda)/I_0 \simeq \exp(-4\pi \text{Im}\{m(\lambda)\}\ell/\lambda)$ . At  $\lambda = 440 \text{ nm}$ ,  $I/I_0 = 0$  and at  $\lambda = 1040 \text{ nm}$ ,  $I/I_0 \simeq 0.01$ ,



**Fig. 5.** Behavior of the false-color reconstructed images  $J^{\text{img}}$  of the particle in Fig. 4 across the spectrum. Each image thumbnail is reconstructed from  $H_{\text{clin}}^{\text{con}}$  for the  $\lambda$  indicated around the circumference of the color wheel and assigned a color. The color approximately conveys what the eye would perceive for that  $\lambda$  while the saturation indicates the opacity of the image. In the NIR, the color is monochrome. Notice how different particle types exhibit opacity structure in their image, or a lack thereof, as  $\lambda$  advances counterclockwise around the wheel.

which is only 1% transmission of light. Thus, one would indeed expect a completely opaque appearance for all images here. Also notable in Fig. 5(c) is the impact of  $\lambda$  on image resolution. Again,  $\lambda = 440$  nm represents the best-resolution image. By the point that  $\lambda$  has increased into the NIR, the images show somewhat more degradation than the other particles. Likely, this is due to the smaller particle size.

As a final remark, Fig. 5 qualitatively explains some of the errors in  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  in Fig. 4. For example, the trend in the  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  values for the iron(III) oxide particle in Fig. 4(b) drops around  $\lambda = 660$  nm. And in Fig. 5(c), the images appear to become slightly smaller due to the resolution degradation and this seems to persist for larger wavelength. Notice that the trend correlates with the decrease of  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  with  $\lambda$  away from the paradox estimate. While it is tempting to attribute the discrepancy between  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  and the paradox estimate to this decrease in image size, Fig. 3 does not support that interpretation. That is, although a smaller image would produce a smaller mask  $M$  in Fig. 2(d), the holograms  $H_{\text{clin}}^{\text{con}}$  generated from the masked reconstructed image still agree well with the measured holograms,  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$ . Further investigation is needed to understand the origin for the drift of  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  in Fig. 4 away from the paradox estimate.

#### 4. DISCUSSION

In all, Fig. 4 demonstrates that the estimation of  $C^{\text{ext}}$  across the spectrum performs reasonably well. Overlap of the  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  and theoretical values is seen for portions, but not all, of the spectrum. Aside from the factors already described, the source of the disagreement between  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  and  $C_{\text{Mie}}^{\text{ext}}$  (for the sphere) or the paradox estimate is difficult to isolate. One possibility not accounted for in Fig. 4 relates to the supercontinuum beam. Referring to Fig. 1(a), if the beam is not well collimated between the particle window ( $W$ ) and the sensor, the extinction-extraction method of [9,18] may not yield  $C^{\text{ext}}$  accurately. For example, suppose the beam is slightly diverging over this distance. Then, the hologram pattern would be slightly magnified in size across the sensor, leading to an estimated  $C^{\text{geo}}$  greater than the true value. The inverse would be true as well,

i.e., a converging beam would underestimate  $C^{\text{geo}}$ . The possibility is relevant because the monochromator used slightly alters the input-beam characteristics as it scans the spectrum. Given that the hologram fringes also naturally expand (contract) as  $\lambda$  increases (decreases) for a *collimated* beam—recall Fig. 3—it is difficult to deconvolute the effect from any that may be due to the monochromator. In future work, one could resolve such effects by slight translations of the beam-expander lenses in Fig. 1(a) or by replacement, or elimination, of the monochromator.

Whether or not the errors in Fig. 4 are acceptable would depend on the application, but certainly, the results are far from the accuracy expected from CRD measurements. However, the particle-ensemble nature of CRD measurements prevents knowledge of individual particle properties. Here, however, one has an image, and so can interpret  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  with knowledge of the particle size and shape. Moreover, Fig. 5 suggests that the (spectral) particle images may give some sense for whether optical absorption is a significant contribution to the extinction. That is, the iron(III) oxide in Fig. 5(c) displays significantly more image opacity than the glass sphere in Fig. 5(a), suggesting that absorption is a more significant contribution to the extinction for  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  than it is for the sphere. Of course, knowing the compositions of the particles, that claim is obvious. But one may find use in applying the same argument to particles of unknown composition.

