

# MISE EN EVIDENCE DU COUPLAGE OPTIQUE INTERNE ENTRE MONOMERES A L'AIDE DE L'ANALYSE PHASEURIELLE

C. Argentin<sup>1</sup>, M.J. Berg<sup>2</sup>, M. Mazur<sup>1</sup>, R. Céolato<sup>3</sup> et J. Yon<sup>\*1</sup>

<sup>1</sup>CORIA, UNIROUEN, INSA Rouen, 76000 Rouen, France

<sup>2</sup>Department of Physics, Kansas State University, KS 66506-2601, USA

<sup>3</sup>ONERA, The French Aerospace Lab, Université de Toulouse, 31055 Toulouse, France

\*Courriel de l'orateur : [argentic@coria.fr](mailto:argentic@coria.fr)

## TITLE

**Highlighting internal optical coupling between monomers using phasor analysis**

## ABSTRACT

The theory of Rayleigh-Debye-Gans (RDG) is an approximation used for light scattering and absorption by nanoparticles in the visible spectrum of light. The aim of this study is to highlight the origin of the deviations between accurate calculations of forward scattering and those predicted by the approximate RDG theory. For this purpose, we analyze the internal electric field using a phasor analysis within two nano-spheres in several cases. The two spheres are either separated or overlapped and their radiative properties are investigated using the discrete dipole approximation (DDA). The phasor approach reveals the influence of the bisphere orientation, absorption function  $E(m)$ , scattering function  $F(m)$ , and wavelength.

## RESUME

La théorie de Rayleigh-Debye-Gans est une approximation utilisée pour la diffusion et l'absorption de la lumière par des nanoparticules dans le spectre visible de la lumière. L'objectif de cette étude est de mettre en évidence l'origine des déviations observées entre des sections efficaces d'absorption et de diffusion calculées avec précisions et celles prédites par l'approximation de RDG. Dans ce but, nous analysons le champ électrique interne en utilisant une analyse de phaseurs sur des nanoparticules bi-sphériques pour différents cas. Les deux sphères sont étudiées soit, en recouvrement, soit, séparées avec l'approximation discrète dipolaire (DDA). L'approche phaseurielle révèle l'influence de l'orientation de la bisphère, de la fonction d'absorption  $E(m)$ , de la fonction de diffusion  $F(m)$ , et de la longueur d'onde.

**KEYWORDS:** Bisphere, Rayleigh-Debye-Gans approximation, Discrete dipole approximation, Phasor analysis.

**MOTS-CLÉS:** Bisphere, Approximation de Rayleigh-Debye-Gans, Approximation discrète dipolaire, Analyse phaseurielle.

## 1. CONTEXTE ET MOTIVATIONS

L'approximation de Rayleigh-Debye-Gans (RDG) pour les agrégats fractals (FA), appelée ici RDGFA, a l'avantage d'être analytiquement simple. Elle est caractérisée par deux hypothèses principales : 1) les monomères constituant l'agrégat diffusent et absorbent dans le régime d'échelle de longueur de Rayleigh ( $a < \lambda$ ), et 2) le couplage interne dans l'agrégat est négligé, c'est-à-dire que, les monomères diffusent et absorbent indépendamment des autres et comme s'ils étaient illuminés uniquement par l'onde incidente.

De précédentes études ont été menées dans le but d'améliorer la fiabilité de la RDGFA tout en préservant sa simplicité. Certains auteurs ont proposé des termes correctifs à apporter à la RDGFA afin de compenser son imprécision qui peut atteindre environ 30% en ce qui concerne les sections efficaces d'absorption et de (Yon et al.(2012), Sorensen et al.(2018)).

Dernièrement, Sorensen et al.(2018) ont montré l'influence des parties réelles et imaginaires de l'indice optique  $m = n + ik$  sur la correction  $A$  à apporter en ce qui concerne la diffusion avant  $A$  (ratio de l'intensité diffusée dans la direction de propagation de l'onde par l'agrégat calculée avec la méthode multisphères T-matrix par celle calculée par la RDGFA).

Cette étude a pour objectif de mieux comprendre les mécanismes physiques provoquant l'écart à la théorie RDG pour la diffusion avant et donc le correctif  $A$ . Pour se faire, on focalise l'étude sur l'interaction entre deux sphères dont la distance entre les centres est modifiée ainsi que l'indice optique (cette fois-ci en faisant varier les fonctions d'absorption et de diffusion  $E(m)$  et  $F(m)$ ). On reprend, en premier lieu, une analyse macroscopique, similaire à celles des travaux antérieurs. En second lieu, on propose une analyse au champ proche en adaptant l'approche phaseurielle introduite par Berg et al.(2012). Cette dernière méthode permet d'évaluer la contribution de chaque élément de matière au sein de la bisphère sur le paramètre  $A$  par le biais du champ électrique interne.

