

# Diffusion de la lumière dans des milieux magnéto-optiques et chiraux

thèse de D. Lacoste

8 décembre 1999

# Table des matières

<b>I</b>	<b>Diffusion simple par des diffuseurs anisotropes</b>	<b>5</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>6</b>
1.1	Diffusion de la lumière . . . . .	6
1.2	Ondes classiques et ondes de matière . . . . .	8
1.3	Plan de la thèse . . . . .	11
<b>2</b>	<b>Propagation dans les milieux magnéto-optiques et chiraux</b>	<b>12</b>
2.1	Introduction à la magnéto-optique . . . . .	12
2.1.1	Théorie classique de l'effet Faraday . . . . .	12
2.1.2	Loi de Verdet pour les corps diamagnétiques . . . . .	13
2.2	Propagation dans un milieu magnéto-optique . . . . .	14
2.2.1	Lois de la réfraction . . . . .	16
2.2.2	Vecteur de Poynting . . . . .	18
2.3	Introduction aux milieux chiraux . . . . .	19
2.4	Propagation dans un milieu chiral . . . . .	20
<b>3</b>	<b>Approche microscopique de la diffusion simple</b>	<b>24</b>
3.1	Propagateurs . . . . .	24
3.2	Matrice $T$ . . . . .	26
3.2.1	Symétries de la matrice $T$ . . . . .	27
3.2.2	Principe de réciprocité . . . . .	28
3.3	Diffuseur ponctuel . . . . .	29
3.3.1	Diffuseur ponctuel sous champ magnétique . . . . .	31
3.4	Diffusion de Mie . . . . .	32
3.4.1	Libres parcours moyens . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Diffusion de Mie dans des milieux magnéto-optiques et chiraux</b>	<b>36</b>
4.1	Introduction . . . . .	36

4.2	Théorie des perturbations . . . . .	37
4.3	Formalisme quantique pour la diffusion de Mie . . . . .	39
4.4	Structure du champ électromagnétique de Mie . . . . .	40
4.5	Théorème de Wigner-Eckhart . . . . .	41
4.6	Matrice T sous champ magnétique . . . . .	43
4.7	Diffuseur chiral . . . . .	44
4.8	Polarisation et moment angulaire . . . . .	46
4.9	Temps de séjour . . . . .	48
4.10	Optique géométrique . . . . .	50
4.10.1	Temps de séjour dans un Fabry-Perot . . . . .	51
4.10.2	Arc en ciel et gloire . . . . .	55
<b>A</b>	<b>Optics of a Faraday-active Mie Sphere</b>	<b>59</b>
A.1	Introduction . . . . .	61
A.2	Perturbation theory . . . . .	61
A.3	T matrix for Mie scattering . . . . .	62
A.3.1	T-matrix without magnetic field . . . . .	64
A.3.2	$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1$ when $\hat{\mathbf{k}} \neq \hat{\mathbf{k}}'$ . . . . .	64
A.3.3	Particular case for $\mathbf{T}^1$ for forward scattering . . . . .	66
A.3.4	Optical Theorem . . . . .	66
A.4	Magneto-transverse Scattering . . . . .	67
A.5	Magneto-transverse scattering as a function of the size parameter . . . . .	68
A.5.1	Rayleigh scatterers . . . . .	70
A.5.2	Geometrical Optics . . . . .	73
A.6	Summary and Outlook . . . . .	74
<b>B</b>	<b>Stokes parameters from a Faraday-active Mie sphere</b>	<b>77</b>
B.1	Introduction . . . . .	78
B.2	Perturbation theory . . . . .	78
B.3	T matrix for Mie scattering . . . . .	79
B.3.1	The amplitude matrix . . . . .	80
B.3.2	General case for $\mathbf{T}^1$ when $\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' \neq 0$ . . . . .	81
B.3.3	Particular case for $\mathbf{T}^1$ when $\hat{\mathbf{k}} = \hat{\mathbf{k}}'$ and $\hat{\mathbf{k}} = -\hat{\mathbf{k}}'$ . . . . .	83
B.4	Magneto-transverse Scattering . . . . .	83
B.5	Stokes parameters . . . . .	85
B.5.1	Forward and backward directions . . . . .	89
B.6	Summary and Outlook . . . . .	90

B.7	Derivation of reciprocity and parity relations . . . . .	90
<b>C</b>	<b>Conventions pour la représentation du champ électromagnétique</b>	<b>94</b>
C.1	Harmoniques sphériques vectorielles . . . . .	94
C.2	Fonctions de Bessel . . . . .	95
<b>II</b>	<b>Diffusion multiple en milieux anisotropes</b>	<b>96</b>
<b>1</b>	<b>Transport radiatif dans les milieux désordonnés</b>	<b>97</b>
1.1	Amplitude moyenne . . . . .	98
1.2	Théorie phénoménologique du transport . . . . .	100
1.3	Equation de Bethe-Salpether . . . . .	102
1.4	L'approximation de diffusion . . . . .	103
1.4.1	Diffusion par une tranche . . . . .	105
<b>2</b>	<b>Effet Hall Photonique</b>	<b>107</b>
2.1	Introduction . . . . .	107
2.2	Diffusion magnéto-transverse dans le régime de Mie . . . . .	108
2.2.1	Généralités . . . . .	108
2.2.2	Modèle de théorie du transport . . . . .	109
2.2.3	Modèle de théorie des champs . . . . .	111
2.3	Dispositif expérimental . . . . .	114
2.4	Premières expériences . . . . .	115
2.5	Interprétation . . . . .	118
2.6	Dépendance en fonction de la concentration . . . . .	120
2.7	Dépendance en fonction de l'absorption . . . . .	124
<b>A</b>	<b>Magneto-transverse light diffusion</b>	<b>128</b>
<b>3</b>	<b>Rétrodiffusion cohérente</b>	<b>136</b>
3.1	Rétrodiffusion cohérente sous champ magnétique . . . . .	138
<b>B</b>	<b>Coherent backscattering of light in a magnetic field</b>	<b>140</b>
B.1	Introduction . . . . .	142
B.2	T-matrix in a magnetic field . . . . .	142
B.3	Diffusion of light in a magnetic field . . . . .	144
B.4	Depolarization length . . . . .	147
B.5	Faraday rotation for multiple Rayleigh scattering . . . . .	148

B.6	Faraday rotation for multiple Mie scattering . . . . .	152
B.7	Mie resonances . . . . .	152
B.8	Shift of the intensity profile of the coherent backscattering cone in a magnetic field . . . . .	154
B.9	Conclusion . . . . .	159
B.10	Appendix: cone matrix element . . . . .	160
<b>4</b>	<b>Diffusion multiple dans les milieux chiraux</b>	<b>165</b>
4.1	Introduction . . . . .	165
4.2	Théorie microscopique . . . . .	166
4.3	Transport de l'énergie . . . . .	168
4.4	Paramètres de Stokes . . . . .	170
<b>III</b>	<b>Effet Hall Photonique dans les ferrofluides</b>	<b>173</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>174</b>
1.1	Magnéto-optique des ferromagnétiques . . . . .	176
<b>2</b>	<b>Magnéto-optique des ferrofluides</b>	<b>178</b>
2.1	Propriétés physiques . . . . .	178
2.2	Propriétés optiques . . . . .	180
2.2.1	Diffusion simple . . . . .	180
2.2.2	Propriétés de transport . . . . .	181
2.3	Propriétés magnéto-optiques . . . . .	182
<b>3</b>	<b>Effet Hall Photonique dans les ferrofluides</b>	<b>185</b>
3.1	Modèle pour l'EHP dans des gels de ferrofluides . . . . .	185
3.2	Dépendance en fonction du champ et de la concentration . . . . .	189
3.3	Polarisation de l'Effet Hall Photonique . . . . .	192
3.3.1	Modèle pour la polarisation . . . . .	192
3.3.2	Discussion des résultats expérimentaux . . . . .	194
3.4	Aspects dynamiques de l'EHP . . . . .	197

Première partie

**Diffusion simple par des diffuseurs  
anisotropes**

# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Diffusion de la lumière

Les situations où la lumière se propage à travers des milieux opaques ou diffus font partie de notre quotidien. Comme exemples, on peut citer la propagation de la lumière à travers le brouillard, les nuages, les liquides diffus comme le lait, les peintures, le papier.. mais aussi la propagation des ondes électromagnétiques à travers les atmosphères stellaires ou les nuages interstellaires. Enfin le transport diffus de la lumière à travers les tissus biologiques est un domaine en pleine expansion qui offre des perspectives comme une technique non-invasive de dépistages de certains cancers (voir par exemple la contribution de J. Virmont and G. Ledanois dans la Ref. [Gro98]). L'étude des propriétés de transport pour la lumière a certainement été initiée par les astrophysiciens, comme Chandrasekhar à qui l'on doit le premier ouvrage de référence sur le sujet [Cha60]. Cet ouvrage introduit un outil précieux pour la diffusion multiple: l'équation du transfert radiatif, qui est une approche de type Boltzmann pour la lumière. Par la suite, de nombreux ouvrages portant sur la diffusion multiple sont apparus comme ceux de Van De Hulst [dH80b] et d'Ishimaru [Ish78]. Il est important de noter que l'équation du transfert radiatif ne prend pas en compte la phase du champ, que l'on a longtemps considérée comme négligeable dans l'étude de la diffusion multiple, celle-ci étant "probablement détruite au cours des nombreuses diffusions". La découverte de la rétrodiffusion cohérente a changé cela, car il s'agit d'un effet d'interférences en diffusion multiple, que l'on ne peut expliquer sans prendre en compte explicitement la phase du champ.

D'autre part, la théorie classique du transport, considère en général l'amplitude et l'intensité moyenne du champ à l'exclusion des autres moments de la distribution du champ électromagnétique. Dans certaines expériences, les autres moments interviennent aussi, par exemple lorsqu'on étudie les fonctions de corrélations de l'intensité pour les tavelures (speckle) [BF94], ou les fluctuations universelles de conductance (UCF), bien connues pour les électrons et récemment mises en évidence expérimentalement pour la lumière [SM98]. En général la description fondée sur les deux premiers

moments suffit tant que l'on ne s'intéresse pas aux fluctuations de l'intensité (que ce soient les fluctuations de l'intensité angulaires, spatiales, fréquentielles ou liées à un paramètre extérieur comme un champ magnétique).

C'est l'objet de la physique ondulatoire de la matière condensée de décrire les propriétés de la phase associée à une grandeur physique (amplitude de probabilité pour l'équation de Schrödinger, pression pour l'acoustique, champ électromagnétique pour l'optique). Tout particulièrement intéressant pour le physicien sont les effets d'interférence liés à cette phase. Ces effets apparaissent dans le régime *mésoscopique*. Celui-ci est défini comme le domaine où la taille du système étudié  $L$  est suffisamment grande devant le libre parcours moyen  $\ell$  mais petite par rapport à une longueur caractéristique sur laquelle la notion de phase disparaît, la longueur de décohérence pour les électrons  $L_{dec}$  ou la longueur d'absorption pour la lumière  $\ell_{abs}$ . En outre, on se place dans le cas où le libre parcours moyen est beaucoup plus grand que la longueur d'onde  $\lambda$ , de sorte que les effets de localisation peuvent être négligés. Ce régime *mésoscopique* en diffusion multiple correspond donc à

$$\lambda \ll \ell \ll L \ll L_{abs}, L_{dec}. \quad (1.1)$$

Notons que pour les électrons, cette longueur de décohérence est liée aux interactions entre électrons et aux processus inélastiques qui détruisent la phase, qui sont absents pour les photons. Au contraire, l'absorption présente pour les photons est absente pour les électrons. Ainsi l'observation des propriétés de cohérence des fonctions d'onde électroniques nécessite le plus souvent de travailler à basse température alors qu'en optique on sait rendre la longueur d'absorption suffisamment grande même à température ambiante en choisissant un matériau approprié. Pour les électrons, une mesure de la conductance ou transmittance totale est relativement simple à réaliser alors qu'en optique cette mesure est plus délicate (comme par exemple celle du libre parcours moyen qui est directement relié à la transmission). Au contraire, en optique on sait facilement distinguer la contribution du faisceau cohérent (ce qui correspond aux électrons balistiques) de celle du faisceau incohérent (électrons diffusés). L'étude des phénomènes ondulatoires en optique couvre par conséquent un domaine bien distinct de celui couvert par l'étude des processus électroniques.

A des échelles grandes devant le libre parcours moyen, une description *macroscopique* est plus appropriée. L'intensité moyenne satisfait à une équation de diffusion, et le coefficient de diffusion  $D_0$  qui intervient doit être calculé à des échelles *mésoscopiques*. L'échelle *mésoscopique* est celle du libre parcours moyen et de l'équation du transfert radiatif. A cette échelle, le libre parcours moyen, la vitesse de transport  $v_E$  présents dans la définition du coefficient de diffusion  $D_0 = v_E \ell^*/3$  doivent être calculés à l'échelle *microscopique*. A l'échelle *microscopique*, les équations de Maxwell ou de Schrödinger doivent être employées, ce qui permet de prendre en compte les effets d'interférences entre ondes diffusées.



## 1.2 Ondes classiques et ondes de matière

Dans cette section nous présentons les analogies profondes qui existent entre les équations d'onde pour des électrons et celles qui décrivent la lumière. Une revue de Legendijk *et al.* aborde ce sujet en détails [LT96]. Ces analogies mises au jour par l'oeuvre de De Broglie ont été au coeur du développement de la mécanique quantique. Aujourd'hui encore, des expériences en optique tendent à mettre en évidence des effets bien connus pour le transport des électrons, que sont la localisation faible ou la localisation d'Anderson [And58],[She90]. L'analogie développée ci-dessous entre le formalisme de l'équation de Schrödinger et les équations de Maxwell est très riche et permet de résoudre des problèmes complexes en optique en utilisant des méthodes éprouvées en mécanique quantique comme par exemple la théorie des perturbations [CTDL77], la théorie des champs, les problèmes à N corps [Mah90].

L'équation de Schrödinger pour une particule de masse  $m_e$  s'écrit

$$i\hbar\partial_t\Psi = H\psi. \quad (1.2)$$

L'évolution de la fonction d'onde  $\psi(\mathbf{r}, t)$  est décrite au moyen du Hamiltonien

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2m_e} + V(\mathbf{r}),$$

pour une particule d'impulsion  $\mathbf{p}$  dans un potentiel  $V(\mathbf{r})$ . On utilise pour simplifier les notations un système d'unités dans lequel  $\hbar = 2m_e = 1$ . Dans l'expression du Hamiltonien,  $\mathbf{p}$  désigne l'opérateur  $\mathbf{p} = -i\nabla$ . Pour un problème indépendant du temps, cette équation de Schrödinger prend la forme d'une équation aux valeurs propres pour l'énergie  $E$

$$\{\mathbf{p}^2 + V(\mathbf{r}) - E\}\psi_E(\mathbf{r}) = 0. \quad (1.3)$$

La propagation de la lumière est décrite par les équations de Maxwell. Pour un milieu éventuellement dispersif de constante diélectrique  $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$  non-conducteur (dépourvu de charges et de courants) et de perméabilité  $\mu = 1$ , celles-ci peuvent s'écrire

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{E} = 0 & \nabla \times \mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{B} \\ \nabla \cdot \mathbf{D} = 0 & \nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \partial_t \mathbf{D}. \end{cases} \quad (1.4)$$

Par élimination du champ  $\mathbf{B}$ , on obtient l'équation d'Helmholtz contenant uniquement le champ électrique  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$

$$\frac{-\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)\omega^2}{c_0^2}\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)) = 0. \quad (1.5)$$

En termes d'opérateurs le double rotationnel peut s'exprimer à l'aide du projecteur sur l'espace trans-

verse à  $\mathbf{p}$ . Ce projecteur est

$$(\Delta_{\mathbf{p}})_{ij} = \delta_{ij} - \hat{p}_i \hat{p}_j, \quad (1.6)$$

où l'on note par convention avec un chapeau les vecteurs normés. On peut alors récrire l'Eq. (1.5) sous la forme

$$\left\{ \mathbf{p}^2 \Delta_{\mathbf{p}} + \left(\frac{\omega}{c_0}\right)^2 [1 - \varepsilon(\mathbf{r}, \omega)] - \left(\frac{\omega}{c_0}\right)^2 \right\} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = 0. \quad (1.7)$$

L'Eq. (1.7) apparaît alors comme l'analogie de l'équation de Schrödinger (1.3). Dans cette analogie, l'énergie associée à la lumière vaut  $E_{lumiere} = (\omega/c_0)^2$ , et le potentiel "lumineux" vaut

$$V_{lumiere} = (1 - \varepsilon(\mathbf{r}, \omega)) E_{lumiere}. \quad (1.8)$$

Une différence essentielle entre la lumière et les électrons apparaît ici dans la dépendance du potentiel en fonction de l'énergie. Mais si l'on fixe l'énergie à une valeur constante et positive strictement, les deux équations sont analogues. Il faut imposer que cette constante soit positive (par construction on a toujours  $E_{lumiere} > 0$ ), ce qui implique que la notion d'état lié disparaît dans le formalisme développé pour la lumière. Imposer que l'énergie reste constante revient à dire que le comportement des ondes de matière (électrons) et des ondes classiques (photons) sont similaires pour des expériences stationnaires, qui contrairement aux expériences dynamiques ne font pas intervenir plusieurs niveaux d'énergie.

Un exemple de quantité accessible à une expérience en régime stationnaire est la transmittance totale ou le libre parcours moyen de transport noté  $\ell^*$ , un exemple de quantité mesurable seulement par des expériences dynamiques, la constante de diffusion  $D_0 = \frac{1}{3} v_E \ell^*$ , qui décrit la propagation diffuse de l'énergie électromagnétique. En fait le caractère "dynamique" de  $D_0$  est lié à  $v_E$ , qui désigne la vitesse de transport de l'énergie. Des expériences résolues en temps dans le régime de diffusion multiple ont montré que la vitesse de transport  $v_E$  présente dans la constante de diffusion peut prendre des valeurs beaucoup plus faibles (en particulier au voisinage de résonances) que la vitesse de phase  $\omega/k$  [ATLT91]. Cette différence entre les deux vitesses a été mesurée et expliquée théoriquement. Elle trouve son origine dans la dépendance du potentiel en fonction de l'énergie qui affecte les propriétés dynamiques du transport de la lumière.

Cette dépendance du potentiel en fonction de l'énergie est une caractéristique profonde des ondes classiques, qui affecte leurs propriétés notablement à basse énergie. Ainsi l'approximation de Born pour la diffusion des électrons à basse énergie, correspond pour la lumière d'après l'Eq. (1.8) à la diffusion par un milieu d'indice voisin de 1 (à une fréquence pas nécessairement basse), ce qui est connu sous le nom d'approximation de Rayleigh-Gans [dH80a]. La théorie des perturbations (ou la règle d'or de Fermi) permet de relier la section efficace de diffusion  $\sigma_{scatt}$  au potentiel  $V_{lumiere}$  ce qui donne

$$\sigma_{scatt} \sim |V_{lumiere}|^2 \sim E_{lumiere}^2 \sim \omega^4.$$

On retrouve ici la fameuse dépendance de la section efficace en la fréquence prédite pour la première fois par Rayleigh au siècle dernier, et qui explique la couleur bleue du ciel (le bleu étant beaucoup plus diffusé que le rouge dans l'atmosphère). Au contraire, la limite basse fréquence pour la section efficace de diffusion d'un électron correspond à une constante. En prenant en compte explicitement la dépendance du potentiel en fonction de l'énergie, d'autres concepts fondamentaux peuvent être formulés pour les deux types d'ondes. Dans cet esprit, la relation de Friedel (qui décrit les effets d'écran dans les systèmes électroniques), la relation d'Einstein pour la conductivité, et le critère de Thouless pour la localisation ont pu être formulés pour la lumière [TK94].

Une seconde différence essentielle entre la lumière et les électrons concerne le caractère vectoriel de la lumière, c'est à dire la polarisation. Une théorie scalaire ne tient pas compte de la polarisation, ce qui revient à remplacer le champ électrique  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  par une variable scalaire  $\psi_E(\mathbf{r}, t)$ . Dans ce cadre là, et pour une situation stationnaire, les Eqs. (1.7) et (1.3) sont vraiment équivalentes. On a rassemblé dans le tableau 1.2, quelques unes des principales caractéristiques associées aux deux types d'ondes pour un problème stationnaire. Dans un modèle scalaire le double rotationnel de l'équation Eq. (1.5) devient l'opposé de l'opérateur laplacien, et  $\Delta_{ij}$  devient  $\delta_{ij}$  dans Eq. (1.6). Le terme négligé dans les équations de Maxwell correspond au logarithme de la dérivée par rapport à l'espace de la constante diélectrique. Ce terme est lié à la variation de la densité de charge au voisinage des bords du domaine considéré (polarisation des charges de surface).

	Ondes de De Broglie (électrons)	Ondes scalaires classiques (photons dans un modèle scalaire)
Observable	$ \psi(\mathbf{r}, t) ^2$ (densité de probabilité)	$\psi(\mathbf{r}, t)$ (champ électrique)
Équation du mouvement	$\{\mathbf{p}^2 + (V(\mathbf{r}) - E)\} \psi_E(\mathbf{r}) = 0$	$\{\mathbf{p}^2 + (V_E(\mathbf{r}) - E)\} \psi_E(\mathbf{r}) = 0$
Valeur propre	$E$ (énergie)	$E = (\omega/c_0)^2$
Potentiel	$V(\mathbf{r})$	$V_E(\mathbf{r}) = (1 - \varepsilon(\mathbf{r}))E$
Quantité conservée	$\int d\mathbf{r}  \psi ^2$	$\frac{1}{2} \int d\mathbf{r} [\varepsilon(\mathbf{r})  \partial_t \psi ^2 +  \partial_{\mathbf{r}} \psi ^2]$
Densité de Courant	$\Im m(\psi^* \partial_{\mathbf{r}} \psi)$	$-\Re e(\partial_t \psi^* \partial_{\mathbf{r}} \psi)$
Fonction de Green	$[z - p^2]^{-1}$	$[\varepsilon(\mathbf{r}) z^2 - p^2]^{-1}$

Tableau 1: Comparaison des équations décrivant les ondes de Schrödinger et les ondes scalaires classiques (tableau tiré de Van Tiggelen et Kogan (1994) [TK94]). Dans ce tableau, le milieu est considéré comme non dispersif et la dépendance de la constante diélectrique en fonction de la fréquence a été omise.

### 1.3 Plan de la thèse

Dans cette thèse, on s'intéresse à la façon dont une réponse optiquement anisotrope du milieu affecte la diffusion de la lumière. Les anisotropies magnétiques et chirales brisent des symétries fondamentales du milieu et pour cette raison, elles sont à l'origine d'effets nouveaux dans la diffusion de la lumière. Avant d'aborder la diffusion multiple dans ces milieux, il est indispensable de disposer d'une théorie complète de la diffusion simple, qui en est le maillon élémentaire. Le chapitre 2 de la première partie de cette thèse est consacré à la propagation de la lumière dans les milieux magnéto-optiques et chiraux homogènes non-diffusants. Une des questions principales de ce chapitre est la détermination de la direction de propagation de l'énergie dans les milieux optiquement anisotropes. A partir du chapitre 3, on s'intéresse aux milieux hétérogènes susceptibles de diffuser la lumière. Les fondements d'une description microscopique de la diffusion simple sont présentés au chapitre 3. Il apparaît que la notion de matrice  $T$  est la description théorique la mieux adaptée pour relier les symétries particulières des diffuseurs aux symétries du processus global de diffusion. C'est le cas en particulier pour la diffusion de Mie, qui désigne le régime "général" pour la diffusion de la lumière, c'est à dire la diffusion par une particule diélectrique sphérique de taille quelconque par rapport à la longueur d'onde. Au moyen d'un calcul de la matrice  $T$ , une théorie de la diffusion de Mie pour une particule sphérique magnéto-optique ou chirale est élaborée au chapitre 4. Cette théorie caractérise complètement la diffusion simple de la lumière en termes de son intensité et de sa polarisation dans les milieux composés de diffuseurs sphériques magnéto-optiques et chiraux de taille quelconque.

La diffusion multiple dans ces milieux fait l'objet de la deuxième partie de cette thèse, et utilise largement les résultats obtenus dans la première partie en diffusion simple. Le premier chapitre présente différentes notions concernant la théorie du transport dans les milieux désordonnés. Le second chapitre aborde l'*Effet Hall Photonique*, qui est l'analogue pour l'optique de l'Effet Hall classique bien connu dans les semi-conducteurs. En diffusion multiple, un champ magnétique est capable de produire un courant magnéto-transverse, qui est à l'origine de l'Effet Hall Photonique. Un modèle est proposé pour le libre parcours moyen magnéto-transverse, qui a pu être validé expérimentalement. Le chapitre 3 porte sur la rétrodiffusion cohérente sous champ magnétique, qui est une autre manifestation de la façon dont un champ magnétique est susceptible de détruire un effet d'interférences en diffusion multiple. Le chapitre 4 est consacré à une théorie du transport de l'énergie et à une analyse de la polarisation dans les milieux chiraux en diffusion multiple.

Enfin, la troisième partie de cette thèse, qui est plus expérimentale que les deux autres, est consacrée à l'Effet Hall Photonique dans les ferrofluides. Bien que le régime de diffusion multiple soit difficile à atteindre dans ces milieux, les caractéristiques très particulières des ferrofluides en font un candidat privilégié pour les expériences sur l'Effet Hall Photonique.

## Chapitre 2

# Propagation dans les milieux magnéto-optiques et chiraux

### 2.1 Introduction à la magnéto-optique

On appelle effet magnéto-optique une interaction de la lumière avec un matériau aimanté ou placé dans un champ magnétique. Cette interaction modifie l'état de polarisation de la lumière: en traversant le matériau, une lumière incidente polarisée linéairement devient elliptique. L'angle dont a tourné le grand axe de l'ellipse par rapport à la direction de la lumière incidente traduit la rotation Faraday produite par l'échantillon, le rapport du grand axe sur le petit axe l'ellipticité Faraday. La découverte de ces effets par Faraday en 1845 fut une étape importante dans le développement de la théorie électromagnétique de la lumière, car ces effets ont démontré le lien entre le magnétisme et l'optique. Ces expériences, bien que limitées à une catégorie particulière de matériaux, annoncent la voie de la future théorie électromagnétique de la lumière de Maxwell. Dans ce chapitre, nous présentons quelques éléments de la théorie classique de l'effet Faraday. Celle-ci permet d'expliquer non seulement les effets produits par un champ magnétique sur la polarisation, mais aussi des aspects beaucoup moins connus comme les effets produits sur la direction de propagation de la lumière.