Next, consider the coherence properties of the supercontinuum laser. One may wonder how well holography could be done with such a light source simply based on the inverse relationship between the temporal coherence length  $L_c$  and the bandwidth  $\Delta\lambda$  of the source, namely,  $L_c \sim \lambda^2/\Delta\lambda$  [29]. The formation of quality images in DIH requires the resolution of as many interference fringes as possible and with the supercontinuum source operating with  $\Delta\lambda \sim 600$  nm, a coherence length of  $L_c < 1$   $\mu\text{m}$  may be expected. While the true coherence properties of supercontinuum lasers appear to be more complicated than this simple description, an  $L_c$  of such scale would imply difficulty to form holograms with sufficient fringes to image particles larger than  $L_c$ . Of course, the results in, e.g., Fig. 3,

demonstrate that this is not the case. The reason, we assess, is at least partly because the light is passed through the monochromator, which outputs a beam of far smaller bandwidth, usually several nanometers in scale. Thus, the light used to form the holograms is, in reality, sufficiently coherent and quality images can be obtained. Note that this also implies that one could apply the method here using conventional monochromatic lasers, where  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  would be provided for a single  $\lambda$ , as demonstrated in [9].

One point to discuss concerns the twin image produced in DIH and the impact it could have on the images in Fig. 5. For any DIH measurement, the reconstruction process always produces two images of the particle. When one is well focused, the other is strongly blurred and appears as a diffuse system of rings surrounding the focused image. This twin image is caused by the reference and object waves in the measurement arrangement sharing the same optical axis, i.e., an on-axis arrangement. In cases where the particle size is a significant fraction of the beam diameter, the twin is usually detrimental and other approaches, such as an off-axis arrangement, are advised for imaging purposes. Here, however, the particles are far smaller, and in such cases, simply performing the reconstruction from the *contrast* hologram usually suppresses the twin's effect strongly, e.g., see Fig. 12 in [22]. Nevertheless, the twin is not completely removed and one may wonder if it affects the formation of the mask  $M$  in Fig. 2(d). If so, then erroneous results for  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  and  $C_{\text{holo}}^{\text{ext}}$  may result. Such is not the case for particles of the size considered here. The clearest evidence for this can be seen in Fig. 3, fourth column, where the agreement between  $H_{\text{exp}}^{\text{con}}$  and  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  in terms of the angular spacing of the fringes is excellent. If the twin were significant in the reconstruction, then the resulting mask would be larger than it should be. The consequence would be an  $H_{\text{cln}}^{\text{con}}$  corresponding to a (falsely) larger particle, and thus, a mismatch between the fringe patterns in Fig. 3, which is not seen.

As a final remark, the results of this work could be viewed as somewhat trivial in that the particles are each sufficiently large that the paradox provides an estimate for  $C^{\text{ext}}$  well within 10% error; recall Fig. 4(a). The absence of wavelength dependence in the paradox (provided  $\lambda \ll D$ ) means that one simply needs to reconstruct a particle's image, determine  $C^{\text{geo}}$ , and multiply the result by two to obtain a good estimate for  $C^{\text{ext}}$ . In other words, for such large particles, the method of [9] is unnecessary. Much better would be to test the method above on particles roughly 1–5  $\mu\text{m}$  in overall size, where  $C^{\text{ext}}$  is known to change strongly with  $\lambda$  and where  $C^{\text{ext}}$  cannot be obtained directly from the particle image, thus necessitating the method of [9]. Indeed, it is shown via simulations in [9] that  $C^{\text{ext}}$  estimates with error less than 10% can be obtained for particles as small as  $D \sim \lambda/3$ , although this remains to be shown from measurements. With the experimental parameters in Fig. 1, e.g.,  $\lambda \in [440, 1040]$  nm,  $p = 3.45$   $\mu\text{m}$ , etc., the image resolution is approximately  $2p = 6.9$   $\mu\text{m}$ , and likely larger [22]. Thus, particles smaller than  $\sim 7$   $\mu\text{m}$  would be completely unresolved and no paradox estimate for  $C^{\text{ext}}$  could be made since  $C^{\text{geo}}$  could not be found. We therefore focus on particles large enough to yield unambiguous  $C^{\text{geo}}$  values, thereby enabling a paradox estimate. In addition, particles 1–5  $\mu\text{m}$  in size scatter light orders of magnitude less than the larger particles here. We find that with the equipment used, holograms for such small

particles could not be resolved above the sensor noise-floor due to its limited dynamic range. A sensor with increased pixel size  $p$  will feature a greater dynamic range, but of course, that simultaneously raises the resolution limit  $2p$ ; see Sec. 4 in [22]. A solution may be to employ a telecentric lens between  $W$  and the sensor in Fig. 1 to magnify the hologram interference pattern and future work may consider this approach.

**Funding.** Army Research Office (W911NF2120053); National Science Foundation (2107715); Air Force Office of Scientific Research (FA9550-19-1-0078, FA9550-21-1-0339).

**Acknowledgment.** The authors thank Guillaume Huss from Leukos for developing and proving the laser source.

**Disclosures.** The authors declare no conflicts of interest.

**Data availability.** Data underlying the results presented in this paper are not publicly available at this time but may be obtained from the authors upon reasonable request.