## 2. METHODOLOGIE

Dans cette étude, le champ électrique interne et les sections efficaces de diffusion « exactes » ont été évalués à l'aide du code DDA « DDSCAT » développé par Draine et al.(2010).

Pour ces calculs, on considère une onde incidente plane polarisée linéairement décrite par  $\mathbf{E}^{inc}(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{y}}E_0e^{ik\hat{\mathbf{x}}\cdot\mathbf{r}}$  où  $E_0$  est une constante,  $\hat{\mathbf{y}}$  la direction de polarisation de l'onde et  $\hat{\mathbf{x}}$  la direction de propagation. Les deux sphères de rayons  $a = 21.1\text{nm}$  sont discrétisées en dipôles dont la distance de séparation vaut  $d = 1.77\text{nm}$ , de manière à respecter les critères de convergences du code, qui sont  $|m|kd < 0.5$  et  $|m - 1| < 2$ .

L'approche DDA repose donc sur une discrétisation de l'équation du volume intégrale VIE. Ceci permet, en sommant les contributions de chaque dipôle (associé à un volume  $\Delta V$ ), d'évaluer l'expression de l'amplitude du champ électrique diffusé au point  $\mathbf{r}$  en champ lointain par l'expression :

$$\mathbf{E}_{1,vv}^{sca}(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{y}} \frac{3k^2}{4\pi} \frac{m^2-1}{m^2+2} E_0 \sum_{i=1}^N z_{y,i}(\hat{\mathbf{r}})\Delta V, \quad (1)$$

où « vv » correspond à la polarisation verticale-verticale de l'onde incidente et diffusée, ici  $\hat{\mathbf{y}}$ , et  $z_{y,i}$  le phaseur lié à l'élément de volume « i ». Le phaseur est lui-même défini par

$$z_{y,i}(\hat{\mathbf{r}}) = \frac{m^2+2}{3E_0} E_y^{int}(\mathbf{r}_i) \exp(-ik\hat{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{r}_i). \quad (2)$$

L'interprétation physique de ces phaseurs est que le champ électrique diffusé peut être représenté comme la superposition de plusieurs ondes sphériques avec des amplitudes complexes rayonnées par chaque élément de volume dépendant du champ électrique interne local. Ces ondes vont interférer à travers leurs amplitudes et leurs décalages de phases causés par les variations du champ électrique interne local.

Afin de considérer les effets d'orientation de la bisphère, 400 différentes orientations isotropiques de la bisphère sont considérées.

## 3. RESULTATS

### 3.1. Distance effective de couplage

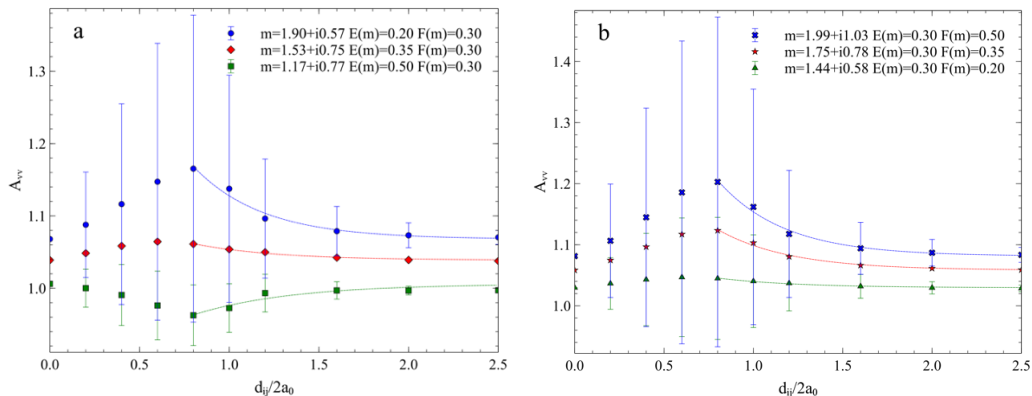


Figure 1. Evolution du paramètre  $A$  pour une bisphère. Les figures (a) et (b) présentent  $A$  en fonction de la distance centre à centre  $d_{ij}$  des sphères normalisées par le diamètre des sphères  $2a$  et l'indice optique  $m$  est modifié pour garder  $F(m)$  constant dans la partie a et  $E(m)$  constant dans la partie b.