#### 2.1.1 Théorie classique de l'effet Faraday

La théorie classique de l'effet Faraday est fondée sur l'interaction de la lumière traitée comme un champ électromagnétique classique avec un électron dont le mouvement est traité également classiquement. Le modèle considère un électron élastiquement lié au noyau, de masse  $m_e$ , à une position  $\mathbf{r}$  par rapport au centre de masse de l'atome. On traite le mouvement de l'électron comme celui d'un oscillateur de fréquence de résonance  $\omega_0$  en présence d'une force d'amortissement proportionnelle à  $\Gamma$ . La substance considérée est traversée par la lumière et est en outre soumise à un champ magnétique

externe  $\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$ . La force que subit l'électron contient deux termes: le premier dépend du champ électrique de l'onde lumineuse  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  au point  $\mathbf{r}$ . Le deuxième terme traduit la force de Lorentz que subit l'électron soumis au champ magnétique externe  $\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$  qui domine largement le champ magnétique de l'onde lumineuse. La loi fondamentale de la dynamique donne:

$$\frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} + \Gamma \frac{d\mathbf{r}}{dt} + \omega_0^2 \mathbf{r} = -\frac{e}{m_e} (\mathbf{E} + \frac{d\mathbf{r}}{dt} \times \mathbf{B}). \quad (2.1)$$

L'équation (2.1) est celle d'un oscillateur forcé entretenu par le champ électrique de l'atome. La solution générale de cette équation fait intervenir un régime transitoire et un régime permanent qui est le seul à demeurer à des temps au delà de  $1/\Gamma$ . Le vecteur polarisation du matériau  $\mathbf{P}$  est relié au nombre d'électrons par unité de volume  $n_e$  et au vecteur position  $\mathbf{r}$  par la relation  $\mathbf{P} = -n_e e \mathbf{r}$ . L'introduction des paramètres suivants simplifie l'étude:

$$\omega_c = \frac{eB}{m_e}, \quad \omega_p^2 = \frac{n_e e^2}{m_e \varepsilon_0}, \quad \chi_e = \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}, \quad \eta_e = \frac{\omega\omega_c}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}.$$

Le vecteur polarisation  $\mathbf{P}$  dépend linéairement du champ électrique  $\mathbf{E}$  par la relation

$$\mathbf{P} = \chi \varepsilon_0 \mathbf{E} = (\varepsilon - 1) \varepsilon_0 \mathbf{E}, \quad (2.2)$$

où  $\chi$  désigne le tenseur susceptibilité électrique et  $\varepsilon$  le tenseur permittivité relative. On en déduit le vecteur

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}.$$

L'Eq. (2.1) se résout alors sans difficulté et conduit à l'expression du tenseur  $\chi$

$$\chi = \begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 & \chi_{12} & 0 \\ \chi_{21} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} = \chi_{sym} + \chi_{anti}, \quad (2.3)$$

avec  $\chi_{anti}$  est un tenseur antisymétrique de rang deux qu'on peut exprimer au moyen d'un pseudo-vecteur

$$\chi_{anti} \mathbf{E} = -i\mathbf{g} \times \mathbf{E},$$

avec  $\mathbf{g} = g\mathbf{e}_z = \eta_e \chi_{11} \mathbf{e}_z$  appelé généralement vecteur activité optique.

### 2.1.2 Loi de Verdet pour les corps diamagnétiques

Ayant obtenu les équations décrivant la matière, il convient d'y ajouter celles décrivant la lumière, c'est à dire ici les équations de Maxwell, ce que l'on peut faire en utilisant directement l'équation

d'Helmholtz (1.5). L'équation obtenue montre que les seuls modes possibles pour le champ électrique sont des ondes circulaires droite ou gauche, associées respectivement aux indices associés  $n_-$  et  $n_+$  avec

$$n_{\pm}^2 = 1 + \chi_{11} \mp g.$$

Après la traversée du milieu les deux ondes circulaires se superposent pour donner une onde rectiligne dont le plan a tourné d'un angle  $\alpha$ . Cet angle est la demi-différence des déphasages occasionnés par la traversée du milieu de longueur  $L$ , soit

$$\alpha = \frac{\omega}{2c_0} \Re(n_+ - n_-)L.$$

Si l'on change le sens du champ magnétique par rapport au sens de propagation de la lumière, la rotation du plan change de sens. L'effet est donc doublé sur un aller retour de la lumière. Par exemple, en l'absence d'absorption on obtient

$$\alpha = V_0 BL, \tag{2.4}$$

où  $V_0$  est la constante de Verdet du matériau

$$V_0 = \frac{e\omega_p^2\omega^2}{2m_e c_0(\omega^2 - \omega_0^2)^2}. \tag{2.5}$$

La majorité des corps sont diamagnétiques et obéissent bien à la loi (2.5) avec  $V_0 > 0$ . En général  $\lambda \gg \lambda_0$  de sorte que  $V_0 \sim 1/\lambda^2$ . Au voisinage d'une bande d'absorption, la variation de la constante de Verdet est plus marquée que dans le cas de l'effet Zeeman à cause du carré au dénominateur. La formule dérivée plus haut ne s'applique pas aux corps paramagnétiques pour lesquels  $V_0$  n'est pas directement lié à l'effet Zeeman et pour lesquels  $V_0$  peut être négatif [Bru54].

## 2.2 Propagation dans un milieu magnéto-optique

Dans cette section, nous dérivons la relation de dispersion de la lumière dans un milieu magnéto-optique. Cette relation montre que l'action d'un champ magnétique ne se limite pas à modifier la polarisation comme dans l'effet Faraday, mais qu'il est également possible dans certaines conditions de défléchir la lumière par un champ magnétique. Nous nous intéressons ici au cas des milieux homogènes transparents, le cas des milieux hétérogènes diffusants sera traité à partir du chapitre 4.1. La possibilité de défléchir la lumière par un champ magnétique dans un milieu homogène a été évoquée pour la première fois par Landau, Lifshitz et Pitaevski [LLP67]. Les auteurs concluent leur analyse en montrant la faiblesse de l'effet considéré ce qui est probablement la raison pour laquelle ce problème n'a pas fait l'objet de vérification expérimentale jusqu'à très récemment [RT97].

Dans un milieu magnéto-optique, la présence d'un axe privilégié dans le système conduit à considé-

rer la constante diélectrique comme un tenseur de rang deux. De façon très générale, on peut démontrer la propriété suivante pour ce tenseur

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{B}, \mathbf{k}) = \varepsilon_{ji}(-\mathbf{B}, \mathbf{k}). \quad (2.6)$$

Cette relation est l'équivalent pour l'optique des relations de Onsager bien connues en thermodynamique. Comme dans le cas des relations de Onsager, l'Eq. (2.6) est une conséquence des propriétés de symétrie des coefficients cinétiques. Lorsque le milieu est non-absorbant, le tenseur  $\varepsilon$  doit être hermitique, c'est à dire

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}^*. \quad (2.7)$$

Dans le domaine optique, un champ magnétique produit en général des effets assez faibles sur la constante diélectrique, et négligeables sur la perméabilité qui garde la valeur qu'elle prend dans le vide  $\mu = 1$ . Cela permet de considérer un développement de la constante diélectrique en puissances du champ magnétique. L'indice dont l'expression a été établi dans la section ci-dessus, conduit à la constante diélectrique suivante:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \mathbf{I} + \varepsilon_F \Phi. \quad (2.8)$$

Dans l'expression (2.8), on a introduit le tenseur antisymétrique

$$\Phi_{lj} = i\varepsilon_{ljk} \hat{B}_k, \quad (2.9)$$

où  $\varepsilon_{ljk}$  désigne le tenseur de Lévi-Civitta. La présence du facteur  $i$  imaginaire pur dans cette définition permet la propriété d'hermiticité de  $\Phi$ . Par ailleurs,  $\varepsilon_0 = n_0^2$  représente la constante diélectrique pour un indice  $n_0$  du matériau considéré et

$$\varepsilon_F = 2n_0 V_0 c_0 B / \omega \quad (2.10)$$

est un paramètre de couplage sans dimension qui caractérise l'amplitude de la rotation Faraday ( $V_0$  est la constante de Verdet,  $B$  l'amplitude du champ magnétique,  $c_0$  la vitesse de la lumière, et  $\omega$  la fréquence optique de la lumière). Si l'absorption est prise en compte, les paramètres  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_F$  sont complexes.  $\varepsilon_F$  vaut typiquement  $10^{-4}$ , de sorte que pour la plupart des effets qui nous intéressent un développement à l'ordre 1 en champ magnétique est suffisant. La dépendance en fonction de la fréquence des paramètres  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_F$  n'est pas considérée ici, ce qui permet d'utiliser la méthode présentée au chapitre 1.2 valable pour une situation stationnaire.

En reportant l'équation Eq. (2.8) dans l'équation d'Helmholtz (1.5), on obtient la relation de dispersion de la lumière dans un milieu magnéto-optique. Cela se traduit par



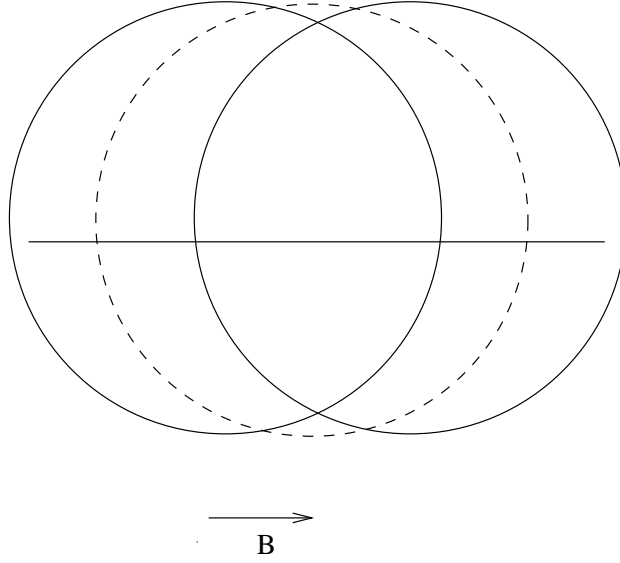


FIG. 2.1 - Représentation polaire de la relation de dispersion de la lumière dans un milieu magnéto-optique. Le cercle en pointillé correspond au cas isotrope en l'absence de champ magnétique. Les deux cercles en traits pleins correspondent aux deux solutions de Eq. (2.11) pour les deux valeurs possibles de l'hélicité.

$$\omega(k) = \frac{kc_0}{n_0} + \frac{\varepsilon_F c_0}{2n_0^3} \sigma(\hat{\mathbf{k}}) \hat{\mathbf{B}} \cdot \mathbf{k}, \quad (2.11)$$

où  $\sigma(\hat{\mathbf{k}})$  désigne l'hélicité de la lumière. Cette relation de dispersion est représentée à la figure Fig. (2.1). Elle est constituée de deux sphères correspondant aux deux valeurs possibles de l'hélicité  $\sigma(\hat{\mathbf{k}}) \in \{1, -1\}$ .

### 2.2.1 Lois de la réfraction

Dans cette section, nous présentons et détaillons l'analyse de Landau, Lifshitz et Pitaevski [LLP67] qui furent les premiers à traiter de la possibilité de défléchir la lumière par un champ magnétique avec comme corrolaire la modification des lois de Descartes dans un milieu magnéto-optique. La direction de propagation de la lumière dans un milieu magnéto-optique homogène peut s'obtenir simplement en calculant la vitesse de groupe qui correspond à la vitesse de propagation d'un paquet d'ondes de largeur en fréquence suffisamment étroite. La vitesse de groupe se déduit simplement de l'Eq. (2.11), ce qui donne

$$\mathbf{v}_g = \frac{d\omega}{d\mathbf{k}} = \frac{c_0}{n_0} \hat{\mathbf{k}} + \frac{\varepsilon_F c_0}{2n_0^3} \sigma(\hat{\mathbf{k}}) \hat{\mathbf{B}}. \quad (2.12)$$

Comme dans les milieux uniaxes, l'Eq. (2.12) montre que la direction de la vitesse de groupe n'est pas en général la même que celle du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  dans un milieu magnéto-optique. Dans notre

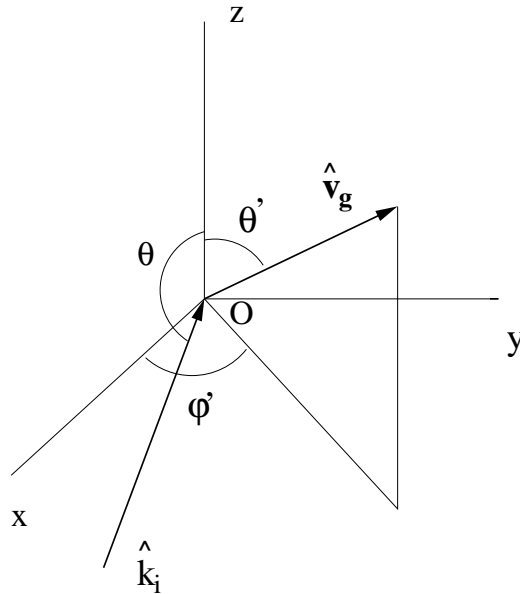


FIG. 2.2 - Schéma représentant le rayon incident dirigé suivant le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$  arrivant sur la surface d'équation  $z = 0$  et le rayon réfracté dirigé suivant la vitesse de groupe  $\mathbf{v}_g$ .

cas, la vitesse de groupe contient un terme proportionnel au champ magnétique, d'où l'idée qu'il doit être possible de défléchir la lumière par un champ magnétique. Dans les milieux absorbants, on peut montrer que la vitesse du paquet d'ondes correspond à la partie réelle de l'Eq. (2.12).

Considérons une surface  $z = 0$  séparant un milieu magnéto-optique  $z > 0$  du vide pour  $z < 0$ , comme cela est représenté à la figure 2.2. Un rayon arrive du vide sur cette surface avec un angle d'incidence  $\theta$  et selon un vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$ . On repère par  $\theta'$  l'angle du rayon réfracté par rapport à la normale et  $\varphi'$  l'angle azimuthal par rapport au plan d'incidence. Les directions des rayons incidents et réfractés sont alors données par les deux vecteurs normés suivants

$$\hat{\mathbf{k}}_i = (\sin \theta, 0, \cos \theta), \quad \hat{\mathbf{v}}_g = (\sin \theta' \cos \varphi', \sin \theta' \sin \varphi', \cos \theta').$$

Les relations de Descartes s'obtiennent en écrivant la continuité des composantes du vecteur d'onde perpendiculaires à la normale pour les rayons incidents et pour les rayons réfractés. Les composantes du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  dans le milieu magnéto-optique sont donc

$$k_x = \frac{\omega}{c_0} \sin \theta, \quad k_y = 0.$$

En général les rayons réfractés n'appartiennent pas au plan d'incidence  $xz$ , la première loi de Descartes est donc violée. La direction du rayon réfracté est donnée la vitesse de groupe dans le milieu magnéto-optique, c'est à dire par l'Eq. (2.12), soit

$$\begin{cases} \sin \theta' \cos \varphi' &= \frac{1}{n_0} \sin \theta + \frac{\varepsilon_F \sigma(\hat{\mathbf{k}})}{2n_0^2} \hat{B}_x \\ \sin \theta' \sin \varphi' &= \frac{\varepsilon_F \sigma(\hat{\mathbf{k}})}{2n_0^2} \hat{B}_y. \end{cases} \quad (2.13)$$

En l'absence de champ magnétique, ces équations redonnent les lois de Descartes, en présence de champ ces deux lois sont modifiées. Par exemple un rayon arrivant sur l'interface en incidence normale  $\theta = 0$  produit deux rayons réfractés faisant un angle

$$\theta'_c \simeq \sin \theta'_c \simeq \frac{\varepsilon_F \sigma(\hat{\mathbf{k}})}{2n_0^2} \hat{B}_x, \quad (2.14)$$

avec la normale.

La violation des lois de Descartes est très faible, cet angle vaut environ  $\theta'_c \simeq 10^{-7}$  rad dans les conditions expérimentales de la Ref. [RT97]. Son observation nécessite donc des champs intenses ou des échantillons possédant des effets magnéto-optiques très forts. D'autre part il est important de noter que bien que la formule (2.14) ne contienne pas  $\hat{B}_z$ , elle ne s'applique pas si  $\hat{B}_z = 0$ . En effet dans ce cas,  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{k}$  sont perpendiculaires (cette configuration porte le nom de configuration de Voigt), et le développement linéaire de la constante diélectrique de l'Eq. (2.8) ne suffit plus à rendre compte des effets magnéto-optiques. Dans la configuration de Voigt, les modes propres associés à la lumière sont des ondes linéairement polarisées qui contrairement aux modes circulairement polarisés discutés dans cette section ne subissent aucune déviation. En pratique cette condition n'est pas contraignante car pour être dans cette configuration,  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{k}$  doivent être perpendiculaires avec une précision inférieure à cet angle  $\theta'_c$ , précision qui n'a encore jamais pu être atteinte dans aucune expérience.

### 2.2.2 Vecteur de Poynting

S'il est bien admis que pour des milieux non-absorbants et non-magnétiques la vitesse de groupe est dirigée selon le vecteur de Poynting associé à la propagation de l'énergie  $\Pi(\mathbf{k}) = \Re e(\mathbf{E}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{k}))$ , la situation est plus délicate et même controversée lorsque le milieu est magnétique et absorbant [tHNP98]. Dans un contexte voisin mais différent des expériences ont été réalisées sur la déviation de la lumière par des vapeurs atomiques au voisinage d'une raie d'absorption [SW92], et dans les plasmas [AK73] dans un champ magnétique transverse par rapport à la direction de propagation. Dans cette section, nous présentons l'analyse et les résultats expérimentaux de Rikken et Van Tiggelen [RT97].

A partir des équations de Maxwell (1.4) et de la constante diélectrique (2.8), on obtient le vecteur de Poynting

$$\Pi(\mathbf{k}) = \Re e(n_0) \hat{\mathbf{k}} + \Re e \frac{\varepsilon_F n_0^*}{2n_0^2} \sigma(\hat{\mathbf{k}}) \hat{\mathbf{B}} + \Im m \frac{\varepsilon_F n_0^*}{2n_0^2} \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{B}}. \quad (2.15)$$

Si le milieu est non-absorbant ou en l'absence de champ magnétique, on voit que la partie réelle de

la vitesse de groupe (2.12) coïncide effectivement avec le vecteur de Poynting (2.15). Dans le cas contraire les deux diffèrent à cause du terme magnéto-transverse, le 3ème terme de Eq. (2.15). Les expériences ont consisté à mesurer la déviation de la lumière traversant un échantillon soumis à un champ magnétique transverse [RT97], ou plus précisément dans cette géométrie la différence entre les signaux correspondant à la lumière déviée pour deux états de polarisation de la lumière incidente. Ces expériences ont mis en évidence le 2ème terme de l'équation (2.15) mais pas le 3ème. Cela revient à dire que l'expression obtenue pour la vitesse de groupe est correcte mais pas le vecteur de Poynting. Or, il est bien connu que le courant associé au transport de l'énergie  $\mathbf{J}(\mathbf{k})$ , qui n'est pas nécessairement confondu avec le vecteur de Poynting  $\Pi(\mathbf{k})$ , est défini à un champ de rotationnel près [BW80]. En effet, on trouve dans la plupart des ouvrages d'optique de référence l'expression

$$\mathbf{J}(\mathbf{k}) = \Pi(\mathbf{k}) + \nabla \times \mathbf{T}, \quad (2.16)$$

où  $\mathbf{T}$  est un champ vectoriel quelconque. Dans le cas de l'expérience en question un choix approprié de  $\mathbf{T}$  permet de rendre compte de la différence entre la vitesse de groupe et le vecteur de Poynting. Cette expérience montre que la direction du vecteur de Poynting n'est pas nécessairement celle du courant associé au transport de l'énergie (qui est toujours donné par la vitesse de groupe) dans des milieux à la fois absorbants et magnétiques.

## 2.3 Introduction aux milieux chiraux

On appelle *chiral* tout objet non superposable à son image par un miroir. Le concept de chiralité a été étendu à de nombreux domaines depuis sa découverte au 19ème siècle par Arago, Biot, Fresnel et Pasteur. Ces chercheurs, d'abord intéressés par la possibilité de produire une rotation du plan de polarisation de la lumière ont découvert le phénomène d'*activité optique*, et ont permis la naissance d'une nouvelle science, la stéréo-chimie. La recherche des origines profondes de la chiralité est un sujet de recherche très actuel [HKL99]. Il s'agit par exemple de décrire les interactions moléculaires à longue portée en physique quantique responsables des propriétés chirales macroscopiques [IHL99]. Les applications de ces théories sont nombreuses dans la physique des cristaux liquides qui possède toute une zoologie de molécules chirales [GP93]. On cherche par exemple à rendre compte de la valeur prise par certains paramètres physiques observables comme le pas des cristaux liquides cholestériques, molécules chirales en forme d'hélice [HKL97]. La chiralité est présente dans l'immense majorité des molécules biologiques, la plupart des réactions biologiques étant stéréo-spécifiques, c'est pourquoi l'origine de l'apparition de la vie sous une forme chirale plutôt que non-chirale est un problème fondamental encore non résolu.

L'activité optique présente de nombreuses analogies avec la rotation Faraday (les deux effets sont liés à une différence d'indice pour deux états de la lumière polarisée circulairement), mais aussi des

différence cruciales. Par exemple, la rotation du plan de polarisation ne s'accumule pas sur un aller-retour de la lumière dans un milieu chiral contrairement à ce qui se produit dans un milieu possédant de l'effet Faraday. Plus fondamentalement, la rotation Faraday va de pair avec une brisure de la symétrie par renversement du temps dans un milieu diélectrique. Au contraire, l'activité optique correspond à une brisure de la symétrie de parité, produite par une réponse optique non-locale du milieu.

Ces questions de symétries en appellent naturellement une autre: La réponse optique d'un milieu peut-elle briser simultanément les symétries de parité et de renversement du temps? La réponse est affirmative sur le plan théorique et l'effet qui brise ces deux symétries a été baptisé magnéto-chiralité. Les premières études sur le sujet réalisées en 1962 sont dues à Groenewege. Une étude plus complète est ensuite entreprise par Baranova en 1979 [BZ79]. Les symétries et les règles de sélection pour la polarisation de cet effet sont prévues, et entrent dans le cadre plus général des règles de sélection associées aux milieux chiraux en présence de champs magnétiques ou électriques [RSS89]. La magnéto-chiralité correspond à un terme dans le développement de la constante diélectrique proportionnel au produit scalaire du vecteur d'onde par le champ magnétique, c'est donc un pseudo-scalaire (c'est à dire un scalaire qui change de signe dans l'opération de parité [HKL99]). L'effet est indépendant de la polarisation et a le signe opposé pour chacun des deux énantiomères. L'origine microscopique clarifiée sur la base d'une théorie moléculaire [BV84], il ne restait plus qu'à trouver un échantillon magnéto-chiral pour s'assurer de l'existence de cet effet. C'est chose faite depuis 1997, et comme on pouvait s'y attendre l'échantillon recherché appartient à une famille de matériaux à la fois chiraux et magnéto-optiques [RR97]. Comme ses cousins les effets chiraux et magnéto-optiques, la magnéto-chiralité a été observé expérimentalement en absorption et en émission (dichroïsme magnéto-chiral) ou en réfraction (biréfringence magnéto-chirale). La magnéto-chiralité est un candidat pour expliquer l'homochiralité de la vie, car elle permet des réactions photo-chimiques énantiosélectives avec de la lumière dépolarisée sous champ magnétique [RR98]. Cette hypothèse en est évidemment encore à un stade très spéculatif, du fait de notre méconnaissance des circonstances précises de l'apparition de la vie.

Dans ce chapitre nous présentons quelques caractéristiques générales de la diffusion de la lumière dans les milieux chiraux en insistant sur les différences avec les effets magnéto-optiques traités précédemment.

## 2.4 Propagation dans un milieu chiral

Une des formes possibles des relations constitutives pour la propagation de la lumière dans un milieu chiral est la suivante [LS95]:

$$\begin{cases} \mathbf{D} &= \varepsilon \mathbf{E} - ig\sqrt{\varepsilon\mu} \mathbf{B} \\ \mathbf{H} &= ig\sqrt{\varepsilon\mu} \mathbf{E} + \mathbf{B}/\mu, \end{cases} \quad (2.17)$$

où  $\varepsilon$ ,  $\mu$ ,  $g$  désignent respectivement la constante diélectrique (appelée aussi permittivité)  $\varepsilon$ , la perméabilité  $\mu$  et  $g$  un paramètre chiral. On pourrait imaginer un milieu (appelé bi-isotrope et non-réciproque) décrit par deux paramètres  $g$  différents dans les deux équations du système ci-dessus, soit un total de 4 paramètres. Il est en fait possible de montrer qu'une contrainte liée à la structure mathématique des équations de Maxwell impose qu'un tel milieu ne peut exister [Wei94]. En d'autres termes, un milieu chiral décrit par un unique paramètre scalaire  $g$ , obéit nécessairement aux équations (2.17). Il existe toutefois une catégorie de milieux pour lesquels  $g$  doit être remplacé par un tenseur, qu'on appelle généralement milieux gyrotropes, qui sont décrits par davantage de paramètres mais que nous ne considérerons pas ici [OR96]. Les effets magnéto-optiques décrits dans cette thèse correspondent uniquement à un terme de perturbation dans la constante diélectrique (la perméabilité  $\mu$  garde la valeur qu'elle prend dans le vide tant qu'on considère le domaine de l'optique [AGRS83]). Au contraire, l'activité optique nécessite de traiter sur le même plan une perturbation dans la constante diélectrique et dans la perméabilité. En général les trois paramètres  $\varepsilon$ ,  $\mu$ ,  $g$  dépendent du point  $\mathbf{r}$  considéré dans le milieu chiral. Dans cette section, nous considérons un milieu chiral *homogène* dans lequel ces paramètres ne dépendent ni du point  $\mathbf{r}$  dans le milieu, ni de la fréquence  $\omega$ .