## REFERENCES

- C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, 2008).
- H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (Courier Corporation, 1981).
- M. J. Berg and C. M. Sorensen, "A review and reassessment of diffraction, scattering, and shadows in electrodynamics," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **210**, 225–239 (2018).
- M. J. Berg, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti, "Extinction and the optical theorem. Part I. Single particles," *J. Opt. Soc. Am. A* **25**, 1504–1513 (2008).
- M. J. Berg, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti, "Extinction and the optical theorem. Part II. Multiple particles," *J. Opt. Soc. Am. A* **25**, 1514–1520 (2008).
- M. I. Mishchenko, M. J. Berg, C. M. Sorensen, *et al.*, "On definition and measurement of extinction cross section," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **110**, 323–327 (2009).
- R. Ceolato and M. J. Berg, "Aerosol light extinction and backscattering: a review with a lidar perspective," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **262**, 107492 (2021).
- M. J. Berg, N. R. Subedi, P. A. Anderson, *et al.*, "Using holography to measure extinction," *Opt. Lett.* **39**, 3993–3996 (2014).
- M. J. Berg, N. R. Subedi, and P. A. Anderson, "Measuring extinction with digital holography: nonspherical particles and experimental validation," *Opt. Lett.* **42**, 1011–1014 (2017).
- A. Comeron, C. Munoz-Porcar, F. Rocadenbosch, *et al.*, "Current research in lidar technology used for the remote sensing of atmospheric aerosols," *Sensors* **17**, 1450 (2017).
- R. Ceolato, A. E. Bedoya-Velasquez, F. Fossard, *et al.*, "Black carbon aerosol number and mass concentration measurements by picosecond short-range elastic backscatter lidar," *Sci. Rep.* **12**, 8443 (2022).
- P. Kulkarni, P. A. Baron, and K. Willeke, *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications* (Wiley, 2011).
- H. Moosmüller, R. Varma, and W. P. Arnott, "Cavity ring-down and cavity-enhanced detection techniques for the measurement of aerosol extinction," *Aerosol Sci. Technol.* **39**, 30–39 (2005).
- T. Baynard, E. R. Lovejoy, A. Pettersson, *et al.*, "Design and application of a pulsed cavity ring-down aerosol extinction spectrometer for field measurements," *Aerosol Sci. Technol.* **41**, 447–462 (2007).
- J. S. Walker, A. E. Carruthers, A. J. Orr-Ewing, *et al.*, "Measurements of light extinction by single aerosol particles," *J. Phys. Chem. Lett.* **4**, 1748–1752 (2013).
- M. I. Cotterell, J. W. Knight, J. P. Reid, *et al.*, "Accurate measurement of the optical properties of single aerosol particles using cavity ring-down spectroscopy," *J. Phys. Chem. A* **126**, 2619–2631 (2022).
- C. Ravasio, L. Cremonesi, C. Artoni, *et al.*, "Optical characterization of mineral dust from the eaiist project with digital holography," *ACS Earth Space Chem.* **5**, 2855–2864 (2021).

18. M. J. Berg, K. Aleau, and R. Ceolato, "Measuring extinction with digital holography: noisy holograms," *Opt. Express* **31**, 43213–43223 (2023).
19. B. Javidi, A. Carnicer, A. Anand, *et al.*, "Roadmap on digital holography [invited]," *Opt. Express* **29**, 35078–35118 (2021).
20. J. Li, W. Zhang, and A. Engarnevis, "Holographic imaging platform for particle discrimination based on simultaneous mass density and refractive index measurements," *Opt. Express* **31**, 38989–39006 (2023).
21. M. J. Berg and G. Videen, "Digital holographic imaging of aerosol particles in flight," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **112**, 1776–1783 (2011).
22. M. J. Berg, "Tutorial: aerosol characterization with digital in-line holography," *J. Aerosol Sci.* **165**, 106023 (2022).
23. R. Ceolato, K. Aleau, L. Paulien, *et al.*, "Multispectral small-angle light scattering from particles," *Opt. Lett.* **46**, 3155–3158 (2021).
24. P. Laven, "MiePlot v4.6," 2023, <http://www.philiplaven.com/mieplot.htm>.
25. M. J. Berg, C. Sorensen, and A. Chakrabarti, "A new explanation of the extinction paradox," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **112**, 1170–1181 (2011).
26. "Optical glass data sheets," 2023, <https://www.schott.com/en-gb/products/optical-glass-p1000267/downloads>.
27. M. R. Querry, "Optical constants," Technical Report ADA158623 (US Army Armament, Munitions & Chemical Command, Chemical Research, 1985).
28. M. I. Mishchenko, *Electromagnetic Scattering by Particles and Particle Groups: An Introduction* (Cambridge University, 2014).
29. Y. Deng and D. Chu, "Coherence properties of different light sources and their effect on the image sharpness and speckle of holographic displays," *Sci. Rep.* **7**, 5893 (2017).