La Figure 1 montre l'évolution du terme correctif à apporter à la RDG pour la diffusion avant pour deux sphères en recouvrement  $d_{ij}/2a < 1$ , en point de contact  $d_{ij}/2a = 1$ , et sans contact  $d_{ij}/2a > 1$ . Les symboles correspondent à différentes valeurs de  $m$ . Dans la Fig. 1(a), la fonction de diffusion est fixée à  $F(m) = 0.30$  et la fonction d'absorption varie et l'on procède de façon inversée dans la Fig. 1(b). Dans ces figures les barres

représentent les écarts types du paramètre  $A$  lorsque ce dernier est évalué pour différentes orientations de la bisphère.

Augmenter la distance  $d_{ij}$  pour une bisphère en recouvrement correspond à une augmentation linéaire du correctif  $A$  jusqu'à atteindre une déviation maximale autour de  $d_{ij} \approx 0.8$ . Cette évolution est suivie par une augmentation de l'amplitude des barres indiquant une dispersion croissante. Pour  $d_{ij} > 0.8$ , la déviation suit une exponentielle décroissante ou croissante. Il est intéressant de noter qu'une asymptote est atteinte pour  $d_{ij}/2a \geq 2$  où la valeur de  $A$  est identique à celle obtenue pour une sphère seule ( $d_{ij}/2a = 0$ ). Ce comportement asymptotique indique que le couplage électromagnétique entre les deux sphères n'affecte pas le champ électrique interne de chacune et donc qu'elles peuvent être traitées avec l'approximation d'une diffusion unique, sans couplage.

### 3.2. Approche phaseurielle

Nous appliquons maintenant l'analyse phaseurielle proposée par Berg dans le but de comprendre l'influence de l'interaction entre les deux sphères sur le paramètre  $A$ . Dans la figure 2, on reporte en vert, dans le plan complexe, le phaseur associé à chaque dipôle élémentaire. La dispersion de ces points est une indication de l'inhomogénéité du champ électrique interne. A noter que l'approche RDG repose sur une hypothèse de champ interne uniforme. Cette dispersion est donc une première indication de la déviation à la RDG. Il est cependant également possible de montrer que le correctif à apporter à la RDG (pour une orientation  $\Psi$  de la bisphère) peut se déduire de l'amplitude du phaseur moyen :

$$A_{vv}(\Psi) = \frac{\frac{dc_{vp}^{sca}(0^\circ)}{d\Omega}}{\frac{dc_{vv, RDG}^{sca}(0^\circ)}{d\Omega}} = |\bar{z}_y|^2 \quad (3)$$

La figure 2 représente les phaseurs pour une sphère isolée et pour deux bisphères en recouvrement  $d_{ij} = 0.8$  orientées horizontalement puis verticalement par rapport au sens de propagation de l'onde incidente « x ». Les phaseurs sont représentés en points verts, le phaseur moyen en jaune, et le phaseur RDG ( $z_{RDG} = 1 + 0i$ ) en noir.

Pour le cas de la sphère seule (a) on peut voir que la dispersion des phaseurs est très faible et centrée autour de 1, autrement dit  $A \approx 1$  (correction à apporter à la RDG très faible). A l'inverse, pour les deux autres cas (b) et (c), la dispersion est plus importante et tend à accroître ou décroître la valeur de  $A$ . On peut donc noter l'importance de l'orientation de la bisphère dans le calcul du terme correctif puisque cette dernière peut conduire à une sous-estimation de la diffusion avant par la RDG ( $A > 1$ ) ou à une surestimation lorsque  $A < 1$ . Cette dispersion des valeurs de  $A$  en fonction de l'orientation nous permet de mieux comprendre l'origine des barres verticales dans la figure 1.