Les valeurs possibles de  $g$  doivent obéir à l'inégalité  $-1 < g < 1$  du fait de la contrainte imposée par le caractère défini positif de l'énergie dans un milieu non-absorbant [LSPR95]. Pour alléger les notations, nous utilisons aussi le paramètre  $g'$  avec  $g' = \sqrt{\varepsilon\mu}g$ . La théorie classique développée pour l'effet Faraday au chapitre 2.1.1 s'applique pour l'activité optique, la différence essentielle est que le vecteur activité optique  $\mathbf{g}$  introduit précédemment est à présent dirigé selon le vecteur d'onde et non plus selon le champ magnétique. A partir de l'opérateur  $\mathbf{p} = -i\nabla$ , on construit le l'opérateur hermitique défini par

$$(\Phi_{\mathbf{p}})_{lj} = i\varepsilon_{ljk}\hat{p}_k, \quad (2.18)$$

qui est l'équivalent de l'opérateur  $\Phi$  introduit pour le champ magnétique (au remplacement de  $\mathbf{B}$  par  $\mathbf{p}$ ).  $\Phi_{\mathbf{p}}$  est l'opposé de l'opérateur rotationnel noté par certains auteurs  $\nabla \times$ . L'utilisation de la méthode développée au chapitre 1.2 conduit au potentiel suivant pour la propagation de la lumière valable à tout ordre dans le paramètre  $g$

$$\mathbf{V}(\mathbf{p}) = \frac{\omega(p)^2}{c_0^2} \left[ 1 - (1 - g^2) \varepsilon\mu \right] \mathbf{I} - \frac{2\omega(p)p}{c_0^2} g' \Phi_{\mathbf{p}}. \quad (2.19)$$

Comme pour les effets magnéto-optiques, dans la majorité des situations expérimentales,  $g \ll 1$  de sorte que l'activité optique peut être traitée avec une très bonne approximation comme une perturbation dans le paramètre  $g$ . Dans toute la suite, on se contentera d'utiliser une théorie des perturbations à l'ordre 1 en  $g$  en gardant à l'esprit que l'ordre 2 s'obtient simplement en renormalisant la constante diélectrique et la permittivité par le facteur  $1 - g^2$ .

La relation de dispersion de la lumière dans un milieu chiral s'obtient à partir de l'équation d'Helm-

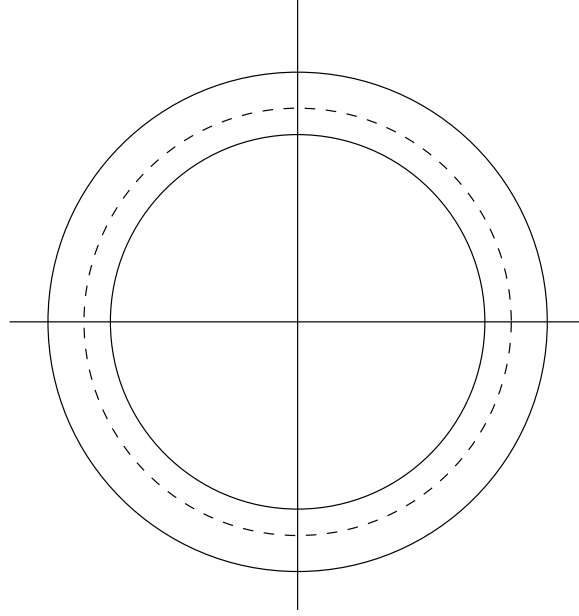


FIG. 2.3 - Représentation polaire de la relation de dispersion de la lumière dans un milieu chiral. Le cercle en pointillé correspond au cas d'un milieu isotrope non-chiral. Les deux cercles en traits pleins correspondent aux deux solutions de Eq. (2.20) pour les deux valeurs possibles de l'hélicité.

holtz (1.5), ce qui donne à l'ordre 1 en  $g$

$$\omega(p) = \frac{pc_0}{\sqrt{\mu\varepsilon}}(1 + g\sigma(\hat{\mathbf{p}})). \quad (2.20)$$

Ce résultat est à comparer à l'équation (2.11) obtenue pour l'effet Faraday. La représentation schématique de la figure (2.3) montre le caractère isotrope de la dispersion dans un milieu chiral. Contrairement au cas magnéto-optique, toute déflexion de la lumière est impossible car la vitesse de groupe est toujours dirigée selon le vecteur d'onde

$$\frac{d\omega}{d\mathbf{p}} = \frac{\hat{\mathbf{p}} c_0}{\sqrt{\mu\varepsilon}}(1 + g\sigma(\hat{\mathbf{p}})). \quad (2.21)$$

Seul le module de cette vitesse change car il est lié à l'indice qui peut prendre deux valeurs suivant l'état d'hélicité de la lumière. Le vecteur de Poynting  $\Pi(\mathbf{p}) = \Re(\mathbf{E}(\mathbf{p}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{p}))$  n'est pas modifié à l'ordre 1 en  $g$ , lorsqu'on prend en compte les relations constitutives (2.17) du milieu chiral, contrairement au courant associé au transport de l'énergie  $\mathbf{J}(\mathbf{p})$ . Comme dans les milieux magnéto-optiques, le vecteur de Poynting ne suffit plus à décrire la propagation de l'énergie, qui est toujours donnée par la vitesse de groupe. Le courant de densité d'énergie  $\mathbf{J}(\mathbf{p})$  contient en plus du vecteur de Poynting  $\Pi(\mathbf{p})$ , un terme

qui dépend du caractère dispersif du milieu et qui rend compte de cette différence (voir en particulier P513 de la Ref. [LLP67]).

En conclusion, on peut dire que dans un milieu homogène chiral, tout se passe comme si la propagation avait lieu dans deux milieux monoréfringents de permittivité et perméabilité

$$\begin{aligned}\varepsilon_{\pm} &= \varepsilon(1 \pm g) \\ \mu_{\pm} &= \mu(1 \pm g).\end{aligned}\tag{2.22}$$

Nous discutons plus loin ce qu'il advient lorsque le milieu n'est plus *homogène*, d'abord au niveau de la diffusion simple, puis de la diffusion multiple.



## Chapitre 3

# Approche microscopique de la diffusion simple

La diffusion de la lumière se traduit avantageusement en termes de diagrammes [Fri68]. Ces techniques se rangent en deux catégories. Soit les diffuseurs sont bien identifiés et on peut considérer la propagation dans le milieu comme une succession de diffusions sur des centres diffuseurs (c'est l'approche qui sera retenue dans la partie II pour la diffusion multiple), soit les diffuseurs ne sont pas identifiés (c'est le cas de façon systématique dans certaines disciplines comme la sismologie, mais aussi bien souvent en optique ou en acoustique) auquel cas on a recours à une approche de milieu continu. En principe la description de la propagation dans un tel milieu considéré comme une unité diffusante nécessite de connaître l'ensemble des fonctions de corrélation spatiales qui le caractérisent. On a recours en général à des approximations pour découpler ces corrélations. Dans un petit nombre de cas particuliers (diffusion de Mie pour la diffusion par une sphère diélectrique de taille quelconque par rapport à la longueur d'onde, ou dans d'autres géométries simples comme un cylindre par exemple), on est capable de représenter la diffusion par un objet global appelé matrice  $T$  qui contient toute l'information sur la diffusion (polarisation, section efficace). Dans ce chapitre nous présentons un modèle simplifié de diffuseur de type Rayleigh (diffuseur de petite taille par rapport à la longueur d'onde), le diffuseur ponctuel, qui intervient dans un grand nombre de modèles théoriques en diffusion multiple (la diffusion de Mie étant dans la majorité des cas très difficile voire impossible à prendre en compte de façon exacte en diffusion multiple).

### 3.1 Propagateurs

On définit la fonction de Green (appelée aussi propagateur) dans le vide comme la solution de l'équation d'onde en l'absence de tout objet diffusant pour un terme de source égal à une fonction de Dirac. Pour une équation d'onde scalaire, cela correspond à

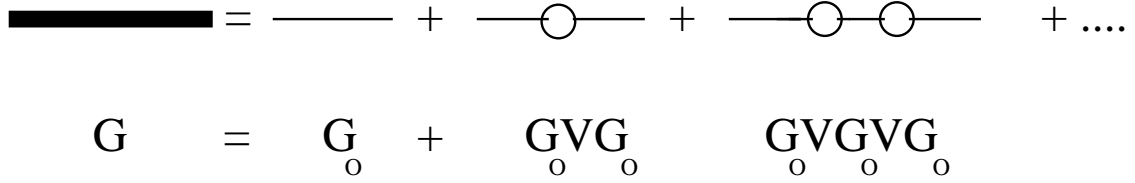


FIG. 3.1 - Représentation de la propagation en présence d'un diffuseur. La fonction de Green  $G$  contient un nombre arbitraire de diffusions sur le diffuseur.

$$\Delta G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \frac{\omega^2}{c_0^2} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (3.1)$$

où  $\omega$  désigne la fréquence de l'onde. On utilise dans toute la suite un système d'unités dans lequel  $c_0 = 1$ . Comme la situation en l'absence de diffuseurs est invariante par translation, en espace de Fourier cela donne simplement

$$G_0^\pm(\mathbf{p}) = [-\mathbf{p}^2 + \omega^2 \pm i\epsilon]^{-1}, \quad (3.2)$$

où le signe  $+$  correspond à une fonction de Green retardée, le signe  $-$  à une fonction de Green avancée. En espace réel (contenant 3 dimensions d'espace), on obtient après transformée de Fourier

$$G_0^\pm(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int \frac{d^3\mathbf{p}}{(2\pi)^3} \frac{e^{i\mathbf{p}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}')}}{-\mathbf{p}^2 + \omega^2 \pm i\epsilon} = -\frac{e^{\pm i\omega|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}, \quad (3.3)$$

qui est bien solution de l'Eq. (3.1). Lorsqu'on considère non plus une équation d'onde scalaire, mais une équation d'onde vectorielle comme par exemple l'Eq. (1.7), la fonction de Green est remplacée par le tenseur de Green

$$\mathbf{G}_0^\pm(\omega, \mathbf{p}) = [\omega^2 \mathbf{I} - \mathbf{p}^2 \Delta_{\mathbf{p}} \pm i\epsilon]^{-1}, \quad (3.4)$$

où  $\Delta_{\mathbf{p}}$  a été défini à l'Eq. (1.6). Ce tenseur de Green se décompose en une partie transverse et une partie longitudinale:

$$\mathbf{G}_0^\pm(\omega, \mathbf{p}) = \frac{\Delta_{\mathbf{p}}}{\omega^2 - \mathbf{p}^2 \pm i\epsilon} + \frac{1}{\omega^2} \hat{\mathbf{p}}\hat{\mathbf{p}},$$

Généralement la partie longitudinale peut être négligée car elle correspond à des modes qui ne se propagent pas. Cependant elle contribue au champ local, et elle joue aussi un rôle dans la polarisation en diffusion multiple [LT96].

Nous introduisons à présent un unique diffuseur. La propagation entre deux points dans le milieu peut s'effectuer après un nombre arbitraire de diffusions sur le diffuseur. Ceci est représenté à la figure Fig. (3.1). La somme de cette série est appelée le propagateur dans le milieu  $\mathbf{G}$ , qui dépend en principe de toutes les caractéristiques du milieu (en particulier de la présence de bords). En espace réel et pour

le cas scalaire, cette figure correspond à

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \int d\mathbf{r}_1 G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1) V(\mathbf{r}_1) G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}') + \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1) V(\mathbf{r}_1) G_0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) V(\mathbf{r}_2) G_0(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}') + \dots \quad (3.5)$$

Cette expression n'est pas en général d'un très grand secours si on ne fait pas des simplifications. Un cas intéressant complètement soluble est celui où l'on considère un diffuseur ponctuel et qui est détaillé à la section suivante.

## 3.2 Matrice $\mathbf{T}$

On appelle par définition matrice  $\mathbf{T}$ , la matrice qui relie linéairement le champ électromagnétique diffusé au champ électromagnétique incident, ce qu'on écrit en notation matricielle:

$$\mathbf{E}_{\text{diffuse}} = \mathbf{T} \cdot \mathbf{E}_{\text{incident}}$$

L'usage de la matrice  $\mathbf{T}$  repose donc sur l'hypothèse qu'une telle relation linéaire existe entre ces deux champs. La formulation au moyen de la matrice  $\mathbf{T}$  est capable de décrire non seulement la contribution cohérente mais aussi la contribution incohérente du champ électromagnétique. C'est pourquoi la matrice  $\mathbf{T}$ , qui contient toute l'information sur la diffusion simple, est aussi l'élément bloc de base pour la diffusion multiple. Les symétries du diffuseur ont des conséquences directes sur les symétries de la matrice  $\mathbf{T}$ . Cela fait tout l'intérêt de ce type d'approche pour décrire la diffusion de la lumière dans les milieux anisotropes.

La matrice  $\mathbf{T}$  peut se développer en série comme le propagateur  $\mathbf{G}$  dont elle est très proche. En effet, on a la relation suivante

$$\mathbf{T} = \mathbf{V} + \mathbf{V} \cdot \mathbf{G} \cdot \mathbf{V}. \quad (3.6)$$

La série générée s'appelle série de Born, et chaque terme représente un ordre de diffusion.

En général on représente plutôt la matrice  $\mathbf{T}$  en espace de quantité de mouvement, dans lequel on spécifie une direction incidente  $\mathbf{k}$ , et une direction émergente  $\mathbf{k}'$  pour l'onde diffusée, ce qu'on écrit en utilisant les notations de Dirac

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega) = \langle \mathbf{k} | \mathbf{T}(\omega) | \mathbf{k}' \rangle. \quad (3.7)$$

La théorie de la diffusion en mécanique quantique permet d'établir que la matrice  $\mathbf{T}$  en champ lointain est "on shell", c'est à dire qu'elle vérifie  $\omega^2 = \mathbf{k}^2$  et  $\omega'^2 = \mathbf{k}'^2$  [Sak89]. La matrice  $\mathbf{T}$  en champ lointain, ou la section efficace ne contiennent pas en général toute l'information sur la diffusion, en particulier

l'information sur le champ proche. Hors de ce cas là, il existe des extensions “off-shell” de la matrice  $T$  pour une sphère diélectrique de taille finie [PL96]. Ces extensions, qui contiennent beaucoup plus d'informations que la forme “on-shell” généralement utilisée, apparaissent notamment dans l'équation de Bethe-Salpether pour la propagation de l'énergie en diffusion multiple introduite dans la partie II. La forme “off-shell” de la matrice  $T$  doit être utilisée dès qu'interviennent des dérivées de la matrice  $T$  par rapport au vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , c'est notamment le cas lorsqu'on considère le coefficient de diffusion  $D$  ou le libre parcours moyen  $\ell$  en présence d'absorption [LL96]. D'autres extensions “off-shell” ont été développées dont l'intérêt apparaît également dans certaines expériences de diffusion multiple [PST97, PTS97].

### 3.2.1 Symétries de la matrice $T$

Les symétries vérifiées par la matrice  $T$  sont une conséquence des symétries du diffuseur considéré (rotation, symétries planes ou toute autre symétrie). La forme précise de cette matrice  $T$  est liée au choix d'une base appropriée pour la polarisation. La base “classique” pour la polarisation linéaire est celle définie par Van De Hulst comme la base constituée de deux vecteurs, dont l'un est contenu dans le *plan de diffusion* (qui est par définition le plan contenant  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{k}'$ ), et l'autre vecteur est perpendiculaire à ce plan [dH80a]. Les symétries de la matrice  $T$  ont été analysées rigoureusement très récemment en fonction des symétries du diffuseur au moyen de la théorie des groupes par Schulz *et al.* [SSS99]. Les auteurs montrent que le groupe de symétrie du diffuseur est directement relié au groupe des symétries de la matrice  $T$  et font une classification des groupes de la matrice  $T$ . Les propriétés du groupe associé au diffuseur sphérique par exemple, permettent de justifier la forme diagonale bien connue de la matrice  $T$  d'un diffuseur sphérique dans la base “classique” pour la polarisation. Ceci montre clairement l'avantage du formalisme de la matrice  $T$  par rapport à d'autres représentations pour caractériser les symétries du diffuseur: par exemple les symétries du diffuseur ne se traduisent pas en général par des propriétés particulières pour le champ électromagnétique diffusé comme c'est le cas pour la matrice  $T$ .

Une relation de *parité* est vérifiée par la matrice  $T$  lorsque le diffuseur possède la symétrie miroir. La *parité* est présente même si le diffuseur considéré est magnétique mais elle est absente lorsque le diffuseur est chiral. La matrice  $T$  d'un diffuseur chiral obéit à une relation de *parité* “brisée” qui est donnée dans la section 4.7 consacrée au diffuseur chiral. Pour un diffuseur non chiral, on trouve la relation de symétrie suivante pour la matrice  $T$ :

$$\text{Parité:} \quad T_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}). \quad (3.8)$$

Le sens de cette notation est par exemple pour le membre de gauche:

$$T_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}) = \langle \sigma(-\mathbf{k}), -\mathbf{k} | \mathbf{T}(\omega, \mathbf{B}) | \sigma(-\mathbf{k}'), -\mathbf{k}' \rangle .$$

Si le milieu est non absorbant, la matrice  $T$  obéit en outre au Théorème Optique qui traduit la conservation de l'énergie:

$$-\frac{\Im m(T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}\sigma})}{\omega} = \sum_{\sigma'} \int d\Omega_{\mathbf{k}'} \frac{|T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}|^2}{(4\pi)^2}. \quad (3.9)$$

Ce théorème d'une grande importance en optique relie les propriétés du faisceau cohérent contenues dans la matrice  $T$  vers l'avant à la section efficace totale de diffusion.

### 3.2.2 Principe de réciprocité

Lorsque la constante diélectrique et la perméabilité ont les symétries requises, la matrice  $T$  possède une propriété supplémentaire liée à l'échange entre la source et l'observateur appelée *réciprocité*. Le principe de *réciprocité* dont l'énoncé est donné ci-dessous est valable pour un nombre quelconque de diffuseurs et une distance arbitraire entre la source et l'observateur. C'est une propriété liée directement à la structure des équations de Maxwell et pas seulement au groupe de symétrie du diffuseur. L'étude de la *réciprocité* dans le contexte des ondes évanescentes par Carminati *et al.* a montré en détails l'applicabilité et la généralité de ce concept [CNVG98]. Les propriétés de *parité* et de *réciprocité* sont cruciales pour notre étude car elles persistent même en diffusion multiple et même en présence d'absorption [BPP97]. Les relations de *réciprocité* pour la matrice  $T$  peuvent être obtenues à partir de principes généraux comme le théorème de *réciprocité* de Lorentz (1896). Ce théorème de *réciprocité* de Lorentz repose directement sur les équations de Maxwell. Les hypothèses principales permettant l'application de ce théorème sont rappelées ici. On pourra en trouver une démonstration complète à la Ref. [LLP67].

Soient  $\mathbf{E}_1(\mathbf{r})$  et  $\mathbf{H}_1(\mathbf{r})$  les champs créés par des sources, associées à une densité de courant  $\mathbf{J}_1$ . Le milieu est diffusant et caractérisé par une constante diélectrique  $\varepsilon$  et une perméabilité  $\mu$ . Dans une deuxième situation avec le même milieu et à la même fréquence de l'onde électromagnétique, une autre source associée à une densité de courant  $\mathbf{J}_2$  crée les champs  $\mathbf{E}_2(\mathbf{r})$  et  $\mathbf{H}_2(\mathbf{r})$ . Après des manipulations des équations de Maxwell dans ces deux situations, on arrive facilement à

$$\nabla \cdot (\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_2 - \mathbf{E}_2 \times \mathbf{H}_1) = i\omega (\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{H}_2 - \mathbf{H}_1 \cdot \mathbf{B}_2 - \mathbf{D}_1 \cdot \mathbf{E}_2 + \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{D}_2) + \mathbf{J}_1 \cdot \mathbf{E}_2 - \mathbf{J}_2 \cdot \mathbf{E}_1. \quad (3.10)$$

Lorsque les tenseurs  $\varepsilon$  et  $\mu$  sont symétriques, le premier terme du membre de droite de cette équation disparaît car  $\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{H}_2 = \mu_{ik} H_{1k} H_{2i} = \mathbf{H}_1 \cdot \mathbf{B}_2$  et  $\mathbf{D}_1 \cdot \mathbf{E}_2 = \varepsilon_{ik} E_{1k} E_{2i} = \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{D}_2$ . Lors de l'intégration de l'Eq. (3.10) à tout l'espace, le membre de gauche de l'équation disparaît à cause du comportement des champs à grande distance (en  $1/r$ ). Il en résulte le théorème de Lorentz en présence de sources, qu'on peut écrire sous la forme:

$$\int \mathbf{J}_1(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_2(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r} = \int \mathbf{J}_2(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_1(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r}. \quad (3.11)$$

Ce principe se généralise sans difficulté au cas des milieux chiraux. En effet, on peut démontrer à partir des relations constitutives (2.17) des milieux chiraux, que le premier terme du membre de droite de l'Eq (3.10) s'annule comme dans les milieux isotropes (bien que cette fois  $\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{H}_2 \neq \mathbf{H}_1 \cdot \mathbf{B}_2$  et  $\mathbf{D}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \neq \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{D}_2$ ). Le principe de *réciprocité* est donc encore valable dans les milieux chiraux. Le principe de *réciprocité* s'applique même aux milieux absorbants, où la symétrie par renversement du temps est brisée. En effet on n'a pas eu besoin de supposer que les tenseurs  $\varepsilon$  et  $\mu$  soient hermitiques mais seulement symétriques. Dans les milieux magnétiques, la symétrie par renversement du temps ainsi que la *réciprocité* sont brisées car  $\varepsilon$  et  $\mu$  ne sont plus symétriques. Ces milieux sont décrits par des relations de symétrie généralisées comme l'Eq. (2.6), c'est pourquoi ils obéissent à un principe de *réciprocité* dans lequel le signe du champ magnétique est renversé dans l'un des champs. La modification de la *réciprocité* par l'application d'un champ magnétique a une conséquence tangible: la destruction de la rétrodiffusion cohérente par un champ magnétique, qui fait l'objet du chapitre 3 de la partie II. Finalement à partir du théorème de Lorentz (3.11) et en explicitant l'expression des champs en fonction de la matrice T, on peut en déduire la relation de *réciprocité* correspondante pour la matrice T valable pour tout type de particules chirales, magnétiques... (voir Ref. [CNVG98]):

$$\text{Réciprocité:} \quad T_{-\mathbf{k}'-\sigma', -\mathbf{k}-\sigma}(-\mathbf{B}) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}). \quad (3.12)$$

Cette relation a été vérifiée explicitement pour les cas particuliers des matrices T des diffuseurs de Mie magnéto-optique et chiral établies au chapitre suivant.

### 3.3 Diffuseur ponctuel

Le modèle du diffuseur ponctuel présenté ci-dessous brièvement décrit la diffusion par une particule de taille petite par rapport aux longueurs caractéristiques du problème (en particulier la longueur d'onde ou le libre parcours moyen) en utilisant une approximation scalaire pour décrire le champ électromagnétique. Ce modèle permet de construire une formulation de la théorie de la diffusion multiple dans le cas fréquent où on ne sait pas le faire pour des diffuseurs de taille finie où il faut traiter le caractère vectoriel de la lumière. Malgré sa simplicité, ce modèle est suffisamment riche pour décrire de nombreux effets connus en diffusion multiple: la diffusion résonante, les fluctuations universelles de conductance, et la rétrodiffusion cohérente. Nous suivons ici la procédure mis en évidence par Nieuwenhuizen *et al.*, qui fut l'un des premiers à utiliser ce modèle [NLT92].

Lorsque la longueur caractéristique de la fonction de corrélation de la constante diélectrique du milieu est plus petite que la longueur d'onde, on peut remplacer cette fonction de corrélation par une fonction delta:

$$\langle \varepsilon(\mathbf{r})\varepsilon(\mathbf{r}') \rangle = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}').$$

Cela revient à considérer que toutes les diffusions sont statistiquement indépendantes [MJ88]. Cette approximation est valable dès que le potentiel d'interaction est à courte portée. Lorsqu'on s'intéresse à un unique diffuseur ponctuel, on n'a pas besoin de faire d'hypothèses sur les propriétés statistiques du milieu. Il suffit de considérer que le potentiel du diffuseur ponctuel a la forme

$$V(\mathbf{r}) = V_0 u \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0), \quad (3.13)$$

où  $V_0$  est un paramètre caractérisant la force de la diffusion,  $\mathbf{r}_0$  la position du diffuseur et  $u$  est un volume dont la signification est précisée plus loin. Dans ce cas particulier, la matrice  $T$  est une série géométrique qui correspond à une somme de toutes les diffusions possibles sur le diffuseur

$$T = V + VG_0(0)V + \dots = \frac{V}{1 - VG_0(0)} \quad (3.14)$$

On doit faire face ici à une difficulté particulière liée au fait que la fonction de Green en espace réel  $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  défini à l'Eq. (3.3) diverge lorsque  $\mathbf{r} = \mathbf{r}'$ . En pratique, la divergence est supprimée en tenant compte de la taille finie du diffuseur. En fait, ce problème de divergence est très classique en théorie des champs, et on sait qu'on peut le résoudre en introduisant une limite pour les petites tailles  $1/\Gamma$ , qu'on interprète comme un paramètre interne du diffuseur. En l'occurrence,  $\Gamma$  s'interprète comme la largeur de résonance du diffuseur, ce qui fait le lien entre le modèle du diffuseur ponctuel et le modèle proche d'un atome à deux niveaux en physique atomique. D'autres procédures de régularisation sont possibles mais celles-ci changent peu le résultat final. Celui-ci est

$$t_0(\omega) = \frac{-4\pi\Gamma\omega^2}{\omega^2 - \omega_0^2 - (2/3)i\Gamma\omega^3/c_0}, \quad (3.15)$$

avec  $\omega_0^2 = 4\pi\Gamma c_0^2/\alpha$ . Dans ce modèle nous identifions les paramètres du diffuseur ponctuel avec des paramètres caractéristiques d'une sphère diélectrique:  $\alpha$  est la polarisabilité de cette sphère de rayon  $a$ , son volume est  $u = 4\pi a^3/3$  et

$$\alpha = 3 \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} u. \quad (3.16)$$

Cette polarisabilité contient en particulier le facteur de dépolérisation de la sphère, ou correction de champ local et qui intervient aussi dans la relation de Clausius-Mossoti. Le facteur  $\omega^3$  dans Eq. (3.15) traduit la perte d'énergie par rayonnement (terme d'Abraham-Lorenz) dans le modèle analogue de l'oscillateur harmonique amorti [Jac75]. Dans le modèle quantique correspondant, la valeur de  $\Gamma$  est fixée par le temps de vie de l'état excité  $i.e$  par l'émission spontanée. Le diffuseur ponctuel s'identifie

à ce qu'on appelle généralement en optique un diffuseur Rayleigh, c'est à dire un diffuseur de taille  $a$  petite par rapport à la longueur d'onde (à l'intérieur et à l'extérieur de la particule).

### 3.3.1 Diffuseur ponctuel sous champ magnétique

Un diffuseur ponctuel sous champ magnétique peut servir à décrire par exemple la rotation Faraday ou le dichroïsme magnétique circulaire (MCD) d'une suspension colloïdale de diffuseurs Rayleigh. Le MCD n'est rien d'autre que la différence d'absorption pour de la lumière incidente polarisée circulaire droite ou gauche. Il a été mesuré avec des diffuseurs possédant des effets magnéto-optiques faibles comme des précipités de NaCl ou CaF<sub>2</sub> par exemple [MO81]. Dans le cas du diffuseur ponctuel, qui est proche du modèle de l'atome à deux niveaux, la présence du champ magnétique se traduit en général par un déplacement de la fréquence  $\omega$  égal à la fréquence cyclotron  $\omega_c$  comme pour l'Effet Zeeman. Comme le MCD est un effet faible et que en général  $\omega \gg \omega_0 \gg \omega_c$ , on peut l'exprimer en fonction de la partie imaginaire de la polarisabilité  $\alpha$  introduite plus haut (et notée  $\alpha''$ ) sous la forme

$$\Delta\alpha'' = \alpha''^+ - \alpha''^- \simeq -\omega_c \frac{\partial\alpha''(\omega)}{\partial\omega}.$$

Lorsqu'on s'intéresse non pas seulement à la modification de la section efficace par un champ magnétique vers l'avant, mais à la modification dans une direction arbitraire de diffusion  $\theta$ , on a besoin de la section efficace en fonction de cet angle, et donc de la matrice T du diffuseur ponctuel sous champ magnétique. Celle-ci a été obtenue par Van Tiggelen *et al.* au moyen des techniques décrites dans cette section [TMN96]. La constante diélectrique du diffuseur a la forme donnée à l'Eq. (2.8). La matrice T du diffuseur ponctuel prend alors la forme  $t(\mathbf{B}, \omega) = t_0\mathbf{I} + t_1\Phi$ , où l'opérateur  $\Phi$  a été défini à l'Eq. (2.9). Les coefficients  $t_0$  et  $t_1$  sont donnés par les expressions suivantes

$$t_0 = -\frac{4\pi(\varepsilon_0 - 1)x^3}{\omega(\varepsilon_0 + 2)}, \quad t_1 = -\frac{12\pi\varepsilon_F x^3}{\omega(\varepsilon_0 + 2)^2}, \quad (3.17)$$

où  $x = \omega a$  est le paramètre de taille du diffuseur.

La section efficace de diffusion déduite de cette matrice T fournit le diagramme de rayonnement du diffuseur. Le diagramme de rayonnement d'un diffuseur Rayleigh en l'absence de champ magnétique est celui d'un dipôle de polarisabilité  $\alpha$ , il a la forme habituelle en  $\frac{1}{2}(1 + \cos\theta^2)$ . Le coefficient 1 dans cette expression est la contribution de la composante perpendiculaire au plan de diffusion du champ électrique de l'onde incidente, le terme en  $\cos\theta^2$  est la contribution de la composante dans le plan de diffusion du champ électrique de l'onde incidente. Un champ magnétique modifie ce diagramme de rayonnement. La forme de cette correction est discutée en détail à l'annexe A. Par exemple, dans le cas simple où le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan de diffusion, la composante perpendiculaire du champ électrique de l'onde incidente ne modifie pas le diagramme de rayonnement (les champs électriques et magnétiques sont parallèles dans ce cas). Au contraire, lorsque la lumière



incidente est polarisée dans le plan de diffusion, il y a une correction magnétique au diagramme de rayonnement (les champs électriques et magnétiques sont alors croisés). Ces deux cas correspondent pour l'Effet Zeeman en physique atomique, respectivement à une transition  $\pi$  sans changement de fréquence ou à une transition  $\sigma$  avec changement de fréquence. Cette dépendance du diagramme de rayonnement en fonction de la polarisation de la lumière incidente a pu être vérifiée expérimentalement dans les expériences sur les ferrofluides de la partie III.

### 3.4 Diffusion de Mie

Une classe importante de particules diélectriques est constituée par les particules dont la taille est comparable à la longueur d'onde. Ces particules diffusent beaucoup la lumière, mais de façon anisotrope c'est à dire préférentiellement vers l'avant (c'est le cas par exemple des gouttes d'eau contenues dans les nuages ou généralement des poussières dans les atmosphères polluées...). Le problème de la diffusion simple de la lumière par une sphère diélectrique ou métallique de taille quelconque par rapport à la longueur d'onde a été résolu par Mie en 1908 [Mie08]. La méthode consiste à résoudre exactement les équations de Maxwell dans un système de coordonnées sphériques avec les conditions aux limites appropriées. Avec 20 ans d'avance sur la théorie quantique de la diffusion, Mie utilise une analyse du comportement asymptotique pour le champ électromagnétique qui prend en compte exactement le caractère vectoriel de la lumière. Peu d'articles ont eu un impact aussi considérable sur la théorie de la diffusion. Depuis 1908, de nombreux ouvrages de référence traitent le sujet de façon détaillée [dH80a, Ker69]. En regardant de plus près, on sera étonné de constater que ces formulations de la solution de Mie sont restées étonnamment proches de celle de l'article original. Pourtant, une reformulation de cette théorie dans un langage plus moderne est nécessaire. De nos jours, on sait exprimer la solution de Mie au moyen d'une représentation de Hertz-Debye du champ électromagnétique [Gra95], ou bien au moyen d'un développement en harmoniques sphériques vectorielles [New82]. Récemment, la méthode utilisant des harmoniques sphériques vectorielles a été étendue de façon à traiter la diffusion par un petit nombre de sphères occupant des positions arbitraires, le champ global résultant de la superposition des champs diffusés par chaque sphère et des formules de transformation des harmoniques sphériques vectorielles dans les opérations de translation et rotation [Mac91]. Dans la suite, nous privilégions la représentation des harmoniques sphériques vectorielles, d'un usage courant en physique quantique, mais plus rarement employée en optique classique.

Comme c'est l'un des rares problèmes d'électromagnétisme dont on ait la solution exacte, la solution de Mie a été appliquée dans un grand nombre de contextes différents. Citons par exemple la météorologie, l'astrophysique, le Lidar (qui permet notamment d'analyser la pollution atmosphérique au moyen d'un laser sur le principe du radar), la chimie des colloïdes des aérosols...L'approche de Mie a été transposée notamment à l'acoustique et à la sismologie [YT56, EWT60]. En optique, de nombreuses généralisations sont apparues visant à prendre en compte la diversité des particules observées,

qui ne sont pas toutes de simples sphères diélectriques. Elles permettent de traiter par exemple des particules sphériques constituées d'un empilement de couches de différents indices gardant la symétrie sphérique [RD73], des particules sphéroïdales (*i.e* des ellipsoïdes) [AY75, VF93] ou des particules dont la forme est proche de la sphère, pour lesquelles un traitement en perturbation par rapport à la forme sphérique est possible [Mar93].

D'autre part, la formulation originale de la théorie de Mie est limitée aux milieux diélectriques dépourvus de charges. Cela exclut du coup l'étude de milieux comme des semi-conducteurs, conducteurs ioniques, colloïdes chargés ou électrolytes. Pourtant l'effet d'une longueur d'écran finie pour la densité de charges dans la sphère est susceptible de modifier l'absorption et la diffusion des ondes électromagnétiques. Cela a été étudié récemment théoriquement à basse fréquence dans des géométries simples (comme la géométrie sphérique) par R. Balian [BN98]. Une autre limitation importante de la théorie classique de Mie concerne l'hypothèse qui est faite généralement sur le caractère non-absorbant du milieu extérieur dans lequel est contenu la sphère. Les travaux de G. Fardella ont porté justement sur des généralisations de la théorie de Mie pour prendre en compte l'absorption dans le milieu extérieur (voir [Far95] et aussi la section 2.7 de la partie II sur le rôle joué par l'absorption).

### 3.4.1 Libres parcours moyens

Nous citons ci-dessous quelques résultats tirés de la théorie de Mie en utilisant les notations de Van De Hulst [dH80a]. Nous avons noté à la section 3.2.1, le caractère diagonal de la matrice  $T$  d'un diffuseur de Mie dans la base "classique" pour la polarisation. Dans cette base, la solution de Mie est donnée en fonction des amplitudes  $S_1$  et  $S_2$  du champ électromagnétique correspondant respectivement à un mode du champ électrique perpendiculaire au plan de diffusion et dans le *plan de diffusion*. Cette solution dépend de deux paramètres adimensionnés, le paramètre de taille  $x = \omega a$ , et l'indice relatif  $m$  de la sphère diélectrique par rapport à celui du milieu extérieur. Dans la direction avant  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  et vers l'arrière  $\mathbf{k} = -\mathbf{k}'$ , le *plan de diffusion* n'est pas défini. Vers l'avant, la différence entre les deux états de polarisation disparaît  $S_1(\theta = 0) = S_2(\theta = 0) = S(0)$ , et vers l'arrière  $S_1(\theta = \pi) = -S_2(\theta = \pi)$ . Les sections efficaces de diffusion, et d'extinction (divisées par la valeur de la section efficace géométrique  $\pi a^2$ ) sont respectivement données par

$$Q_{scatt} = \frac{\sigma_{scatt}}{\pi a^2} = \frac{1}{x^2} \int_{-1}^1 (|S_1|^2 + |S_2|^2) d\mu,$$

$$Q_{ext} = \frac{\sigma_{ext}}{\pi a^2} = \frac{4}{x^2} \Re(S(0)),$$

où  $\mu = \cos \theta$ . A partir du paramètre d'asymétrie  $\langle \cos \theta \rangle$  défini par

$$\langle \cos \theta \rangle = \frac{1}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 (|S_1|^2 + |S_2|^2) \mu d\mu, \quad (3.18)$$

on définit de la même façon les sections efficaces d'absorption et de pression de radiation

$$\begin{aligned} Q_{abs} &= Q_{ext} - Q_{scatt}, \\ Q_{pr} &= Q_{scatt} - \langle \cos \theta \rangle Q_{scatt}. \end{aligned}$$

En l'absence d'absorption, le théorème optique (3.9) implique  $Q_{abs} = 0$ . La section efficace de pression de radiation représente l'impulsion qui est ôtée du faisceau incident et qui n'est pas remplacée par la diffusion vers l'avant, cette impulsion est transmise aux particules sous forme de pression de radiation. D'après la définition de  $\mu$ , on a  $-1 \leq \mu \leq 1$ . Par conséquent, pour toute valeur du paramètre de taille et de l'indice de la sphère, on a  $Q_{pr} \geq 0$ , ce qui signifie que la force de pression de radiation est toujours dirigée dans la direction de la lumière incidente. Les sections efficaces  $Q_{scatt}$  et  $Q_{pr}$  sont représentées à la figure 3.2 en fonction du paramètre de taille  $x$  pour un indice relatif  $m = 2.73$  correspondant à des particules de  $\text{TiO}_2$  dans le vide.

A partir des sections efficaces  $Q_{scatt}$ ,  $Q_{pr}$  et  $Q_{abs}$ , on définit respectivement trois longueurs caractéristiques pour la propagation de la lumière dans un milieu désordonné: le libre parcours moyen de diffusion  $\ell$ , le libre parcours moyen de transport  $\ell^*$  et la longueur d'absorption  $\ell_{abs}$

$$\ell = \frac{1}{n\pi a^2 Q_{scatt}}, \quad \ell^* = \frac{1}{n\pi a^2 Q_{pr}}, \quad \ell_{abs} = \frac{1}{n\pi a^2 Q_{abs}}, \quad (3.19)$$

où  $n$  représente la densité de diffuseurs;  $\ell$  la distance caractéristique entre deux diffusions, et  $\ell^*$  la distance au bout de laquelle un photon a perdu la mémoire de sa direction initiale (définie par l'impulsion du faisceau incident). Contrairement aux définitions précédentes qui sont générales, la dépendance en  $1/n$  des libres parcours moyens et de la longueur d'absorption ne s'applique qu'aux milieux suffisamment dilués.

Les libres parcours moyens  $\ell$  et  $\ell^*$  sont égaux lorsque la diffusion possède la symétrie avant/arrière (ce qui est le cas de la diffusion Rayleigh correspondant à  $x \ll 1$ ) et diffèrent dans le cas contraire. En effet, lorsque la diffusion possède cette symétrie, la fonction  $(|S_1|^2 + |S_2|^2)$  est une fonction paire de  $\mu$ , ce qui implique d'après l'équation (3.18),  $\langle \cos \theta \rangle = 0$ . Cette symétrie est brisée dès qu'on considère la diffusion par plus d'un diffuseur Rayleigh, ou la diffusion par un diffuseur de taille finie.

On verra dans la partie II, que le libre parcours moyen de diffusion  $\ell$  est la longueur caractéristique pour la transmission du faisceau cohérent,  $\ell_{abs}$  la longueur caractéristique d'absorption du faisceau cohérent et le libre parcours moyen de transport  $\ell^*$  la longueur caractéristique essentielle pour le transport de l'intensité en diffusion multiple.

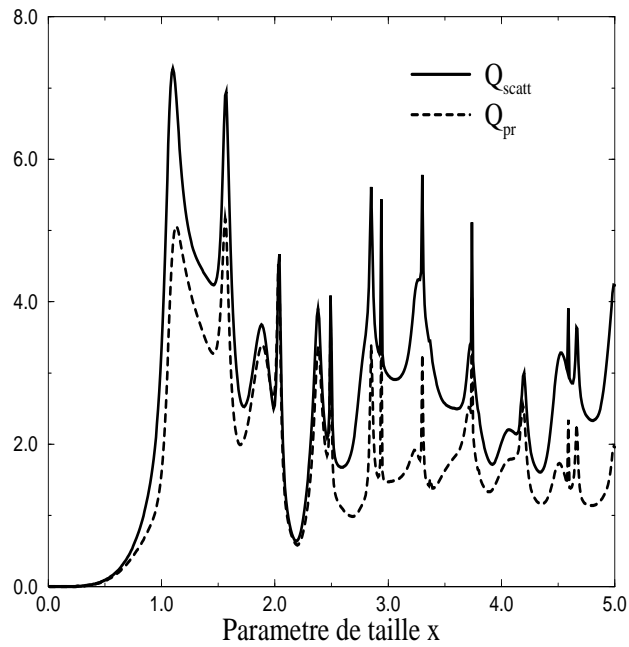


FIG. 3.2 - Sections efficaces de diffusion  $Q_{scatt}$  (ligne continue) et section efficace de pression de radiation  $Q_{pr}$  (ligne pointillée) normalisées par la section efficace géométrique  $\pi a^2$  en fonction du paramètre de taille  $x$  pour une sphère de Mie d'indice relatif  $m = 2.73$  correspondant à des particules de  $TiO_2$  dans le vide.

## Chapitre 4

# Diffusion de Mie dans des milieux magnéto-optiques et chiraux

### 4.1 Introduction

La diffusion par des diffuseurs de Mie magnéto-optiques ou chiraux est un problème intéressant car la présence d'un champ magnétique (ou de l'activité optique) dans le diffuseur brise le principe de réciprocité (ou la symétrie de parité) dans la solution de Mie classique. Pour un diffuseur optiquement anisotrope, les équations de Maxwell ne sont plus nécessairement séparables dans le système de coordonnées sphériques comme dans le cas classique. De plus il s'agit d'un authentique problème vectoriel qui nécessite non seulement de prendre en compte le caractère tensoriel de l'indice, des fonctions de Green, et de la matrice  $T$ . Une approche de type perturbatif a été utilisée dans ce contexte pour la première fois par Kuzmin, qui a montré que le problème de la diffusion par une particule sphérique anisotrope était soluble exactement dans une limite de faible anisotropie [KB81]. Au prix d'un calcul extrêmement long et technique, Kuzmin donne la solution générale pour le champ électromagnétique diffusé pour n'importe quelle forme d'anisotropie considérée. Cette solution est très complexe, mais en principe simple à implémenter, car elle utilise les mêmes coefficients et les mêmes fonctions de Bessel que la solution classique. Par la suite, Kuzmin montre comment sa méthode peut être appliquée plus spécifiquement au calcul de la transmission [Kuz81] et des paramètres de Stokes pour la diffusion dans le domaine optique par des particules cristallines dans l'approximation de faible anisotropie [KB82]. De façon indépendante, le problème de la diffusion par une sphère gyrotrope est résolu par Ford et Werner [FW78] par une méthode non-perturbative. Les milieux optiquement actifs et magnéto-optiques sont des milieux gyrotropes, c'est pourquoi Dixon et Furdyna appliquent peu après la solution de Ford et Werner à la diffusion dans le régime micro-ondes par des sphères de semi-conducteurs sous champ magnétique [DF78]. Dans le cas particulier de la diffusion Rayleigh, la solution de Ford et Werner prend une forme simple (voir Eq. (4.37) P6767 de la Réf. [FW78]). Lorsqu'on considère la limite cor-

respondant à des effets magnéto-optiques faibles, on retrouve l'expression que nous avons donnée pour la matrice  $T$  du diffuseur ponctuel sous champ magnétique dans la section 3.3.1.

Malheureusement, hors de ce cas particulier, la méthode de Ford et Werner ne fournit pas de solution analytique simple comme pour la solution de Mie classique. Leur méthode revient finalement à résoudre un système d'équations de dimension infinie qui doit être tronqué pour pouvoir être évalué numériquement. En ce qui concerne la résolution purement numérique du problème, d'autres techniques beaucoup plus récentes et aussi plus générales, sont à présent disponibles. Par exemple, des simulations de la diffusion par des diffuseurs anisotropes à trois dimensions, ont été réalisées par N. Piller dans des géométries simples (ellipse, cylindre, sphère..) [PM98]. La technique utilisée consiste à décomposer le diffuseur en domaines, dans lesquels le champ électromagnétique est homogène. Ce champ est représenté alors au moyen d'une expansion en multipôles, de façon à satisfaire aux équations de Maxwell dans chaque domaine. Pour efficaces que soient toutes ces méthodes, elles ont aussi toutes un même inconvénient: elles n'utilisent pas explicitement la symétrie particulière des milieux gyrotropes ce que permet seulement une formulation de la diffusion au moyen de la matrice  $T$ .

Nous avons choisi de développer une approche perturbative de la diffusion de Mie sous champ magnétique, qui utilise des notations et des techniques courantes en physique quantique, mais d'un usage beaucoup moins répandu en optique classique. Ce formalisme quantique a l'avantage de prendre en compte de façon plus transparente la symétrie du problème grâce à l'utilisation de la matrice  $T$ . Par exemple, pour une particule anisotrope, la matrice  $T$  dépend de l'orientation des axes du tenseur diélectrique par rapport au système de coordonnées lié à la lumière incidente, soit en général des trois angles d'Euler. Le problème est donc invariant par certaines rotations de la sphère anisotrope, ce que l'on peut prendre en compte explicitement dans le formalisme quantique. Dans un premier temps, nous présentons un résultat général de théorie des perturbations. Ce résultat est appliqué à un diffuseur de Mie magnéto-optique, pour lequel nous discutons les symétries en détail, en particulier au moyen du théorème de Wigner-Eckhart. Dans un deuxième temps, nous généralisons cette approche au cas d'un diffuseur de Mie chiral, puis nous abordons certains régimes particuliers de la diffusion de Mie comme l'optique géométrique.

## 4.2 Théorie des perturbations

Dans cette section, nous présentons un résultat de théorie des perturbations pour la matrice  $T$ , qui est appliqué par la suite à la diffusion par un diffuseur de Mie magnéto-optique ou chiral. La matrice  $T$  définie à la section (3.2) est donnée par la série de Born suivante [New82]:

$$\mathbf{T}(\mathbf{B}, \mathbf{r}, \omega) = \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) + \dots \quad (4.1)$$

où  $\mathbf{V}$  représente le potentiel considéré, par exemple le “potentiel lumineux” défini au chapitre 1.2, et le tenseur de Green a été défini à l’Eq. (3.4). Nous supposons qu’on peut décomposer ce potentiel sous la forme  $\mathbf{V} = \mathbf{V}^0 + \mathbf{V}^1$ ,  $\mathbf{V}^1$  étant la partie du potentiel que l’on traite en perturbations. De la même façon, on note l’ordre 0 de la matrice  $\mathbf{T}$  par  $\mathbf{T}^0$ , et l’ordre 1 par  $\mathbf{T}^1$ . On peut de façon générale resommer la série de l’Eq. (4.1)

$$\mathbf{T}^1 = \mathbf{V}^1 + \mathbf{V}^1 \cdot \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{V}^0 + \mathbf{V}^0 \cdot \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{V}^1 + \mathbf{V}^0 \cdot \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{V}^1 \cdot \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{V}^0 \dots \quad (4.2)$$

$$\mathbf{T}^1 = (\mathbf{I} + \mathbf{T}^{0+} \mathbf{G}_0^+) \cdot \mathbf{V}^1 \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{T}^{0+}). \quad (4.3)$$

On introduit alors les fonctions propres  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}(\mathbf{r})$  de valeur propre  $\omega_{\mathbf{k}}$  pour le Hamiltonien non-perturbé. Elles représentent le champ électrique au point  $\mathbf{r}$  pour une onde plane  $|\sigma, \mathbf{k}\rangle$  incidente selon la direction  $\mathbf{k}$  et avec un état d’hélicité  $\sigma$ . On les définit par

$$|\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}\rangle = (\mathbf{I} + \mathbf{G}^{0\pm} \cdot \mathbf{T}^{0\pm}) |\sigma, \mathbf{k}\rangle. \quad (4.4)$$

Cette équation porte le nom d’équation de Lippmann-Schwinger en physique quantique [Sak89]. Le premier terme de cette équation contient l’onde incidente, le deuxième l’onde diffusée qui est une onde sphérique divergente pour le signe  $+$ , convergente pour  $-$ . En multipliant la relation (4.3) à gauche par  $\langle \sigma, \mathbf{k} |$  et à droite par  $|\sigma', \mathbf{k}'\rangle$  et en utilisant de chaque côté l’équation de Lippmann-Schwinger, on obtient

$$T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^1 = \langle \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- | \mathbf{V}^1 | \Psi_{\sigma', \mathbf{k}'}^+ \rangle. \quad (4.5)$$

Un résultat équivalent pour les éléments de matrice de la matrice  $\mathbf{T}$  a été démontré pour un problème à une dimension seulement, à l’ordre un en perturbation [Lev69]. Notre résultat également à l’ordre 1 en perturbation est valable à trois dimensions pour un potentiel quelconque. Il permet donc une description vectorielle de la lumière. Ce résultat a une interprétation claire dans le cadre de la théorie des perturbations au premier ordre indépendante du temps (théorie des perturbations de Rayleigh-Schrödinger [LL67]). En effet, comme le spectre des valeurs propres  $\omega_{\mathbf{k}}$  est continu, la correction à l’ordre 1 pour la fonction propre  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}(\mathbf{r})$  prend la forme suivante [CTDL77]

$$|\delta\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}\rangle = \sum_{\sigma', \mathbf{k}'} \frac{|\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}\rangle \langle \Psi_{\sigma', \mathbf{k}'}^{\pm} | \mathbf{V}^1 | \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}\rangle}{\omega_{\mathbf{k}} - \omega_{\mathbf{k}'} \pm i\epsilon}. \quad (4.6)$$

A partir de la définition de la matrice  $\mathbf{T}$  tirée de l’équation de Lippmann-Schwinger, on arrive à l’expression suivante

$$T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^1 = \langle \sigma, \mathbf{k} | \mathbf{V}^1 | \Psi_{\sigma', \mathbf{k}'}^+ \rangle + \langle \sigma, \mathbf{k} | \mathbf{V}^0 | \delta\Psi_{\sigma', \mathbf{k}'}^+ \rangle, \quad (4.7)$$

Au moyen de la définition (4.6) et en utilisant une relation de fermeture, on montre facilement que cette équation est bien équivalente à l'Eq. (4.5).

### 4.3 Formalisme quantique pour la diffusion de Mie

Nous considérons une sphère constituée d'un matériau Faraday actif placée dans un environnement dépourvu de propriétés magnétiques. Pour simplifier, nous supposons que l'indice relatif de la sphère ne dépend que de la distance au centre de la sphère  $r$  de rayon  $a$  par l'intermédiaire d'une fonction de Heaviside  $\Theta(r - a)$ , qui vaut 1 dans la sphère et 0 à l'extérieur,

$$\varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r}) - \mathbf{I} = [(\varepsilon_0 - 1) \mathbf{I} + \varepsilon_F \Phi] \Theta(|\mathbf{r}| - a). \quad (4.8)$$

On peut noter que cette constante diélectrique contient une partie isotrope, proportionnelle à  $\varepsilon_0 - 1$ , et une partie anisotrope, proportionnelle au champ appliqué et contrôlée par le paramètre  $\varepsilon_F$ . Cette décomposition est analogue à celle considérée par Kuzmin dans un cas plus général. Le potentiel à considérer pour la lumière est  $\mathbf{V}(\mathbf{B}, \mathbf{r}, \omega) = [\mathbf{I} - \varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r})] \omega^2$ . La partie magnétique du potentiel est traitée en perturbation, c'est  $\mathbf{V}^1(\mathbf{r}, \omega) = -\varepsilon_F \omega^2 \Theta(\mathbf{r}) \Phi$ .