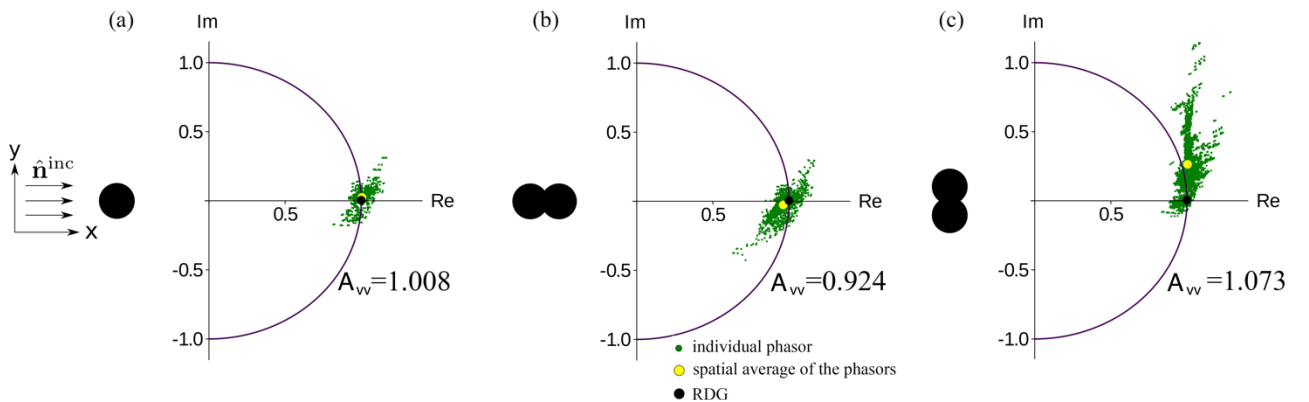


Figure 2. Plots des phaseurs pour une unique sphère (a), une bisphère en recouvrement ( $d_{ij} = 0.8$ ) orientée horizontalement (b), et verticalement (c). L'indice optique est  $m = 1.17 + i0.77$ , le paramètre de taille de la bisphère est  $ka_{eq} = 0.314$ .

### 3.3 Représentation spatiale

La figure 3 représente la contribution élémentaire de chaque dipôle au terme  $A_{vv}$  non plus en représentation polaire mais en représentation spatiale de  $A_{vv,i}$  (où  $A_{vv} = 1/N \sum_{i=1}^N A_{vv,i}$ ). Les graphiques de la figure 3 correspondent aux phasors présentés dans la figure 2 pour la bisphère du graphiques (b) et (c). L'avantage de cette représentation est de localiser l'origine spatiale de la dispersion du champ électrique interne et donc du phaseur et donc du correctif à apporter à la RDG. Ces deux graphiques nous montrent des corrections locales supérieures ou inférieures à 1 selon leur localisation au sein de la bisphère. Celles-ci semblent être amplifiées au point de contact de la bisphère. Ce contact est le lieu de la dispersion la plus forte des phaseurs représentés en figure 2. L'origine de la déviation du correctif RDG  $A_{vv}$  est expliquée par cette non-uniformité accentuée en ces points. Ce phénomène est lié à une amplification du champ électrique interne produit par la morphologie de l'objet, appelé effet de pointe.

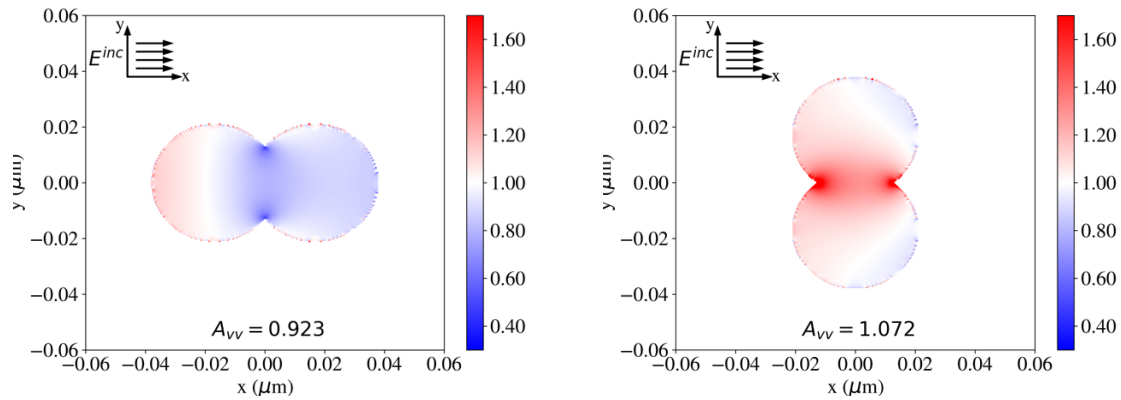


Figure 3. Section efficace représentant la contribution locale des  $A_{vv,i}$  pour une bisphère orientée horizontalement puis verticalement avec un indice de  $m = 1.17 + 0.77i$  et en recouvrement ( $d_{ij}/2a = 0.8$ ).

## Références

Yon J., Liu F., Bescond A., Caumont-Prim C., Roze C., Ouf F.-X., Coppalle A. Effects of multiple scattering on radiative properties of soot fractal aggregates. *J Quant Spectrosc Radiat Transfer* 133:374-81 (2014)

Sorensen C.M., Yon J., Liu F., Maughan J., Heinson W.R., Berg M.J. Light scattering and absorption by fractal aggregates including soot *J Quant Spectrosc Radiat Transfer* 217:459-73 (2018)

Berg M.J., "Power-law patterns in electromagnetic scattering: a selected review and recent progress" *J Quant Spectrosc Radiat Transfer* 113:2292-2309 (2012)

Draine B.T. and P. J. Flatau. "User Guide for the Discrete Dipole Approximation Code DDSCAT 7.1 (<https://arxiv.org/abs/1305.6497>)." astro-ph.IM, (2010).