Dans ce contexte, les fonctions propres non-perturbées  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}(\mathbf{r})$  introduites précédemment, représentent le champ électrique au point  $\mathbf{r}$  de la solution de Mie classique pour une onde plane  $|\sigma, \mathbf{k}\rangle$  incidente selon la direction  $\mathbf{k}$  avec un état d'hélicité  $\sigma$ . Le choix d'un formalisme quantique pour la diffusion de Mie sous champ magnétique, nous incite naturellement à choisir l'axe  $z$ , appelé aussi axe de quantification, suivant la direction du champ magnétique  $\mathbf{B}$ , ce que l'on peut faire en toute généralité. La symétrie sphérique de la solution classique permet d'utiliser une décomposition des fonctions propres de Mie pour le champ électromagnétique sur la base des harmoniques sphériques vectorielles. Ce champ électromagnétique s'écrit [New82],

$$\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^+(\mathbf{r}) = \frac{2\pi}{\rho} i^{J+1} \mathbf{Y}_{JM}^{\lambda'}(\hat{\mathbf{r}}) f_{\lambda'\lambda}^J(r) \mathbf{Y}_{JM}^{\lambda*}(\hat{\mathbf{k}}) \cdot \chi_{\sigma}(\hat{\mathbf{k}}). \quad (4.9)$$

où  $\rho = kmr$ ,  $m = \sqrt{\varepsilon_0}$ , et  $\varepsilon_0$  défini à l'Eq. (4.8). Dans cette décomposition du champ électromagnétique, il y a une sommation implicite sur tous les indices répétés  $J, M, \lambda$  et  $\lambda'$ . Ce champ est constitué d'une somme d'ondes partielles, chaque onde transportant qualitativement  $J$  unités de moment cinétique total et  $M$  unités pour la composante du moment cinétique selon l'axe  $z$ . Les notations relatives aux harmoniques sphériques vectorielles sont précisées dans l'appendice C.1. Ces harmoniques sphériques vectorielles sont les fonctions propres de l'opérateur moment cinétique  $\mathbf{J}$  défini par

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S},$$

où  $\mathbf{L}$  est l'opérateur moment cinétique associé aux rotations d'espace et  $\mathbf{S}$  un opérateur de spin.  $\mathbf{J}$



génère toutes les rotations possibles du diffuseur. Ces rotations contiennent les rotations de la sphère dans l'espace ordinaire mais aussi les rotations engendrées par l'opérateur de spin  $\mathbf{S}$  dans l'espace de polarisation.  $\mathbf{S}$  est un opérateur de spin 1 qui permet de prendre en compte la polarisation de la lumière. Ses composantes dans une base orthonormée formée des vecteurs  $\hat{\mathbf{e}}_i$  sont données par

$$S_i \mathbf{f} = i \hat{\mathbf{e}}_i \times \mathbf{f}. \quad (4.10)$$

Les fonctions  $\chi_\sigma(\mathbf{z})$  sont les fonctions propres des opérateurs  $S_z$  et  $S^2$ , avec comme valeur propre respectivement  $\sigma$  et 2. Plus généralement, on note que  $\chi_\sigma(\hat{\mathbf{k}})$  sont les fonctions propres des opérateurs  $\mathbf{S} \cdot \hat{\mathbf{k}}$  et  $S^2$ , respectivement de valeur propre  $\sigma(\hat{\mathbf{k}})$  et  $S(S+1) = 2$ . Cette définition de l'hélicité  $\sigma(\hat{\mathbf{k}})$  rend transparente le fait que  $\sigma(\hat{\mathbf{k}})$  change de signe dans l'opération de parité:

$$\sigma(-\hat{\mathbf{k}}) = -\sigma(\hat{\mathbf{k}}). \quad (4.11)$$

Il est important de distinguer l'hélicité qui dépend de la direction de propagation  $\mathbf{k}$ , de l'état de polarisation circulaire que l'on définit en général par rapport à un axe  $z$  fixe (*i.e* comme la valeur propre de  $S_z$ ). La différence entre ces deux concepts n'est hélas pas toujours très claire dans la littérature.

L'effet Faraday étant lié à un changement dans la polarisation de la lumière il doit pouvoir s'exprimer dans le formalisme quantique lié au spin. En effet le tenseur  $\Phi$ , qui intervient dans la constante diélectrique (4.8), obéit à

$$\Phi \cdot \chi_\sigma(\hat{\mathbf{k}}) = -\sigma(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{k}} \chi_\sigma(\hat{\mathbf{k}}). \quad (4.12)$$

Comme  $\mathbf{B}$  est suivant l'axe  $z$ , on voit que l'opérateur que l'on construit ainsi à partir du tenseur  $\Phi$  au moyen des contractions avec les vecteurs de base de la polarisation circulaire n'est rien d'autre que l'opérateur  $-S_z$ . La constante diélectrique prend alors une forme ressemblant beaucoup à l'hamiltonien de l'effet Zeeman, connu en physique atomique. Nous reviendrons à la section (4.5) sur les analogies entre l'effet Faraday et l'effet Zeeman.

## 4.4 Structure du champ électromagnétique de Mie

Dans l'Eq. (4.9), l'indice  $\lambda$  est associé au champ incident qui est transverse, c'est pourquoi cet indice ne prend que deux valeurs notées  $\lambda = e, m$  (pour électrique et magnétique). Au contraire, l'indice  $\lambda'$  est associé à la transversalité de la fonction propre de Mie elle-même. D'après les équations de Maxwell, cette fonction propre obéit à

$$\nabla \cdot \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^+ = 0.$$

Cette équation s'applique dans tout l'espace, intérieur et extérieur à la sphère, où l'indice ne dépend pas du point considéré  $\mathbf{r}$  mais pas aux bords. En effet, pour un indice plus général que celui considéré ici, c'est la divergence de  $\mathbf{D}$  et non pas celle de  $\mathbf{E}$  qui s'annule. La structure particulière de ce champ électromagnétique de Mie n'est pas en général transverse (en particulier pour le champ proche de la sphère  $kr \leq 1$ ), aussi  $\lambda'$  peut prendre trois valeurs possibles correspondant à une composante longitudinale notée  $o$  et aux deux composantes transverses. La composante longitudinale du champ varie comme  $1/r^2$  alors que les composantes transverses varient comme  $1/r$ , ce qui est imposé par la conservation de l'énergie. Par conséquent, en champ lointain  $kr \gg 1$ , et les indices  $\lambda, \lambda' \in \{e, m\}$ . De ce fait le tenseur qui relie le champ diffusé loin de la sphère au champ incident est une matrice  $2 \times 2$  qui n'est rien d'autre que la matrice  $\mathbf{T}$  que nous recherchons. La richesse du champ proche de la solution de Mie fait tout son intérêt pour la diffusion multiple dans laquelle le champ proche intervient en général [LT96].

La forme explicite de la fonction radiale  $f_{\lambda'\lambda}^J(\rho)$  contenue dans l'Eq. (4.5) est fixée par les conditions aux limites vérifiées par le champ électromagnétique. Le comportement asymptotique de cette fonction loin de la sphère est donnée dans l'ouvrage de Newton. Sur la sphère, les composantes tangentielles des champs électriques et magnétiques doivent être continues. Ces conditions définissent la fonction radiale à une transformation unitaire près. L'expression correspondante pour  $f_{\lambda'\lambda}^J$  est donnée à l'appendice A.

## 4.5 Théorème de Wigner-Eckhart

Pour une sphère de Mie en l'absence de champ magnétique, l'invariance par rotation du diffuseur conduit à la forme diagonale de la matrice  $\mathbf{T}$  par rapport à tous les indices  $J, M$  et  $\lambda$ . On s'attend donc à une modification de ces règles de symétrie lorsque le diffuseur est anisotrope. L'expression explicite de la matrice  $\mathbf{T}$  à l'ordre 1 en champ magnétique s'obtient en reportant l'Eq. (4.9) dans l'expression (4.5), ce qui nécessite de réaliser une intégration radiale et angulaire détaillées aux appendices A,C.1, C.2. Ce calcul fastidieux de la matrice  $\mathbf{T}$  peut être évité, et les propriétés de symétrie clarifiées, en faisant usage du fameux théorème de Wigner-Eckhart.

Ce théorème, qui est une conséquence du lemme de Schurr en théorie des groupes, est souvent employé en physique quantique pour calculer des éléments de matrice d'opérateurs dans la base des fonctions propres du moment cinétique (que nous notons indifféremment  $\mathbf{Y}_{JM}^\lambda$  ou en notation de Dirac  $|JM\lambda\rangle$ ). Soit  $U$  un opérateur tensoriel de rang  $k$  dont les composantes sphériques sont notées  $U_q^k$ . Le théorème stipule alors [Edm60]:

$$\langle \lambda JM | U_q^k | \lambda' J' M' \rangle = (-1)^{J-M} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ -M & q & M' \end{pmatrix} \langle \lambda J || U^k || \lambda' J' \rangle . \quad (4.13)$$

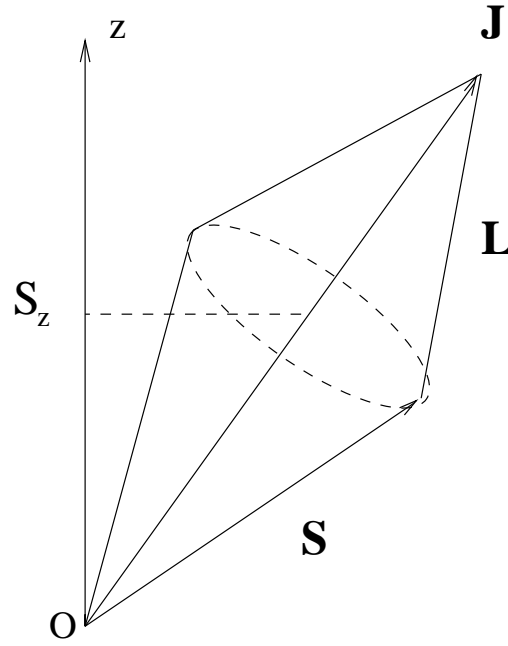


FIG. 4.1 - Le théorème de projection correspond à l'idée classique, que si  $\mathbf{S}$  est un vecteur qui précesse autour de  $\mathbf{J}$ , alors la moyenne  $\overline{S_z}$  selon l'axe- $z$  s'obtient en projetant  $\mathbf{S}$  d'abord suivant  $\mathbf{J}$  puis suivant  $z$ .

où le membre de droite contient un coefficient  $3j$  noté  $\begin{pmatrix} J & k & J' \\ -M & q & M' \end{pmatrix}$  et l'élément de matrice réduit  $\langle \lambda J || U^k || \lambda' J' \rangle$  qui est indépendant de  $M, M'$  et  $q$ . Le cas qui concerne l'effet Faraday est en fait simple car on a à considérer seulement l'opérateur de spin  $\mathbf{S}$  qui est un opérateur vectoriel. Dans ce langage, un opérateur vectoriel correspond à  $k = 1$  et sa composante suivant l'axe- $z$  à  $q = 0$ . Le coefficient  $3j$  de Eq. (4.13) fournit alors les règles de sélection  $M = M'$  et  $J - J' \leq 1 \leq J + J'$ . La règle de sélection  $M = M'$  est une conséquence de l'invariance de l'indice du diffuseur, qui ne contient que l'opérateur  $S_z$ , par toutes les rotations d'axe  $z$  engendrées par  $J_z$ . La règle de sélection  $M = M'$  pour la matrice  $T$  est vérifiée plus généralement pour tout diffuseur possédant une symétrie axiale, ce qui est le cas en particulier du diffuseur sous champ magnétique [SSS99].

Comme  $\mathbf{S}$  est un opérateur vectoriel, l'élément de matrice réduit se calcule simplement en utilisant le théorème de projection, qui permet de remplacer dans l'élément de matrice considéré tout opérateur vectoriel par sa projection sur l'opérateur moment cinétique  $\mathbf{J}$  (voir figure 4.1). Pour cela, on utilise la relation

$$\frac{\mathbf{S} \cdot \mathbf{J}}{[J(J+1)]^{1/2}} = \frac{-\mathbf{L}^2 + \mathbf{J}^2 + \mathbf{S}^2}{2[J(J+1)]^{1/2}} = \frac{-L(L+1) + J(J+1) + 2}{2[J(J+1)]^{1/2}}. \quad (4.14)$$

Les fonctions  $|JM\lambda\rangle$  sont des états propres de  $\mathbf{J}^2$  et  $\mathbf{S}^2$  mais pas de  $\mathbf{L}^2$ . En utilisant les définitions

relatives aux harmoniques sphériques vectorielles, on obtient une représentation de  $\mathbf{L}^2$  dans la base orthonormée formées par ces fonctions  $|JM\lambda\rangle$ . En choisissant de ranger les vecteurs repérés par l'indice  $\lambda$  dans l'ordre  $e, o, m$ , cela donne

$$\langle \lambda JM | \mathbf{L}^2 | \lambda' J' M \rangle = \delta_{J,J'} \begin{pmatrix} J(J+1) & -2\sqrt{J(J+1)} & 0 \\ 2\sqrt{J(J+1)} & 2+J(J+1) & 0 \\ 0 & 0 & J(J+1) \end{pmatrix}. \quad (4.15)$$

En utilisant la relation (4.14), on obtient une représentation de  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{J}$  dans la base des fonctions  $|JM\lambda\rangle$ . En appliquant le théorème (4.13), on en déduit l'élément de matrice réduit  $\langle \lambda J || \mathbf{S} || \lambda' J' \rangle$ , et donc aussi l'élément de matrice

$$\langle \lambda JM | S_z | \lambda' JM \rangle = M \begin{pmatrix} \frac{1}{J(J+1)} & \frac{1}{\sqrt{J(J+1)}} & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{J(J+1)}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{J(J+1)} \end{pmatrix}. \quad (4.16)$$

Cette matrice dépend explicitement du nombre quantique magnétique  $M$  alors que ce nombre n'intervient pas en l'absence de champ magnétique (conséquence du théorème de Wigner-Eckhart et de la symétrie sphérique). Cette dépendance en  $M$  est attendue pour un effet comme l'effet Faraday qui agit sur une onde circulaire droite ou gauche de façon opposée comme pour l'effet Zeeman.

## 4.6 Matrice $\mathbf{T}$ sous champ magnétique

Après avoir réalisé les simplifications nécessaires, la matrice  $\mathbf{T}$  d'un diffuseur de Mie sous champ magnétique prend la forme suivante (voir l'annexe A pour de plus amples développements)

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^1 = \frac{16\pi^2}{m\omega} \varepsilon_F \sum_{J,M} (-M) \left[ \mathcal{C}_J \mathbf{Y}_{J,M}^e(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J,M}^{e*}(\hat{\mathbf{k}}') + \mathcal{D}_J \mathbf{Y}_{J,M}^m(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J,M}^{m*}(\hat{\mathbf{k}}') \right], \quad (4.17)$$

où les coefficients  $\mathcal{C}_J$  et  $\mathcal{D}_J$  sont fonctions des coefficients  $c_J$  et  $d_J$  qui interviennent dans le champ interne de la solution de Mie classique. On remarque que la matrice  $\mathbf{T}$  obtenue est toujours diagonale dans la base  $e, m$  comme la matrice  $\mathbf{T}$  en l'absence de champ magnétique. La complexité du cas avec champ magnétique, se limite en fait à la forme de la matrice  $\mathbf{T}$  dans la base des vecteurs de polarisation liée au plan de diffusion, qui est la base "classique" utilisée par Van De Hulst. Dans cette base liée au plan de diffusion (qui est distincte de la base associée aux indices  $e, m$ ), la matrice  $\mathbf{T}$  sous champ magnétique n'est plus diagonale contrairement au cas en l'absence de champ.

La forme (4.17) peut être considérablement simplifiée par une observation simple. Comme la matrice  $\mathbf{T}^1$  est linéaire en  $\hat{\mathbf{B}}$ , on peut la construire par superposition de 3 cas simples particuliers pour

la direction de  $\hat{\mathbf{B}}$ . Si  $\hat{\mathbf{k}}$  et  $\hat{\mathbf{k}}'$  ne sont pas colinéaires, on peut décomposer le vecteur normé  $\hat{\mathbf{B}}$  sur la base non-orthogonale mais complète des vecteurs  $\hat{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\mathbf{k}}'$  et  $\hat{\mathbf{g}} = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' / |\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'|$ . Lorsque ces vecteurs sont colinéaires, l'Eq.(4.17) fournit l'expression de la matrice T. Cette observation simple s'avère extrêmement efficace et permet une résolution analytique complète. Le problème initial de la diffusion de Mie dépendait des trois angles que font entre eux les vecteurs  $\hat{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\mathbf{k}}'$  et  $\hat{\mathbf{B}}$  de façon compliquée. Avec le théorème de superposition, on se ramène en fait à étudier seulement deux cas différents (les cas  $\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}$  et  $\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}'$  étant identiques à traiter), qui ne dépendent que d'un seul angle, l'angle de diffusion entre  $\hat{\mathbf{k}}$  et  $\hat{\mathbf{k}}'$ .

## 4.7 Diffuseur chiral

Nous avons montré au chapitre 2, que l'on pouvait traiter le champ électromagnétique dans un milieu chiral homogène comme la superposition de deux champs électromagnétiques associés respectivement à chacun des deux états d'hélicité. Dans un milieu homogène, ces deux champs n'échangent pas d'énergie car ils ne sont pas couplés. Lorsqu'on considère un milieu hétérogène, comme un diffuseur chiral dans un milieu non-chiral ou le problème inverse d'un diffuseur non-chiral dans un environnement chiral, ces deux champs sont couplés et il y a un échange d'énergie de l'un à l'autre. La résolution des équations de Maxwell pour un diffuseur de Mie chiral est due à Bohren [Boh74, Boh75, BH83]. Dans les milieux hétérogènes chiraux, le potentiel associé à la lumière acquiert un terme de couplage *non-local*. En effet, la généralisation du potentiel (2.19) valable dans un milieu homogène au cas d'un diffuseur de Mie chiral est à l'ordre un en  $g$

$$\mathbf{V}^1(\mathbf{p}, \mathbf{r}, \omega) = \omega^2 (1 - \varepsilon\mu) \Theta(\mathbf{r}) \mathbf{I} - \omega^2 g' [\Theta(\mathbf{r}) \Phi_{\hat{\mathbf{p}}} + \Phi_{\hat{\mathbf{p}}} \Theta(\mathbf{r})]. \quad (4.18)$$

Le premier terme dans ce potentiel est un terme local. Le second terme en revanche est *non-local* à cause de la présence simultanée de l'opérateur  $\Phi_{\hat{\mathbf{p}}}$  défini à l'Eq. (2.18) et de la fonction de Heaviside  $\Theta(\mathbf{r}) = \Theta(|\mathbf{r}| - a)$ , respectivement fonctions des opérateurs  $\mathbf{p}$  et  $\mathbf{r}$  qui ne commutent pas.

Dans cette section, la méthode précédente pour la matrice T sous champ magnétique est généralisée au cas du diffuseur de Mie chiral à l'ordre un dans le paramètre  $g$ , et le résultat est comparé à la théorie exacte non-perturbative de Bohren. L'intérêt d'utiliser un modèle de diffuseur chiral simplifié est qu'on peut l'appliquer en diffusion multiple plus facilement que la solution exacte. Par ailleurs l'approche perturbative est largement validée par la faiblesse de l'activité optique dans la majorité des situations expérimentales (le déphasage dans un milieu chiral vaut typiquement  $10^{-5}$  radians sur un parcours de 1cm). Comme la démarche conduisant à la matrice T du diffuseur de Mie chiral est très analogue au cas magnéto-optique, nous nous contentons de mentionner les aspects les plus significatifs, et d'abord les propriétés de symétries. Ces symétries correspondent à une relation de réciprocité standard et une relation de parité "brisée". En effet la matrice  $\mathbf{T}^1(g)$  du diffuseur chiral vérifie une relation de symétrie

de parité faisant intervenir un signe moins  $-g$ , de la même façon que la matrice  $\mathbf{T}^1(\mathbf{B})$  du diffuseur Faraday-actif faisait intervenir un signe moins  $-\mathbf{B}$  dans la relation de réciprocité.

$$\begin{aligned} \text{Parité:} \quad & T_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}(g) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(-g), \\ \text{Réciprocité:} \quad & T_{-\mathbf{k}'-\sigma', -\mathbf{k}-\sigma}(g) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(g). \end{aligned} \quad (4.19)$$

Ces relations sont les analogues des équations (3.8,3.12), valables pour le cas magnéto-optique. L'intérêt de ces symétries est là encore qu'elles subsistent en diffusion multiple.

D'après la relation (4.5), et le potentiel (4.18), la matrice  $\mathbf{T}$  à l'ordre 1 en  $g$  s'écrit explicitement:

$$T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^1 = -\omega^2 g' \langle \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- | \Theta \Phi_{\mathbf{k}'} + \Phi_{\mathbf{k}} \Theta | \Psi_{\sigma', \mathbf{k}'}^+ \rangle. \quad (4.20)$$

A partir des équations de Maxwell, on peut voir que l'opérateur  $\Phi_{\hat{\mathbf{p}}}$  relie le champ électrique  $|\mathbf{E}_{\mathbf{k}} \rangle = |\Psi_{\mathbf{k}}^+ \rangle$  et le champ magnétique  $|\mathbf{B}_{\mathbf{k}} \rangle$  de l'onde diffusée:

$$\Phi_{\hat{\mathbf{p}}} \cdot |\mathbf{E}_{\mathbf{k}} \rangle = -i |\mathbf{B}_{\mathbf{k}} \rangle = - \langle \mathbf{E}_{\mathbf{k}} | \cdot \Phi_{\hat{\mathbf{p}}}.$$

Cette relation permet de n'avoir à considérer qu'un élément de matrice de l'opérateur identité dans le calcul de la matrice  $\mathbf{T}$ , en utilisant l'expression explicite des champs électriques et magnétiques de l'onde diffusée. Cela se traduit par

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^1(g) = \frac{16\pi^2 m}{\omega} g' \sum_{J, M} \mathcal{E}_J \left[ \mathbf{Y}_{J, M}^e(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J, M}^{m*}(\hat{\mathbf{k}}') - \mathbf{Y}_{J, M}^m(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J, M}^{e*}(\hat{\mathbf{k}}') \right], \quad (4.21)$$

avec le coefficient

$$\mathcal{E}_J = c_J^* d_J^* u_J^2 y \left( -\frac{J(J+1)}{y^2} + 1 + A_J^2 \right), \quad (4.22)$$

contenant le paramètre de taille  $y = m\omega a$ .

Le problème de la diffusion par un diffuseur chiral est nettement plus simple que le cas magnéto-optique, car le paramètre de perturbation au lieu d'être un vecteur comme  $\mathbf{B}$  est un scalaire  $g$ . Ainsi pour obtenir la matrice  $\mathbf{T}$ , l'opérateur à considérer pour le théorème de Wigner-Eckhart est un opérateur scalaire, et non plus vectoriel. Cet opérateur est visiblement  $\mathbf{S} \cdot \hat{\mathbf{k}}$ . Le caractère scalaire de l'opérateur permet de voir immédiatement que la matrice  $\mathbf{T}$  du diffuseur chiral de l'Eq. (4.21) est indépendante de  $M$ , et explique l'absence du facteur  $J(J+1)$  dans le coefficient  $\mathcal{E}_J$  quand on le compare aux coefficients  $\mathcal{C}_J$  et  $\mathcal{D}_J$  du cas magnéto-optique. Dans le cas magnéto-optique, ce facteur représente la norme du moment cinétique  $\mathbf{J}$  dans le théorème de projection dans l'Eq. (4.14). Enfin, le manque de symétrie de parité du diffuseur chiral est responsable du caractère non-diagonal de (4.21) par rapport à l'indice  $\lambda = e, m$ .

Contrairement au cas magnéto-optique où le choix de l'axe  $z$  est imposé par la direction du champ

magnétique dans le formalisme quantique, dans le cas chiral, on peut choisir l'axe  $z$  selon le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , et donc utiliser la base “classique” de Van De Hulst pour la polarisation [dH80a]. Dans cette base, la matrice  $T$  prend la forme

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1(g) = -\frac{4\pi m}{\omega} g' \mathcal{E}_{Ji} \frac{2J+1}{J(J+1)} \begin{pmatrix} 0 & \pi_J(\theta) + \tau_J(\theta) \\ -\pi_J(\theta) - \tau_J(\theta) & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.23)$$

Cette forme est en accord avec la solution exacte de Bohren lorsqu'on considère la limite à l'ordre 1 en  $g$  de sa solution [BH83]. On note que la somme des éléments non-diagonaux de la matrice dans l'Eq. (4.23) s'annule. Van De Hulst a démontré qu'un ensemble de particules asymétriques, dont la distribution est globalement invariante par l'opération de réciprocité  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}'$  et  $\mathbf{k}' \rightarrow -\mathbf{k}$ , est décrit par une matrice  $T$  dans la base “classique” de la forme  $\begin{pmatrix} b & c \\ -c & a \end{pmatrix}$  (cela est décrit comme le type 1, voir P56 de la Ref. [dH80a]). Un mélange racémique contenant autant de particules “droites” ou “gauche” est au contraire caractérisé par une matrice de ce type ayant  $c = 0$ . Comme la matrice  $T$  d'une unique particule chirale sphérique est invariante par l'opération de réciprocité, cette matrice doit avoir la forme  $\begin{pmatrix} b & c \\ -c & a \end{pmatrix}$  avec  $c \neq 0$ , ce qui est bien le cas à l'Eq. (4.23) lorsqu'on prend en compte le terme d'ordre 0 de la matrice  $T$ , dont la contribution est uniquement diagonale. Lorsque  $c$  est réel, la diffusion par cette particule produit uniquement du dichroïsme circulaire, lorsque  $c$  est imaginaire pur, uniquement de la biréfringence circulaire.

## 4.8 Polarisation et moment angulaire

La matrice  $T$  contient toute l'information sur l'amplitude de la lumière diffusée. A partir de cette information, on peut complètement caractériser la lumière diffusée en termes de son intensité  $I$  et de trois paramètres décrivant la polarisation: ce sont les paramètres de Stokes, notés  $(I, Q, U, V)$ . Les paramètres  $Q, U$  et  $V$  décrivent la forme et l'orientation de l'ellipse (dans la base “classique” pour la polarisation) correspondant à la lumière de polarisation elliptique, qui est la forme la plus générale de lumière polarisée. Le vecteur de Stokes de la lumière diffusée  $(I, Q, U, V)$  est relié linéairement au vecteur de Stokes de la lumière incidente par une matrice  $\mathbf{F}$  contenant 16 coefficients. Un principe d'équivalence stipule “qu'il est impossible de distinguer expérimentalement différentes sommes *incohérentes* d'ondes lumineuses produisant le même vecteur de Stokes” [dH80a]. La raison en est que tous les appareils connus en optique se traduisent par une transformation linéaire des paramètres de Stokes. Le terme de sommes *incohérentes* figurant dans l'énoncé du principe est particulièrement important, il signifie qu'il s'agit d'une superposition de différents champs aléatoires. C'est pourquoi, la représentation au moyen des paramètres de Stokes n'est pas équivalente à la formulation utilisant la matrice  $T$ . Les paramètres de Stokes ne décrivent que la lumière diffusée *incohérente*, alors que la

matrice  $T$  contient aussi la contribution *cohérente*. C'est pourquoi on peut calculer les paramètres de Stokes à partir de la matrice  $T$  mais pas l'inverse.

Dans l'appendice B, le vecteur de Stokes est dérivé à partir de la matrice  $T$  sous champ magnétique, ce qui permet de discuter la modification produite par un champ magnétique sur l'intensité et sur la polarisation en diffusion simple. D'une importance particulière pour la polarisation dans les milieux gyrotropes est le paramètre  $V$ , qui représente le degré de polarisation circulaire  $V$  (ou de façon équivalente l'ellipticité de l'ellipse) de la lumière diffusée. Le paramètre  $V$  de la lumière diffusée par une sphère isotrope éclairée avec de la lumière incidente non polarisée est nul. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, l'anisotropie du diffuseur peut conduire à une valeur non-nulle de ce paramètre  $V$  en présence d'un champ magnétique  $\mathbf{B}$ , lorsque  $\mathbf{B}$  est dirigé le long du vecteur d'onde de la lumière incidente. Dans cette géométrie, le cas magnéto-optique et le cas chiral sont très proches, c'est pourquoi le paramètre  $V$  devrait également être modifié par un diffuseur chiral (ce qui est considéré en diffusion multiple dans la partie II).

Le paramètre  $V$  étant lié au moment angulaire transporté par l'onde diffusée, ces résultats prouvent que la diffusion par un diffuseur anisotrope sphérique peut modifier l'état de moment angulaire de la lumière incidente. Or, en l'absence d'absorption dans la sphère, le moment angulaire total de la sphère et de la lumière doit être conservé. Par conséquent, dans des circonstances qui restent à préciser (et qui dépendent généralement de l'orientation relative du vecteur d'onde, de l'état de la polarisation incidente et du champ magnétique éventuellement appliqué), la sphère peut subir un couple moyen de rotation non-nul. Le premier traitement rigoureux de ce couple est dû à Marston [MC84]. Ce dernier a calculé le couple subi par un diffuseur de Mie, d'indice isotrope (en l'absence de champ magnétique), mais absorbant. Le diffuseur est éclairé par de la lumière polarisée circulairement. L'absorption dans la sphère introduit alors une différence de moment angulaire entre la lumière incidente et la lumière diffusée, qui produit un couple observé expérimentalement [FNHRD98]. Ce couple de rotation, l'équivalent de la pression de radiation pour le moment angulaire, autorise de manipuler des particules en rotation avec la polarisation de la lumière. Le couple produit par un éclairage par un faisceau gaussien (dont l'axe ne passe pas nécessairement par le centre de la sphère) est aussi un cas intéressant expérimentalement et qui a fait l'objet de récents travaux sur le plan théorique [PGG98]. En conclusion, il est important de noter que, l'existence d'un couple par rapport à la direction de propagation ne dépend pas de l'absorption de l'énergie par le diffuseur. Un diffuseur anisotrope (ce qui est le cas en particulier d'un diffuseur sous champ magnétique ou d'un diffuseur chiral) éclairé par de la lumière polarisée (circulairement ou même linéairement) devrait subir un couple non-nul même en l'absence d'absorption. Dans cette thèse, seuls les effets éventuels de l'anisotropie des diffuseurs sur la polarisation de la lumière diffusée ont été pris en compte, mais pas les mouvements de translation ou de rotation éventuellement produits par la lumière sur les diffuseurs. Dans la dernière partie de cette thèse portant sur les ferrofluides, on voit que la rotation des particules provoquée par l'application d'un champ est responsable de la rotation Faraday dans ce type de milieux.



## 4.9 Temps de séjour

On appelle temps de séjour d'une onde, une mesure du temps que l'onde passe dans une zone spécifiée de l'espace. En général la zone considérée est celle dans laquelle l'onde est diffusée par un potentiel donné, la diffusion introduisant un "délai" qui est perceptible dans la phase de l'onde. Une revue très complète sur le sujet a été publiée par Landauer [Lan94]. Ce concept a été développé aussi bien pour des ondes classiques que pour des ondes obéissant à l'équation de Schrödinger [TTL93]. Le temps de Wigner a été la première tentative de définir un temps associé à une onde en mécanique quantique, il a été défini comme la dérivée de la phase de la matrice  $T$ ,  $\phi$  par rapport à l'énergie [Wig46]

$$\tau_W = \frac{d\phi}{dE}. \quad (4.24)$$

Dans certains cas, en particulier lorsque l'effet tunnel est présent, le temps de Wigner ne donne pas toujours une estimation raisonnable du temps recherché. D'où l'idée de définir plutôt le temps de séjour de l'onde à partir du temps d'interaction de la lumière avec le potentiel considéré, qu'on appelle temps de Larmor, défini pour le transport des électrons, à partir de la précession du spin produit par un champ magnétique. La rotation Faraday pour le faisceau transmis ou l'effet Kerr magnétique pour le faisceau réfléchi sont les analogues pour la lumière de la précession de Larmor, ces effets magnéto-optiques se comportant comme des "horloges", qui mesurent le temps que passe la lumière dans le milieu. Dans le régime qui nous intéresse, le temps de séjour et le temps de Larmor sont quasiment égaux. Dans la limite où la propagation est à une dimension seulement (configuration de Fabry-Perot), nous montrons à la section suivante, que la matrice  $T$  sous champ magnétique dérivée plus haut permet de retrouver l'expression classique du temps de séjour. Büttiker et Landauer ont considéré le temps caractéristique de transmission à travers une barrière dont la hauteur est modulée dans le temps, qu'ils ont comparé au temps de Larmor [B83, BL82].

A cause de la dépendance du potentiel en fonction de l'énergie mentionnée au chapitre 1.2, on distingue deux contributions dans le temps de Wigner

$$\tau_W = \left( \frac{\partial \phi}{\partial E} \right)_V + \left( \frac{\partial \phi}{\partial V_0} \right) \frac{dV_0}{dE}. \quad (4.25)$$

Le premier terme correspond à l'énergie rayonnée par le diffuseur, c'est à dire l'énergie du champ diffusé seul, le deuxième terme correspond à l'énergie accumulée dans la matière (l'énergie électromagnétique stockée dans le diélectrique). C'est cette dernière contribution qui permet de définir rigoureusement le temps de séjour de l'onde  $\tau_d$ , c'est à dire le terme lié à la dérivée fonctionnelle de la phase  $\phi$  par rapport au potentiel [TTL93]. En fait, on peut montrer que le temps de séjour et le temps de Wigner ne diffèrent qu'à basse fréquence [LT96]. Pour le régime qui nous intéresse, au voisinage des résonances, ces deux temps sont égaux, de sorte qu'on peut aussi définir le temps de séjour par

$$\tau_d \simeq \frac{1}{2\omega} W_{Bott}^E \simeq \frac{1}{2\omega} \langle \Psi_{\sigma,\mathbf{k}}^+ | \Theta | \Psi_{\sigma,\mathbf{k}}^+ \rangle . \quad (4.26)$$

où  $W_{Bott}^E$  représente la partie de l'énergie électromagnétique d'origine électrique dans l'énergie totale stockée dans la sphère dont l'expression est donnée par Bott *et al.* [BZ87]. Cette énergie est normalisée par l'énergie électromagnétique de l'onde incidente. L'expression ci-dessus est à comparer à celle de la matrice T, à l'Eq. (4.5). Dans les deux cas, ces quantités font intervenir des intégrales sur le volume du diffuseur de fonctions d'onde représentant le champ diffusé, de sorte que la structure du champ proche de Mie intervient explicitement aussi bien pour la matrice T que pour le temps de séjour. Une différence importante entre ces deux quantités tient au fait que l'élément de matrice qui définit l'énergie contient deux fonctions *identiques*  $|\Psi_{\sigma,\mathbf{k}}^+\rangle$ . Cela a pour conséquence que l'énergie électromagnétique n'est pas une fonction analytique de l'indice contrairement à la matrice T. A cause de ce caractère non-analytique, l'extension du calcul de l'énergie électromagnétique au cas d'un milieu dispersif pour la sphère diélectrique est plus délicate que dans le cas non-dispersif traité par Bott, et a été menée récemment par Ruppin [Rup98] dans le contexte de la détermination d'une vitesse caractéristique pour le transport de l'énergie en diffusion multiple, en utilisant une méthode due à Loudon [Lou70].

Notons enfin que, l'énergie électromagnétique définie par Bott contient une contribution électrique plus une contribution magnétique

$$W_{Bott} = W_{Bott}^E + W_{Bott}^M. \quad (4.27)$$

On démontre à partir des équations de Maxwell que l'énergie électromagnétique totale intégrée sur tout l'espace se répartit également en une contribution magnétique et électrique [LLP67]. Cela n'est pas le cas dès que le volume d'intégration est fini, à cause du champ électromagnétique rayonné hors de la sphère qui produit une différence entre ces deux contributions. Donc pour un diffuseur Mie, on a de façon générale,  $W_{Bott}^E \neq W_{Bott}^M$ . Lorsque la taille de la sphère est petite par rapport à la longueur d'onde (diffusion Rayleigh), on obtient le même résultat que lorsque le volume d'intégration est infini. Dans cette limite, on peut vérifier qu'il y a bien égalité entre la contribution électrique et la contribution magnétique, on parle alors d'équipartition. Lorsque la sphère est beaucoup plus grande que la longueur d'onde (régime de l'optique géométrique), on a également équipartition de l'énergie électromagnétique stockée dans la sphère comme on peut le vérifier directement au moyen de la solution de Mie. Par conséquent, une non-équipartition entre l'énergie magnétique et électrique n'est possible que dans le régime de Mie, où la taille de la sphère est de l'ordre de la longueur d'onde.

Le temps de séjour est également relié à l'absorption dans le diffuseur. En effet, plus le trajet dans le diffuseur est long, plus l'onde subit de l'absorption. Ce trajet peut être considérablement augmenté par rapport au trajet balistique au voisinage de résonances. On peut donc aussi définir le temps de séjour en l'absence d'absorption par

$$\tau_d^{abs} = \lim_{m_i \rightarrow 0} \frac{Q_{abs}}{\omega m_i} \quad (4.28)$$

où  $Q_{abs}$  est la section efficace d'absorption et  $m_i$  la partie imaginaire de l'indice de réfraction. L'équivalence entre le temps de séjour ainsi défini à partir de la sensibilité à l'absorption et le temps de Larmor a été démontré dans un cadre mathématique exact par Muga *et al.* [MBS92]. Expérimentalement, le temps de séjour a pu être mesuré dans le domaine des micro-ondes en diffusion multiple dans le groupe de Genack [GSST99].

## 4.10 Optique géométrique

Dans la limite où la longueur d'onde de la lumière est très petite par rapport à la taille de la sphère, la solution de Mie s'interprète au moyen de l'optique géométrique. L'onde incidente que nous avons supposé plane jusqu'à présent peut être considérée comme constituée de rayons. Cette section présente deux aspects simplement accessibles à partir de solution de Mie, mais il est clair que le sujet de l'optique géométrique est très riche et c'est pourquoi c'est un domaine en soit. La solution de Mie fait intervenir une décomposition en ondes partielles repérées par un indice  $J$  comme à l'Eq. (4.9) par exemple. Les fonctions de Bessel intervenant dans cette solution ont un comportement oscillant lorsque  $J + 1/2 < x$ , et exponentiellement décroissant lorsque  $J + 1/2 > x$ . Cela s'interprète à l'aide du principe de localisation, qui stipule qu'"un terme d'ordre  $J$  dans la solution de Mie correspond à un rayon qui passe à une distance  $(J + 1/2)\lambda/(2\pi)$  du centre de la sphère" [dH80a]. A chaque rayon, on peut donc associer un paramètre d'impact  $b/a = (J + 1/2)/x \leq 1$ . Les rayons correspondant à  $b/a = (J + 1/2)/x > 1$  ne touchent pas la sphère mais contribuent à certaines propriétés de la solution comme l'énergie totale emmagasinée dans la sphère ou le temps de séjour de l'onde dans la sphère.

L'optique géométrique dans sa formulation standard ne rend compte qu'incomplètement de la diffusion par des sphères de grande taille. En effet, il est nécessaire de considérer la phase de l'onde, susceptible de provoquer des interférences entre différents rayons. Les conditions de l'optique géométrique sont donc non seulement que le paramètre de taille soit grand  $x \gg 1$  mais aussi que le déphasage de l'onde dans la sphère soit grand *i.e*  $2x(m - 1) \gg 1$ . D'autre part, l'optique géométrique cesse d'être valable au voisinage des angles associés à l'arc en ciel et à la gloire. Enfin l'optique géométrique ne s'applique qu'à la lumière réfractée ou réfléchie, mais pas à la lumière diffractée. Pour éclaircir ce point, il est bon de rappeler la distinction entre diffusion et diffraction (il s'agit ici de la diffraction de Fraunhofer) dans le contexte de la diffusion de Mie. L'énergie qui n'est pas perdue par absorption contribue à la réflexion et à la réfraction de l'onde incidente. On désigne ce processus par le terme général de diffusion. La diffusion dépend du matériau considéré et de la polarisation du faisceau incident. Au contraire, la diffraction de Fraunhofer résulte d'une répartition de l'énergie du front d'onde incident qui est arrêtée par la section efficace géométrique de l'objet. La distribution en intensité du

profil de diffraction dépend de la taille de l'objet diffractant, (et en général de sa forme) mais elle est indépendante de la composition de l'objet (en particulier de son indice) et de la polarisation du faisceau incident. Le concept de bords est propre autant à l'objet diffractant qu'à son complémentaire (diffraction par un trou au lieu de diffraction par un disque), c'est pourquoi la diffraction obéit au principe de Babinet. La diffraction produit un pic d'intensité dans la direction avant d'autant plus intense que l'objet diffractant est grand, alors que la diffusion fournit un profil d'intensité plus isotrope dépendant de l'indice. La contribution totale (intégrée sur tous les angles) de la diffraction est égale à celle de la diffusion (ce résultat est connu sous le nom de paradoxe d'extinction [dH80a]).

Dans d'autres domaines que la diffusion de Mie, le terme de diffraction est généralement utilisé dans une acception beaucoup plus large. La diffraction désigne alors l'effet produit sur une onde par une structure périodique. On parle de diffraction par des réseaux par exemple. Dans cette acception, la diffraction dépend alors naturellement de l'indice dont est constitué la structure périodique considérée.

#### 4.10.1 Temps de séjour dans un Fabry-Perot

Considérons la solution de Mie sous champ magnétique pour un rayon d'impact central, caractérisé par  $J = 1$ . La contribution de la diffraction de Fraunhofer mis à part, cela revient à étudier la rotation Faraday dans une cavité Fabry-Perot. Comme la rotation du plan de polarisation de la lumière s'accumule au cours du chemin parcouru par la lumière (contrairement au cas de l'activité optique), la rotation Faraday peut être considérablement augmentée dans une cavité Fabry-Perot, comme cela a été montré à la fois théoriquement et expérimentalement [Lin94, RRH64]. Pour le seul rayon d'impact central, les coefficients de Mie se simplifient et deviennent des fonctions périodiques du paramètre de taille  $x$ , leurs amplitudes étant gouvernées par les coefficients de Fresnel en réflexion. Nous introduisons  $\mathbf{T}_{scatt}^0$  la partie de la matrice  $\mathbf{T}^0$  due à la diffusion uniquement. Cela revient à remplacer les coefficients de Mie  $a_1$  et  $b_1$  de la solution classique, par  $a_1 - \frac{1}{2}$  et  $b_1 - \frac{1}{2}$ , car le facteur  $\frac{1}{2}$  est associé à la diffraction de Fraunhofer, qui n'existe pas dans le cas où on considère un milieu *infini* limité par deux plans perpendiculaires à la direction de propagation. Comme notre approche est perturbative, on peut écrire

$$\mathbf{T} = \mathbf{T}_{scatt}^0 + \mathbf{T}^1 \simeq \mathbf{T}_{scatt}^0 e^{\mathbf{T}^1 / \mathbf{T}_{scatt}^0}, \quad (4.29)$$

ce qui permet d'interpréter la partie imaginaire de  $\mathbf{T}^1 / \mathbf{T}_{scatt}^0$  comme un déphasage supplémentaire produit par le champ magnétique. Le déphasage contenu dans la partie imaginaire traduit une rotation de la polarisation, linéaire en champ magnétique, qui n'est rien d'autre que la rotation Faraday. Au moyen de la matrice  $\mathbf{T}^1$  obtenue à l'appendice A, on a dans une base circulaire pour la polarisation

$$\langle \sigma, \mathbf{k} | \mathbf{T}_{scatt}^0 | \sigma', \mathbf{k} \rangle = \frac{6\pi}{i\omega} (a_1^* + b_1^* - 1) \delta_{\sigma\sigma'}$$

$$\langle \sigma, \mathbf{k} | \mathbf{T}^1 | \sigma', \mathbf{k} \rangle = \frac{12V_0B}{\pi\omega^2} (\mathcal{C}_1 + \mathcal{D}_1) \langle \sigma, \mathbf{k} | \Phi | \sigma', \mathbf{k} \rangle = \frac{12V_0B}{\pi\omega^2} (\mathcal{C}_1 + \mathcal{D}_1) (-\sigma) \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}} \delta_{\sigma\sigma'}$$

où l'Eq. (4.12) a été utilisée pour simplifier l'élément de matrice intervenant dans l'expression de  $\mathbf{T}^1$ . Finalement en simplifiant les divers coefficients, on arrive à

$$\langle \sigma, \mathbf{k} | \Im m \left( \mathbf{T}^1 \left( \mathbf{T}_{scatt}^0 \right)^{-1} \right) | \sigma', \mathbf{k} \rangle = \delta\phi (-\sigma) \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}} \delta_{\sigma\sigma'}, \quad (4.30)$$

avec

$$\delta\phi = 2aV_0B \frac{1+R}{1-R} \frac{1}{1+\mathcal{M} \sin(2y)^2}. \quad (4.31)$$

et  $\mathcal{M} = 4R/(1-R)^2$  où  $R$  désigne la réflectivité (égal au carré du coefficient de réflexion en amplitude de Fresnel). La quantité  $(-\sigma) \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}$  est conservée pour un rayon donné, ce qui génère l'accumulation de la rotation Faraday. La fonction  $\delta\phi$  tend vers  $2aV_0B$  lorsque  $R \rightarrow 0$ , ce qui représente la rotation Faraday due à la traversée d'un milieu isotrope de longueur égale au diamètre de la sphère  $2a$ , comme il se doit dans cette géométrie. Lorsque  $R$  est grand, le déphasage  $\delta\phi$  fait intervenir deux facteurs:  $(1+R)/(1-R)$  le facteur maximum de gain de la rotation Faraday rotation produit par les interférences multiples dans la cavité Fabry-Perot et

$$\mathcal{T}(y) = \frac{1}{1+\mathcal{M} \sin(2y)^2}$$

qui est une fonction d'Airy de largeur  $4/\sqrt{\mathcal{M}}$ , la finesse de la cavité étant  $\mathcal{F} = \pi\sqrt{\mathcal{M}}/2$ .  $\mathcal{T}(y)$  n'est rien d'autre que le coefficient de transmission à travers une tranche d'épaisseur égale au diamètre de la sphère. Le déphasage produit dans la traversée  $\psi$  vaut [LLP67]

$$\tan \psi = \frac{1+m^2}{2m} \tan(2y).$$

A résonance, la rotation Faraday est amplifiée de façon maximale - en l'absence de pertes - par rapport à la rotation Faraday sur un aller retour [Lin94, RRH64]. On doit avoir la condition  $\delta\phi \ll 1$ , pour pouvoir appliquer l'Eq. (4.29). La rotation Faraday dédouble chaque pic de transmission de la cavité Fabry-Perot en deux pics de moindre amplitude chacun associé à deux états d'hélicité.

L'amplification de la rotation Faraday est une conséquence de l'amplification du chemin parcouru par la lumière. Comme noté à la section 4.9, la rotation Faraday mesure le temps d'interaction de la lumière avec le champ magnétique. Ce temps s'identifie au temps de séjour  $\tau_d$  de la lumière dans la cavité pour ce problème unidimensionnel. La phase obéit à la relation simple:

$$\delta\phi = V_0B \frac{\tau_d c_0}{m} \quad (4.32)$$

où  $c_0/m$  désigne la vitesse de la lumière dans la sphère. Le temps de séjour  $\tau_d$  varie entre une valeur

maximale de

$$\tau_{dwell}^{max} = (1 + m^2) \frac{a}{c_0},$$

et une valeur minimale de

$$\tau_{dwell}^{min} = \frac{4m^2}{1 + m^2} \frac{a}{c_0}.$$

Ce temps de séjour présente les oscillations caractéristiques des modes d'un Fabry-Perot comme on peut le voir à la figure 4.2. Comme on l'avait anticipé, la rotation de Faraday se comporte comme une "horloge" permettant de mesurer le temps associé à la transmission d'une onde dans la cavité. On peut de la même façon définir un temps associé à la réflexion de l'onde à partir de la matrice  $T$  vers l'arrière. Comme ce temps est très similaire à  $\tau_d$  (les deux ne diffèrent que du temps correspondant à un trajet de longueur égal au diamètre de la sphère), nous n'avons considéré que le temps de séjour associé à la transmission. Pour prendre en compte le caractère ondulatoire du temps de séjour, Gasparian *et. al* introduisent un temps de traversée complexe à partir de la rotation Faraday [GORC95]. Au moyen de ce temps de traversée complexe, les auteurs parviennent à rendre compte de mesures de temps de transmission d'ondes évanescentes à travers un guide d'onde correspondant à des vitesses superluminales. La partie réelle de ce temps de traversée complexe s'identifie avec le temps de Larmor, qui est pour nous le temps défini à partir de la rotation Faraday à l'Eq. (4.32) dans la limite  $y \gg 1$  de l'optique géométrique.

Qu'en est-il du temps de séjour dans les milieux chiraux? En fait, la définition du temps de séjour dans un milieu chiral est moins immédiate que dans le cas magnéto-optique et n'a pas été abordée dans la littérature à notre connaissance. La méthode employée ci-dessus pour décrire la propagation de la lumière dans un Fabry-Perot sous champ magnétique ne permet pas de définir un temps de séjour lorsque le milieu de la cavité est constitué d'un matériau chiral. En effet, la phase  $\delta\phi$  définie à partir de la matrice  $T$  (dans la section sur le diffuseur chiral aux Eqs. (4.21,4.22)), s'avère être une constante, indépendante de la fréquence. L'interprétation de ce résultat est claire: il n'y a pas d'accumulation de la rotation produite par l'activité optique sur un aller-retour, car le déphasage produit à l'aller est compensé au retour, contrairement au cas magnéto-optique. Pourtant, la lumière subit tout de même des aller-retours dans la cavité et des résonances sont présentes, comme on peut le voir en considérant l'énergie électromagnétique stockée dans la cavité, qui possède elle aussi la même structure en fonction d'Airy caractéristique du Fabry-Perot. La phase définie à partir de la matrice  $T$  n'est simplement pas la bonne quantité à considérer pour définir le temps de séjour dans un milieu chiral. Au chapitre II.4, nous introduisons une quantité liée à l'énergie électromagnétique qui peut servir à définir ce temps de séjour.

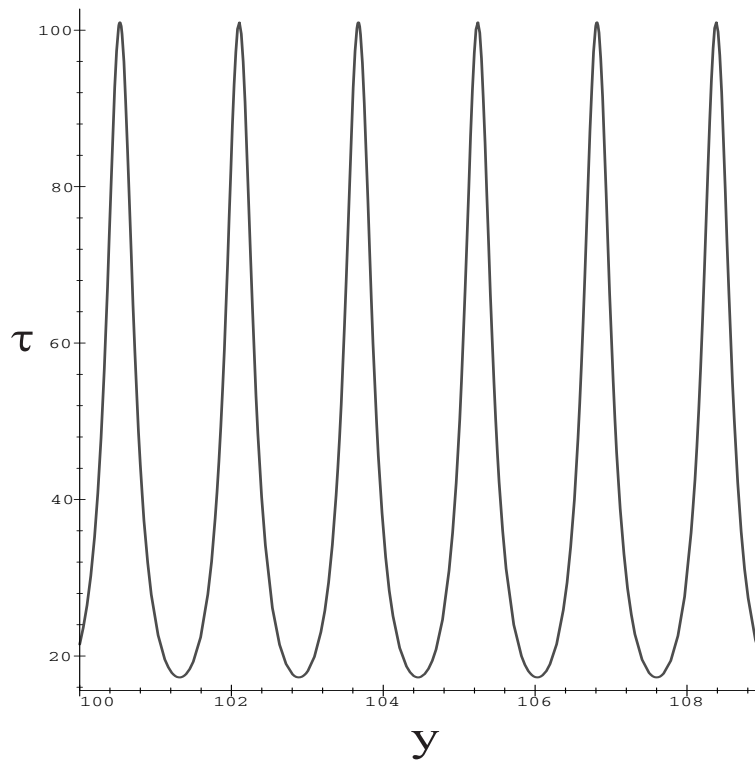


FIG. 4.2 - Temps de séjour complexe  $\tau_d$  en fonction du paramètre de taille de la sphère  $y = m\omega a$  pour l'onde partielle  $J = 1$  et pour un indice de réfraction relatif  $m = 10$ . La courbe a été normalisée par  $a/c_0$ . On peut voir sur ce temps de séjour, qui est le temps de Larmor ou le temps de la rotation Faraday, l'effet d'amplification au voisinage des résonances, caractéristique des modes d'un Fabry-Perot.

### 4.10.2 Arc en ciel et gloire

L'explication classique du phénomène de l'arc en ciel fait intervenir l'interaction de la lumière avec une goutte de forme sphérique. Les lois de la réfraction et de la réflexion de l'optique géométrique permettent de prévoir l'angle de déviation d'un rayon lumineux pour un paramètre d'impact et un indice de la sphère donnés. La présence d'un minimum de déviation dans cette courbe est responsable d'un pic dans la lumière diffusée, c'est la fameuse théorie de Descartes de l'arc en ciel. L'optique géométrique ne parvient pas à décrire l'arc en ciel dans tous ses détails. En particulier, le profil d'intensité prévu par l'optique géométrique doit être remplacé par la théorie plus élaborée d'Airy ou par la solution exacte de la théorie de Mie. C'est le prix à payer pour traiter correctement les interférences à des angles particuliers, où une focalisation de nombreux rayons se produit. C'était déjà le cas pour la configuration du Fabry-Perot envisagée ci-dessus, c'est aussi le cas au voisinage des angles pour lesquels se produisent les arcs en ciel et la gloire. Les conditions d'observation des arcs en ciel et de la gloire sont décrites dans l'ouvrage de Greenler [Gre80]. La gloire s'observe en particulier fréquemment en avion autour de l'ombre de l'appareil projetée sur des nuages. Contrairement à l'arc en ciel, l'optique géométrique est complètement incapable d'expliquer les conditions d'apparition de la gloire, qui est un effet d'interférences subtil se produisant dans la direction arrière. La gloire est causée par la forme sphérique des diffuseurs qui focalisent certains rayons au voisinage de la direction arrière. L'interférence constructive des rayons centraux après une ou plusieurs réflexions internes ne suffit pas à expliquer la gloire. Les rayons non-centraux, pour des indices de réfraction inférieurs à  $\sqrt{2}$ , le cas de l'eau dans le visible, ne peuvent pas contribuer à la gloire avec moins de 4 réflexions internes et cette contribution est complètement négligeable. Van De Hulst a montré que la gloire contient nécessairement une contribution importante des ondes de surfaces, qui émergent après réflexion interne dans la direction arrière [dH80a], ce qui a été confirmé ultérieurement à partir de la théorie de Mie [BC66]. Une revue complète a été publiée sur la gloire par Bryant et Jarmie [BJ74]. La gloire et l'arc en ciel ont été analysés par Nussenzweig au moyen d'une théorie de rayons "complexes", qui repose sur une continuation analytique dans le plan complexe de l'indice  $J$  associé au moment cinétique dans la théorie de Mie classique [Nus79, Nus77].

La gloire présente des analogies avec la rétrodiffusion cohérente dont il est question dans la deuxième partie. Dans les deux cas, il s'agit d'effets d'interférences qui conduisent à une augmentation de l'intensité diffusée exactement dans la direction arrière par rapport au niveau de l'intensité diffusée au voisinage de cette direction. Malgré ces ressemblances, les deux effets sont tout à fait différents. La rétrodiffusion cohérente est un effet de diffusion multiple, qui dépend du libre parcours moyen dans le milieu, donc en particulier de la concentration en diffuseurs. Elle n'existe pas en diffusion simple. Au contraire, la gloire existe déjà en diffusion simple. Elle est indépendante de la concentration en diffuseurs et ne dépend que de la taille moyenne des particules. D'autre part, les deux effets obéissent à des règles de sélection différentes dans la configuration conservant l'hélicité de la lumière incidente



et émergente. Dans cette configuration, l'intensité rétrodiffusée responsable de la gloire s'annule (c'est une règle de sélection de la diffusion simple), alors que la rétrodiffusion cohérente est maximale. Une comparaison entre la gloire et la rétrodiffusion cohérente, sur la base d'expériences réalisées par R. Lenke, devrait paraître prochainement [MLM99].

La figure (4.3.a) montre la fonction de phase (série de courbes à gauche), et le degré de polarisation linéaire (série de courbes à droite) en fonction de l'angle de diffusion pour un ensemble de sphères d'indice isotrope en diffusion simple. Cette fonction de phase représente l'intensité diffusée pour de la lumière incidente non-polarisée. La fonction de phase est l'élément  $F_{11}$  de la matrice F de Stokes, et le degré de polarisation linéaire est égal au rapport  $-F_{12}/F_{11}$ , tous les deux définis à l'appendice B. Afin de supprimer toutes les résonances liées à la taille finie, qu'on rencontre lorsqu'on considère une unique sphère, une distribution suffisamment large de taille de particules a été utilisée. Cette distribution de taille est

$$n(x) = x^6 \exp(-9x/x_{eff}), \quad (4.33)$$

où  $n(x)dx$  représente le nombre de particules dont le paramètre de taille est compris entre  $x$  et  $x + dx$ . L'impact de cette distribution de taille sur la diffusion de Mie, ainsi qu'une comparaison plus détaillée entre la diffusion de Mie et le régime de l'optique géométrique, pourra être trouvée dans un article célèbre de Hansen et Travis [HT74]. L'indice utilisé pour tracer la figure (4.3.a) est 1.33, les courbes correspondent de bas en haut à trois valeurs croissantes du paramètre  $x_{eff}$ , qui est le paramètre de taille effectif de la distribution (chaque courbe a été déplacée vers le haut de 5 unités sur l'axe des ordonnées pour plus de clarté).

Sur cette figure, on peut voir un pic intense au voisinage de  $\theta = 0^\circ$ , non polarisé, c'est la contribution de la diffraction, qui domine largement tous les autres effets d'interférences possibles vers l'avant. Les maxima visibles à la fois sur la fonction de phase et sur le degré de polarisation linéaire au voisinage de  $\theta = 137^\circ$  et  $130^\circ$  sont les arcs en ciel primaires et secondaires. La structure des arcs en ciel est tout particulièrement marquée sur les courbes de polarisation pour le cas de l'eau ( $m = 1.33$  dans le visible), à cause de la proximité entre l'angle de l'arc en ciel primaire et l'angle de réflexion de Brewster (correspondant à l'annulation d'un des deux coefficients de réflexion pour un des états de polarisation). La structure visible au voisinage de la direction arrière  $\theta = 180^\circ$  et en polarisation linéaire dans la fonction de phase est la gloire. On remarque que les arcs en ciel et la gloire sont d'autant plus marqués que l'on considère des sphères de grande taille, c'est à dire de paramètre de taille effectif élevé.

Une question intéressante est de savoir si l'on peut distinguer la gloire, l'arc en ciel ou la rétrodiffusion cohérente à partir des modifications apportées dans la diffusion de la lumière par l'anisotropie du ou des diffuseurs. Nous n'envisageons ici que le cas d'un ensemble de diffuseurs magnétiques dans le régime de diffusion simple, pour un champ magnétique perpendiculaire au plan de diffusion (qui

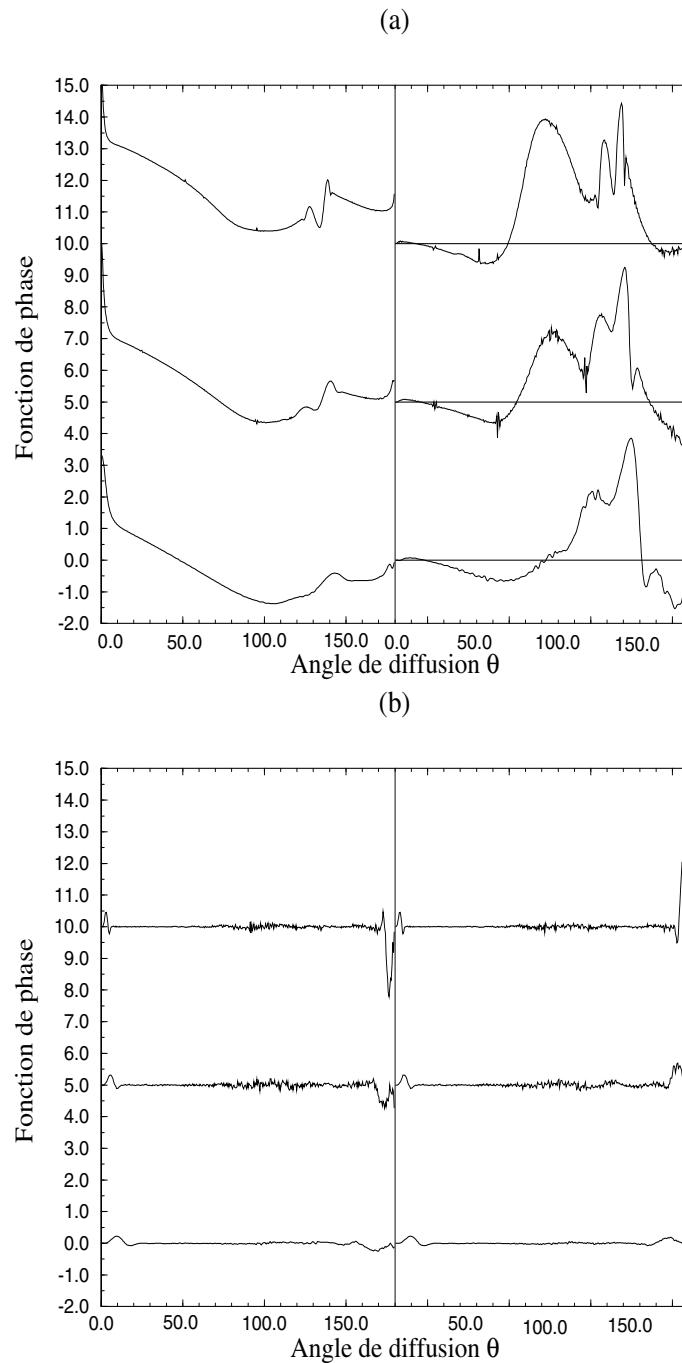


FIG. 4.3 - (a) Fonction de phase (série de courbes à gauches) en échelle logarithmique et degré de polarisation linéaire (série de courbes à droite) en échelle normale pour la diffusion simple par un ensemble de sphères d'indice  $m = 1.33$ . De bas en haut, les courbes correspondent à des paramètres de taille effectifs croissant  $x_{eff} = 50$ ,  $x_{eff} = 150$  et  $x_{eff} = 600$  pour la distribution de taille utilisée. L'échelle de gauche correspond à la courbe de la fonction de phase pour  $x_{eff} = 150$ , les autres courbes ont été déplacées vers le haut et le bas de 5 unités sur l'axe des ordonnées. (b) Correction magnétique à la fonction de phase  $F_{11}(\mathbf{B})/F_{11}(\mathbf{B} = 0)$  (série de courbes à gauches) pour les mêmes distributions de particules que dans la figure (a). La série de courbes à droite représente le rapport  $F_{33}(\mathbf{B})/F_{11}(\mathbf{B} = 0)$  i.e le degré de polarisation circulaire de la lumière diffusée pour de la lumière incidente polarisée circulairement. Ces corrections correspondent à un champ magnétique perpendiculaire au plan de diffusion. Elles ont été normalisées par la fonction de phase en l'absence de champ. Une unité sur l'axe des ordonnées correspond à  $V_0 B \lambda = 0.02$ .

est le plan formé par les vecteurs d'ondes  $\mathbf{k}, \mathbf{k}'$ , au moyen d'une simulation numérique à partir de la solution de Mie obtenue aux chapitres précédents. Nous avons choisi cette géométrie car elle donne lieu à une déflexion de la lumière et pas simplement à une modification de la polarisation. En plus, dans cette géométrie, la correction magnétique est robuste par rapport à la moyenne sur la taille des particules. La figure (4.3.b) représente la correction magnéto-transverse produite par un champ magnétique perpendiculaire au plan de diffusion sur la fonction de phase  $F_{11}(\mathbf{B})/F_{11}(\mathbf{B} = 0)$  et sur le rapport  $F_{33}(\mathbf{B})/F_{11}(\mathbf{B} = 0)$ . On a choisi de normaliser tous les paramètres de Stokes par la fonction de phase en l'absence de champ magnétique. L'élément  $F_{33}(\mathbf{B})$  représente le paramètre de Stokes  $V$  ou encore le degré de polarisation circulaire de la lumière diffusée pour de la lumière incidente polarisée uniquement circulairement. Les corrections ont été normalisées par  $V_0 B \lambda$ , produit de la constante de Verdet des diffuseurs, du champ magnétique et de la longueur d'onde dans le milieu. Dans la géométrie magnéto-transverse, le champ magnétique ne modifie pas le degré de polarisation linéaire, considéré à la figure (4.3.a), ni les autres paramètres de Stokes  $U$  et  $Q$ , mais seulement la partie diagonale de la matrice  $F$ , c'est à dire pour un diffuseur sphérique  $F_{11}(\mathbf{B}) = F_{22}(\mathbf{B})$  et  $F_{33}(\mathbf{B}) = F_{44}(\mathbf{B})$ . En revanche, un champ magnétique appliqué dans le plan de diffusion peut modifier d'autres paramètres de Stokes (voir appendice B).

On peut voir que le champ magnétique n'a aucune influence sur les angles de l'arc en ciel à l'ordre un en champ magnétique dans la configuration magnéto-transverse. Cela tient vraisemblablement à ce que l'angle de déviation d'un rayon de paramètre d'impact fixé sur une sphère n'est pas modifié dans le plan de diffusion dans ce cas là. La déviation des rayons envisagée dans le premier chapitre et produite par un champ magnétique a lieu hors du plan de diffusion, pour une configuration du champ magnétique qui n'est pas celle de la géométrie magnéto-transverse. Apparemment dans la configuration magnéto-transverse, il n'y a pas de modification significative de l'angle caractéristique de l'arc en ciel lorsqu'on moyenne sur une distribution de sphères de taille différentes. Dans le plan de diffusion, le seul impact significatif d'un champ magnétique sur la lumière diffusée se situe dans deux régions d'une dizaine de degrés de large, au voisinage de la direction avant et de la direction arrière. Les pics d'intensité observés dans ces régions s'annulent au voisinage de  $\theta = 0^\circ$  et  $\theta = 180^\circ$ , conformément à la forme de la matrice  $T$  sous champ magnétique dans ces directions particulières.

En conclusion, cette étude montre qu'il y a un impact de la diffusion magnéto-transverse dans le régime de l'optique géométrique. Une comparaison quantitative avec des expériences dans cette géométrie serait utile pour valider le modèle de la diffusion de Mie sous champ magnétique dans le régime de l'optique géométrique. Cette comparaison pourra bientôt être menée à partir des expériences de la Ref. [MLM99] (à paraître) qui portent sur les effets d'un champ magnétique sur la gloire.

## Appendix A

# Optics of a Faraday-active Mie Sphere

JOSA A, **15**:1636-42, 1998

D. Lacoste, B. A. Van Tiggelen

*Laboratoire de Physique et Modélisation des Milieux Condensés, Maison des Magistères,*  
B.P. 166, 38042 Grenoble Cedex 09, France

G.L.J.A Rikken, and A. Sparenberg

*Grenoble High Magnetic Field Laboratory, Max-Planck Institut*  
für Festkörperforschung/C.N.R.S, B.P. 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France

### Abstract

We present an exact calculation for the scattering of light from a single sphere made of a Faraday-active material, into first order of the external magnetic field. When the size of the sphere is small compared to the wavelength the known T-matrix for a magneto-active Rayleigh scatterer is found. We address the issue whether or not there is a so called *Photonic Hall Effect* - a magneto-transverse anisotropy in light scattering - for one Mie scatterer. In the limit of geometrical optics, we compare

our results to the Faraday effect in a Fabry-Perot etalon.

## A.1 Introduction

Several reasons exist why one wishes to understand light scattering from a dielectric sphere made of magneto-active material. Single scattering is the building block for multiple scattering. Many experiments have been done with diffuse light in a magnetic field [1, 2, 3]. Though qualitatively very useful, it turns out that a theory for point-like scatterers in a magnetic field, as first developed by MacKintosh and John [4] and later refined by Van Tiggelen, Maynard and Nieuwenhuizen [5], does not always describe observations quantitatively, for the evident reason that experiments do not contain “small” scatterers. This paper addresses light scattering from one sphere of any size in a homogeneous magnetic field.

The model of Rayleigh scatterers has been successfully used to describe specific properties of multiple light scattering in magnetic fields such as coherent backscattering and the *Photonic Hall Effect*. In the following section we present the perturbation approach on which our work is based, which will allow us in section 3 to compute the T-matrix for this problem. With this tool, we will be able to answer in section 4 the issue concerning the *Photonic Hall Effect*.

## A.2 Perturbation theory

We consider the light scattered by one dielectric sphere made of a Faraday-active medium embedded in an isotropic medium with no magneto-optical properties, using a perturbative approach to first order in magnetic field.

In this paper we set  $c_0 = 1$ . In a magnetic field, the refractive index of the sphere is a tensor of rank two. It depends on the distance to the center of the sphere  $r$ , which is given a radius  $a$  via the Heaviside function  $\Theta(r - a)$ , that equals to 1 inside the sphere and 0 outside,

$$\varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r}) - \mathbf{I} = [(\varepsilon_0 - 1) \mathbf{I} + \varepsilon_F \Phi] \Theta(|\mathbf{r}| - a). \quad (\text{A.1})$$

In this expression,  $\varepsilon_0 = m^2$  is the value of the normal isotropic dielectric constant of the sphere of relative index of refraction  $m$  ( which can be complex ) and  $\varepsilon_F = 2mV_0B/\omega$  is a coupling parameter associated with the amplitude of the Faraday rotation (  $V_0$  being the Verdet constant and  $\omega$  the frequency ). We introduce the antisymmetric hermitian tensor  $\Phi_{ij} = i\epsilon_{ijk}\hat{B}_k$ . Except for  $\varepsilon_F$ , the Mie solution depends on the dimensionless size parameters  $x = ka$  with  $k = \omega/c_0$  and  $y = mx$ . In this paper, we restrict ourselves to non-absorbing media, so that  $m$  and  $\varepsilon_F$  are real-valued.

Noting that the Helmholtz equation is formally analogous to a Schrödinger equation with potential  $\mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) = [\mathbf{I} - \varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r})] \omega^2$  and energy  $\omega^2$ , the T-matrix is given by the following Born series [6]:

$$\mathbf{T}(\mathbf{B}, \mathbf{r}, \omega) = \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{G}_0 \cdot \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) + \dots \quad (\text{A.2})$$

Here  $\mathbf{G}_0(\omega, \mathbf{p}) = 1/(\omega^2 \mathbf{I} - p^2 \Delta_p)$  is the free Helmholtz Green's function and  $(\Delta_p)_{ij} = \delta_{ij} - p_i p_j / p^2$ . We will call  $\mathbf{T}^0$  the part of  $\mathbf{T}$  that is independent of the magnetic field and  $\mathbf{T}^1$  the part of the T-matrix linear in  $\mathbf{B}$ . It follows from Eq. (A.2) that:

$$\mathbf{T}^1 = -\varepsilon_F \omega^2 \left( \mathbf{I} + \mathbf{T}^{0+} \mathbf{G}_0^+ \right) \cdot \Theta \Phi \cdot \left( \mathbf{I} + \mathbf{G}_0^+ \cdot \mathbf{T}^{0+} \right). \quad (\text{A.3})$$

We need to introduce the unperturbed eigenfunctions  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}(\mathbf{r})$  of the conventional Mie problem. These eigenfunctions represent the electric field at the point  $\mathbf{r}$  for an incident plane wave  $|\sigma, \mathbf{k}\rangle$  along the direction  $\mathbf{k}$  with an helicity  $\sigma$ . This eigenfunction is "outgoing" for  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^+$  and "ingoing" for  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^-$  according to the definition of the outgoing and ingoing free Helmholtz Green's function:

$$|\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^{\pm}\rangle = \left( \mathbf{I} + \mathbf{G}_0^{\pm} \cdot \mathbf{T}^{0\pm} \right) |\sigma, \mathbf{k}\rangle.$$

For our free Helmholtz Green's function, this implies [6]:

$$\Psi_{\sigma, -\mathbf{k}}^{-*}(\mathbf{r}) = (-1)^{1+\sigma} \Psi_{-\sigma, \mathbf{k}}^+(\mathbf{r}). \quad (\text{A.4})$$

We denote by  $\mathbf{k}$  the incident direction and  $\mathbf{k}'$  the scattered direction. With these notations, it is possible to obtain from Eq.(A.3),

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^1 = -\varepsilon_F \omega^2 \langle \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- | \Theta \Phi | \Psi_{\sigma', \mathbf{k}'}^+ \rangle. \quad (\text{A.5})$$

This equation can also be obtained from standard first-order Rayleigh-Schrödinger perturbation theory [7].

Two important symmetry relations are found to be satisfied by our T-matrix. The first one is the parity and the second one is the reciprocity:

$$\mathbf{T}_{-\mathbf{k}-\sigma, -\mathbf{k}'-\sigma'}(\mathbf{B}) = \mathbf{T}_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}) \quad (\text{A.6})$$

$$\mathbf{T}_{-\mathbf{k}'\sigma', -\mathbf{k}\sigma}(-\mathbf{B}) = \mathbf{T}_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}) \quad (\text{A.7})$$

### A.3 T matrix for Mie scattering

In order to separate the radial and the angular contributions in Eq. (A.5), we expand the Mie eigenfunction  $\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^+$  in the basis of the vector spherical harmonics [6],

$$\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^+(\mathbf{r}) = \frac{2\pi}{\rho} i^{J+1} \mathbf{Y}_{JM}^{\lambda'}(\hat{\mathbf{r}}) f_{\lambda'\lambda}^J(r) \mathbf{Y}_{JM}^{\lambda*}(\hat{\mathbf{k}}) \cdot \chi_{\sigma}'. \quad (\text{A.8})$$

In this definition,  $\rho = kmr$ , the  $\chi'_\sigma$  are the eigenvectors of the spin operator in the circular basis associated with the direction  $\mathbf{k}$ , and implicit summation over the repeated indices  $J, M, \lambda$  and  $\lambda'$  has been assumed (the indices  $\lambda$  and  $\lambda'$  for the components of the field can take three values, one being longitudinal and two of them being perpendicular to the direction of propagation).

Because of the presence of the function  $\Theta$  in Eq. (A.5), we only have to consider the field inside the sphere, whose main features are contained in the radial function  $f_{\lambda'\lambda}^J(r)$ . This matrix  $f_{\lambda'\lambda}^J$  is known in terms of the transmission coefficients  $c_J$  and  $d_J$  of Ref. [8], and of the Ricatti-Bessel function  $u_J(\rho)$ . We found the following expression:

$$f^J(\rho) = -2 \begin{pmatrix} \frac{\overline{u'_J(\rho)c_J}}{u_J(\rho)c_J \sqrt{J(J+1)}/\rho} & 0 \\ 0 & \frac{0}{iu_J(\rho)d_J} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.9})$$

The three vectors  $\chi_\sigma$  - similar to the  $\chi'_\sigma$  but associated with the  $z$ -axis - are a convenient basis for this problem since they are the eigenvectors of the operator  $\Phi$  with eigenvalue  $-\sigma$ , provided we choose the  $z$ -axis along  $\mathbf{B}$ , which we will do in what follows. Eq. (A.5) is simplified by this choice and the angular integration leads eventually to:

$$\int \mathbf{Y}_{J_1 M_1}^{\lambda_1*}(\hat{\mathbf{r}}) \cdot \Phi \cdot \mathbf{Y}_{J_2 M_2}^{\lambda_2}(\hat{\mathbf{r}}) d\Omega_r = \delta_{J_1 J_2} \delta_{M_1 M_2} Q_{\lambda_1 \lambda_2}(J_1, M_1),$$

where  $\mathbf{Q}$  is the matrix

$$\mathbf{Q}(J, M) = -MB \begin{pmatrix} \frac{1}{J(J+1)} & \frac{1}{\sqrt{J(J+1)}} & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{J(J+1)}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{J(J+1)} \end{pmatrix}, \quad (\text{A.10})$$

and  $B$  being the absolute value of the applied magnetic field. The linear dependence on the magnetic quantum number  $M$  can be expected for an effect like the Faraday rotation, affecting left and right circularly polarized light in an opposite way similar to Zeeman splitting. The radial integration can be done using a method developed by Bott et al. [9].

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^1 = \frac{16\pi}{\omega} W \sum_{J, M} (-M) \left[ \mathcal{C}_J \mathbf{Y}_{J, M}^e(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J, M}^{e*}(\hat{\mathbf{k}}') + \mathcal{D}_J \mathbf{Y}_{J, M}^m(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J, M}^{m*}(\hat{\mathbf{k}}') \right], \quad (\text{A.11})$$

with the dimensionless parameter:

$$W = V_0 B \lambda,$$

and the coefficients:



$$\mathcal{C}_J = -\frac{2c_J^{2*}|u_J|^2y^3}{J(J+1)(y^2-y^{*2})} \left( \frac{A_J^*}{y^*} - \frac{A_J}{y} \right), \quad (\text{A.12})$$

$$\mathcal{D}_J = -\frac{2d_J^{2*}|u_J|^2y^3}{J(J+1)(y^2-y^{*2})} \left( \frac{A_J^*}{y} - \frac{A_J}{y^*} \right), \quad (\text{A.13})$$

with  $A_J(y) = u'_J(y)/u_J(y)$  and  $B$  the amplitude of the magnetic field directed along the unit vector  $\hat{\mathbf{B}}$ . Absorption in the sphere is still allowed. We will consider the limiting case of a perfect dielectric sphere with no absorption ( $\Im m(m) \rightarrow 0$ ). Using l'Hospital's rule in Eqs. (A.12) and (A.13), we obtain immediately for this case:

$$\mathcal{C}_J = \frac{-c_J^{2*}u_J^2y}{J(J+1)} \left( \frac{A_J}{y} - \frac{J(J+1)}{y^2} + 1 + A_J^2 \right), \quad (\text{A.14})$$

$$\mathcal{D}_J = \frac{-d_J^{2*}u_J^2y}{J(J+1)} \left( -\frac{A_J}{y} - \frac{J(J+1)}{y^2} + 1 + A_J^2 \right). \quad (\text{A.15})$$

### A.3.1 T-matrix without magnetic field

For future use, we need the on-shell T-matrix of the conventional Mie-problem [8]. It is given by a formula analogous to Eq. (A.11) where  $\mathcal{C}_J$  and  $\mathcal{D}_J$  are replaced by the Mie coefficients  $a_J$  and  $b_J$ , and with  $M = 1$ . Because of rotational invariance of the scatterer, it's clear that the final result only depends on the scattering angle  $\theta$  which is the angle between  $\mathbf{k}$  and  $\mathbf{k}'$  ( see Fig. A.1 ). Therefore, we get in the circular basis ( associated with the indices  $\sigma$  and  $\sigma'$  ):

$$T_{\sigma\sigma'}^0 = \frac{2\pi}{i\omega} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} (a_J^* + \sigma\sigma'b_J^*) [\pi_{J,1}(\cos\theta) + \sigma\sigma'\tau_{J,1}(\cos\theta)]. \quad (\text{A.16})$$

In this formula, the polynomials  $\pi_{J,M}$  and  $\tau_{J,M}$  are defined in terms of the Legendre polynomials  $P_J^M$  by [8]

$$\pi_{J,M}(\cos\theta) = \frac{M}{\sin\theta} P_J^M(\cos\theta), \quad \tau_{J,M}(\cos\theta) = \frac{d}{d\theta} P_J^M(\cos\theta). \quad (\text{A.17})$$

### A.3.2 $\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1$ when $\hat{\mathbf{k}} \neq \hat{\mathbf{k}}'$

It remains to express the vector spherical harmonics in Eq. (A.11) in terms of the natural angles of the problem in the presence of a magnetic field. The latter breaks rotational invariance. Because  $\mathbf{T}^1$  is linear in  $\hat{\mathbf{B}}$ , it can be constructed by considering three special cases for the direction of  $\hat{\mathbf{B}}$ . If  $\hat{\mathbf{k}} \neq \hat{\mathbf{k}}'$ , we can decompose the unit vector  $\hat{\mathbf{B}}$  in the non-orthogonal but complete basis of  $\hat{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\mathbf{k}}'$  and  $\hat{\mathbf{g}} = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'/|\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'|$ , and this results in:

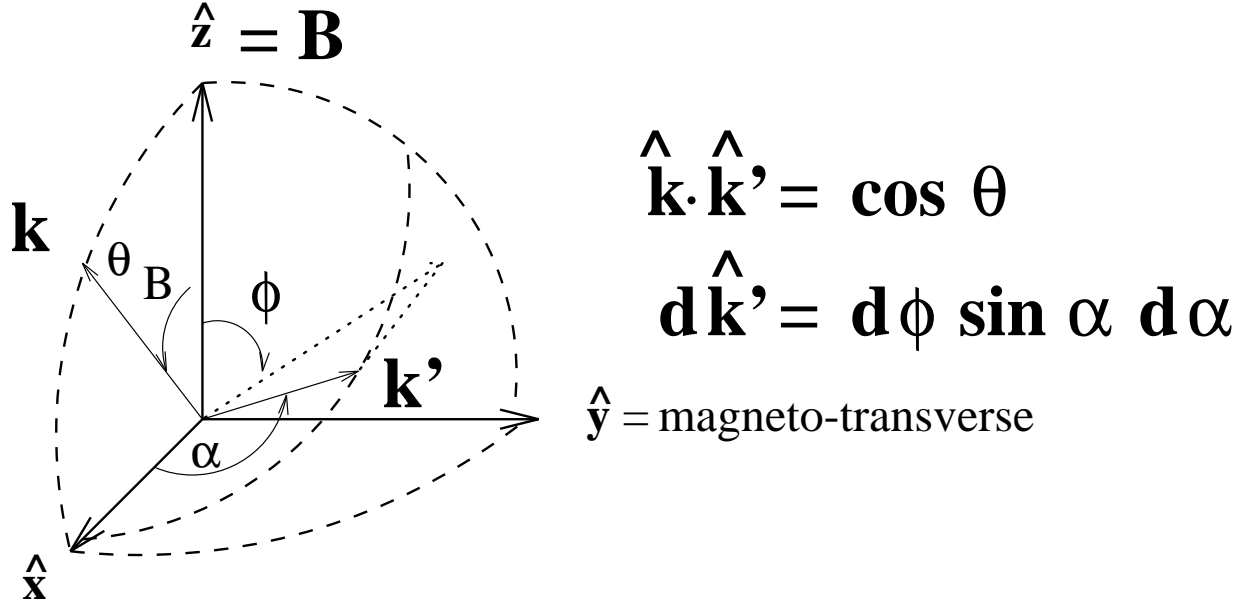


Figure A.1: Schematic view of the magneto-scattering geometry. Generally,  $\theta$  denotes the angle between incident and outgoing wave vectors;  $\phi$  is the azimuthal angle in the plane of the magnetic field and the  $y$ -axis. The latter is by construction the magneto-transverse direction defined as the direction perpendicular to both magnetic field and incident wave vector. The angle  $\alpha$  coincides with the angle  $\theta$  in the special but relevant case that the incident vector is normal to the magnetic field.

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1 = \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}})(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}'}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{T}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}'}^1 + \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}) - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}})^2 - 1} \mathbf{T}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}}^1 + (\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{g}}) \mathbf{T}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{g}}}^1, \quad (\text{A.18})$$

with

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}) = \frac{2W}{\omega} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} (-\sigma) (C_J + \sigma\sigma' \mathcal{D}_J) [\pi_{J,1}(\cos\theta) + \sigma\sigma' \tau_{J,1}(\cos\theta)], \quad (\text{A.19})$$

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}') = \frac{2W}{\omega} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} (-\sigma') (C_J + \sigma\sigma' \mathcal{D}_J) [\pi_{J,1}(\cos\theta) + \sigma\sigma' \tau_{J,1}(\cos\theta)], \quad (\text{A.20})$$

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}}) = \frac{4iW}{\omega} \sum_{\substack{J \geq 1 \\ J \geq M > 0}} \frac{2J+1}{J(J+1)} M \sin(M\theta) \frac{(J-M)!}{(J+M)!} (\sigma\sigma' C_J + \mathcal{D}_J) [\pi_{J,M}^2(0) + \sigma\sigma' \tau_{J,M}^2(0)]. \quad (\text{A.21})$$

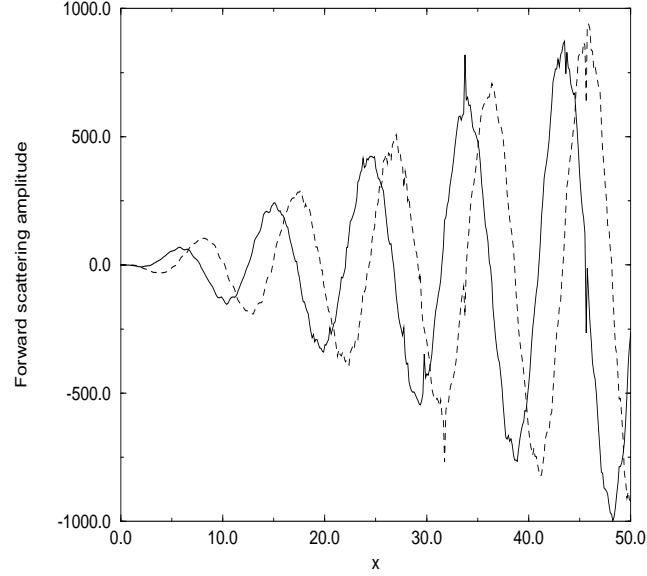


Figure A.2: The solid line is the real part and the dashed line the imaginary part of the magneto forward scattering matrix  $\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}}^1$  in the circular basis of polarization, plotted versus the size parameter  $x$  for an index of refraction of  $m = 1.33$  in units of  $W = V_0 B \lambda$ .

### A.3.3 Particular case for $\mathbf{T}^1$ for forward scattering

The treatment in (3.2) becomes degenerate when  $\hat{\mathbf{k}}$  and  $\hat{\mathbf{k}}'$  are parallel, *i.e.* in forward scattering. In this case,  $\hat{\mathbf{B}}$  can still be expressed in a basis made of  $\hat{\mathbf{k}}$  and of two vectors perpendicular to  $\hat{\mathbf{k}}$ . The contribution of these last two vectors must have the same form as in Eq. (A.21) for  $\theta = 0$ . Hence there is no such contribution and we find

$$T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}\sigma'}^1 = \delta_{\sigma\sigma'} (\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}) (-\sigma) \frac{2W}{\omega} \sum_{J \geq 1} (2J + 1) (C_J + D_J). \quad (\text{A.22})$$

In Fig. A.2 we plotted real and imaginary part of this expression in units of  $W$  as a function of the size parameter  $x$  for  $\sigma = -1$  and  $\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}$ . The forward-scattering amplitude has an important application in inhomogeneous media, namely as the complex average dielectric constant.

### A.3.4 Optical Theorem

We will check our formula on energy conservation as expressed by the Optical Theorem [6],

$$-\frac{\Im m(T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}\sigma})}{\omega} = \sum_{\sigma'} \int d\Omega_{\mathbf{k}'} \frac{|T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}|^2}{(4\pi)^2}. \quad (\text{A.23})$$

To first order in magnetic field, the r.h.s of this equation equals

$$\frac{1}{8\pi^2} \sum_{\sigma'} \int d\Omega_{\mathbf{k}'} \Re e(T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^0 T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^{1*}).$$

If we assume that  $\hat{\mathbf{B}} \parallel \hat{\mathbf{k}}$ , we can compute this using Eqs. (A.19), (A.16), and the following orthogonality relations for the polynomials  $\pi_{J,1}$  and  $\tau_{J,1}$  ( which we denote as  $\pi_J$  and  $\tau_J$  ) [6] :

$$\int d(\cos \theta) [\pi_J(\cos \theta)\tau_K(\cos \theta) + \tau_J(\cos \theta)\pi_K(\cos \theta)] = 0,$$

$$\int d(\cos \theta) [\pi_J(\cos \theta)\pi_K(\cos \theta) + \tau_J(\cos \theta)\tau_K(\cos \theta)] = \frac{2J^2(J+1)^2}{2J+1} \delta_{JK}. \quad (\text{A.24})$$

The l.h.s of Eq. (A.23), is obtained from Eq. (A.22). The Optical Theorem provides us a relation between Mie coefficients, which we can actually prove from their definitions:

$$\Re e(a_J^* c_J^2 \frac{2}{i}) = \Im m(c_J^2), \quad (\text{A.25})$$

and

$$\Re e(b_J^* d_J^2 \frac{2}{i}) = \Im m(d_J^2). \quad (\text{A.26})$$

## A.4 Magneto-transverse Scattering

From the knowledge of the matrix  $\mathbf{T}^1$ , we can compute how the magnetic field affects the differential scattering cross section summed over polarizations as a function of the scattering angle. Only the diagonal part of this matrix in a basis of linear polarization will affect the scattering cross section since we consider only terms to first order in magnetic field. Therefore only the third contribution of Eq. (A.18) plays a role, which means that the effect will be maximum when  $\hat{\mathbf{B}} \parallel \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'$  ( the typical Hall geometry ). Indeed symmetry implies that the magneto-scattering cross section should be the product of  $\det(\hat{\mathbf{B}}, \hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}')$  and of some function that entirely depends on the scattering angle  $\theta$ .

We choose to normalize this magneto scattering cross section by the total scattering cross section in the absence of magnetic field,

$$\frac{2 \sum_{\sigma\sigma'} \Re e(T_{\sigma\sigma'}^0 T_{\sigma\sigma'}^{1*})}{\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi d\cos \theta \sum_{\sigma\sigma'} |T_{\sigma\sigma'}^0|^2} = -\sin \phi F(\theta) \quad (\text{A.27})$$

The so called *Photonic Hall effect* (P.H.E) is a manifestation of a magnetically induced transverse current in the light transport which has similarities to the Hall effect known for the transport of electrons. In an experiment on the P.H.E, one measures the difference in scattered light from two

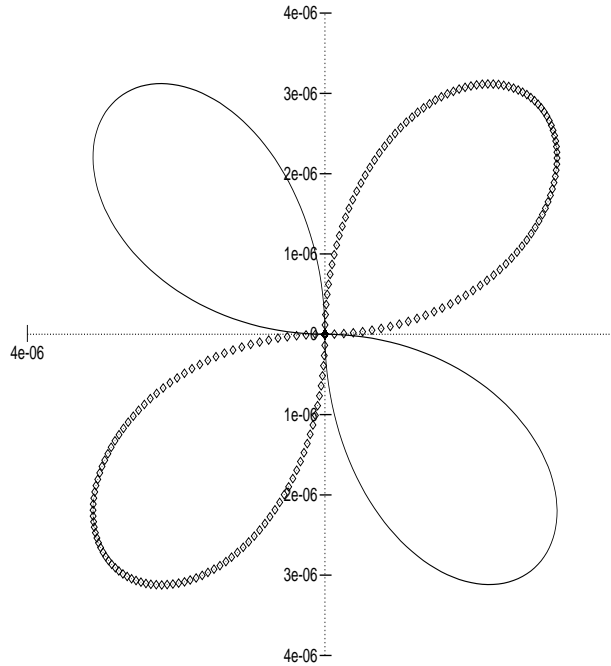


Figure A.3: Magneto-transverse scattering cross section  $F(\theta)$  for a Rayleigh scatterer with index of refraction  $m = 1.1$  and size parameter  $x = 0.1$ . The solid line is a positive correction and the points denote a negative correction. The curve has been normalized by the parameter  $W$ . No net magneto-transverse scattering is expected in this case because the projection onto the  $y$ -axis of these corrections cancel.

opposite directions both perpendicular to the incident direction of light and to the applied magnetic field [2]. The P.H.E is a manifestation of the anisotropy of light scattering due to a magnetic field in the regime of multiple light scattering.

Although experiments dealt with multiple scattering so far, it is interesting to see if a net magneto-transverse scattering persists for only one single scatterer. In Figs. A.3,A.4, the magnetic field is perpendicular to the plane of the figure, the incident light is along the  $x$ -axis. A typical measurement of the magneto-transverse scattered light is therefore associated with the projection of the curve onto the  $y$ -axis, which we define as the magneto-transverse direction.

## A.5 Magneto-transverse scattering as a function of the size parameter

Quantitatively, the transverse light current difference is associated with a summation of the magneto scattering cross section over outgoing wavevectors and normalized to the total transverse light current. A schematic view of the geometry is displayed on Fig. A.1. In our notation this is

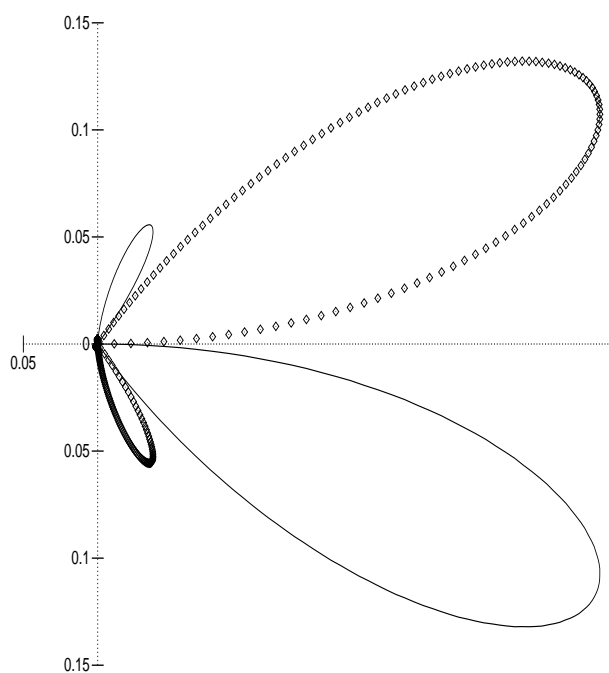


Figure A.4: Magneto-transverse scattering cross section  $F(\theta)$  for a Mie scatterer of size parameter  $x = 5$  and of index of refraction  $m = 1.1$ . The curve has been normalized by the parameter  $W$ . The solid line is for positive correction and the points denote a negative correction. In this case a net magneto-transverse scattering is expected because the projection onto the  $y$ -axis of these corrections do not cancel.

$$\eta \equiv \frac{I_{up}(B) - I_{down}(B)}{I_{up}(B=0) + I_{down}(B=0)} = \frac{2 \int_0^\pi d\phi \int_0^\pi d \cos \theta \sin \theta \sin \phi \sum_{\sigma\sigma'} \Re(T_{\sigma\sigma'}^0 T_{\sigma\sigma'}^{1*})}{\int_0^\pi d\phi \int_0^\pi d \cos \theta \sin \theta \sin \phi \sum_{\sigma\sigma'} |T_{\sigma\sigma'}^0|^2}. \quad (\text{A.28})$$

The factor  $\sin \theta \sin \phi$  represents a projection onto the magneto transverse direction  $\hat{\mathbf{B}} \times \hat{\mathbf{k}}$  which is necessary since we are interested in the magneto-transverse light flux. In Fig. A.5 we plotted this contribution as a function of the size parameter  $x$  for an index of refraction  $m = 1.0946$  ( the value in Ref. [2] ). Note the change of sign beyond  $x = 1.7$ , for which we do not have any simple explanation so far. In the range of small size parameter,  $\eta$  exhibits an  $x^5$  dependence.

### A.5.1 Rayleigh scatterers

For Rayleigh scatterers, the formulas (A.18) to (A.22) simplify dramatically because one only needs to consider the first partial wave of  $J = 1$  and the first terms in a development in powers of  $y$  ( since  $y \ll 1$  ). From Eqs. (A.14) and (A.15), we find :  $\mathcal{C}_1 = -2y^3/m^2(2+m^2)^2$  and  $\mathcal{D}_1 = -y^5/45m^4$  so that we can keep only  $\mathcal{C}_1$  and drop  $\mathcal{D}_1$  as a first approximation. Adding all contributions of Eqs. (A.18) and (A.16), and changing from circular basis to linear basis of polarization we find

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = \begin{pmatrix} t_0 \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' + it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') & -it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}} \\ it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' & t_0 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.29})$$

with  $t_0 = -6i\pi a_1^*/\omega$  the conventional Rayleigh T-matrix and  $t_1 = -6\mathcal{C}_1 W/\omega$ . This form agrees with the Rayleigh point-like scatterer model discussed in Ref. [5]. We note that Eqs. (A.19) and (A.20) give off-diagonal contributions in Eq. (A.29) whereas Eq. (A.21) gives a diagonal contribution. This is a general feature that persists also beyond the regime of Rayleigh scatterers.

For a Rayleigh scatterer the magneto cross section of Fig. A.3 exhibits symmetry, since the positive and negative lobes of the curve are of the same size but of opposite sign. Hence no net magneto-transverse scattering exists for one Rayleigh scatterer. In fact Eq. (A.29) provides the following expression for  $F(\theta)$ :

$$F_{\text{Rayleigh}}(\theta) = \frac{3mx^3}{4\pi^2(m^2+2)^2} \cos \theta \sin \theta. \quad (\text{A.30})$$

As the size of the sphere gets bigger, the magneto corrections become asymmetric, as seen in Figure A.4. When the size is further increased, new lobes start to appear in the magnetic cross section corresponding to higher spherical harmonics. These lobes do seem to have a net magneto-transverse scattering.

One single Rayleigh scatterer does not induce a net magneto-transverse flux. It is instructive to consider the next simplest case, namely two Rayleigh scatterers positioned at  $\mathbf{r}_1$  and  $\mathbf{r}_2$ . If

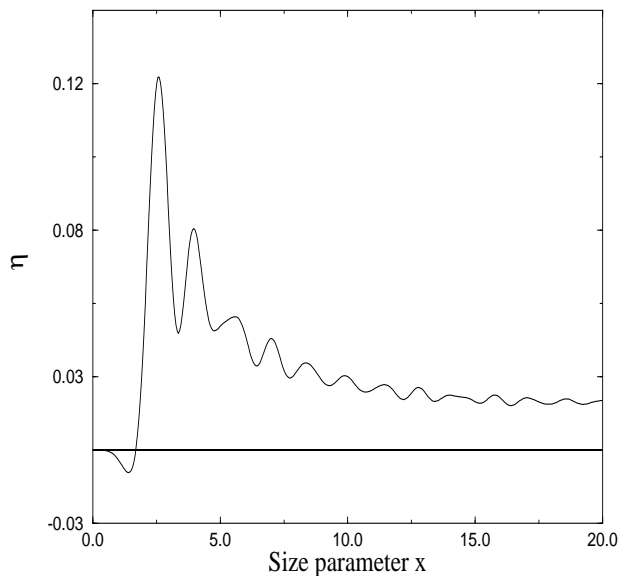


Figure A.5: Normalized magneto-transverse light current  $\eta$  as a function of the size parameter  $x$  for an index of refraction of  $m = 1.0946$ . The curve is displayed in units of  $W$ .

their mutual separation well exceeds the wavelength, it is easy to show that the collective cross-section simply equals the one-particle cross-section multiplied by an interference factor  $S(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = |\exp(i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}_1) + \exp(i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}_2)|^2$ . This interference factor changes the angular profile of the scattering cross-section and makes sure that a net magneto-transverse flux remains. The estimate for two Rayleigh particles with an incident wave vector along the inter-particle axis, is found to be:

$$\eta \sim \frac{V_0 B}{k} x^3 \left( \frac{\sin(kr_{12})}{kr_{12}} \right)^2 \quad \text{if } kr_{12} \gg 1 \quad (\text{A.31})$$

This simple model suggests that the “Photonic Hall Effect” is in fact a phenomenon generated by interference of different light paths. In Fig. A.6 we show how differential cross-sections of two particles change in a magnetic field. More scattering is now directed into the forward direction and as a result the cancellation of the net magneto-transverse flux in Fig. A.3 is removed. One Mie sphere mimics qualitatively this simple model and should on the basis of the principle outlined above exhibit a magneto-transverse current. The model also suggests that the regime of Rayleigh-Gans scattering [8] - the Born approximation for one sphere but contrary to Rayleigh scattering still allowing interferences of different scattering events - should exhibit a net magneto-transverse flux. Indeed, explicit calculations in this regime confirm this statement, with  $\eta \sim x^5$ , independent of the index of refraction  $m$  of the sphere.



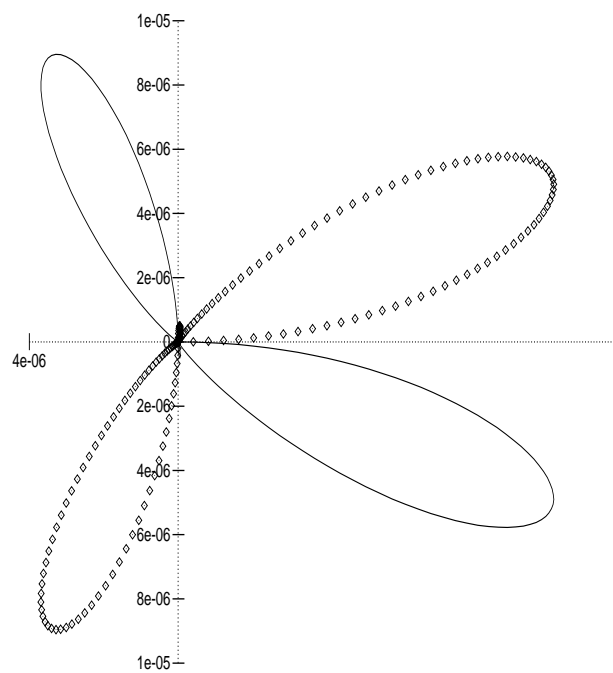


Figure A.6: Magneto-cross section for two Rayleigh scatterers each of size parameter  $ka = 0.1$  and separated by a distance corresponding to a size parameter of  $kr_{12} = 5$ . In this case the enhanced forward scattering leads also to a net magneto-transverse current along the vertical axis.

### A.5.2 Geometrical Optics

In the regime of large size parameters, the Mie solution can be obtained from Ray Optics. Apart from Fraunhofer diffraction ( persisting for any finite geometry ), the Mie solution for a ray with central impact should be equivalent to the one for a slab geometry. In our magnetic-optic approach, this means to study Faraday rotation in a Fabry-Perot cavity. This model is of special interest because the Fabry-Perot cavity is known to enhance the Faraday rotation [10, 11], *i.e* the rotation is additive in the total traversed path length as opposed to the case of rotary power.

A ray with central impact is characterized by  $J = 1$  in Mie theory. We assume that  $x \gg 1$  and  $y \gg 1$  which allows some simplification in the expression of the Mie coefficients. We find for the Mie coefficients  $c_1$  and  $d_1$  the following behavior:

$$c_1 = \frac{2 e^{i(x-y)}}{(m+1)(1+re^{-2iy})},$$

$$d_1 = \frac{2 e^{i(x-y)}}{(m+1)(1-re^{-2iy})}. \quad (\text{A.32})$$

In this formula,  $r = (m-1)/(m+1)$  is the complex Fresnel reflection coefficient. Putting this expression into Eqs. (A.14), (A.15) and (A.22), we can compute the exact behavior of the T-matrix in the forward direction. We note  $\mathbf{T}_{scatt}^0$  the part of  $\mathbf{T}^0$  due to scattering only, which is obtained from Eq. (A.16) by replacing the Mie coefficients  $a_J$  and  $b_J$  by  $a_J - \frac{1}{2}$  and  $b_J - \frac{1}{2}$ , since the terms  $\frac{1}{2}$  are associated with the Fraunhofer diffraction, which does not exist for the slab geometry.

Since for a small perturbation, we have

$$\mathbf{T} = \mathbf{T}_{scatt}^0 + \mathbf{T}^1 \simeq \mathbf{T}_{scatt}^0 e^{\mathbf{T}^1/\mathbf{T}_{scatt}^0}, \quad (\text{A.33})$$

we see that the change in phase  $\delta\phi$  due to the magnetic field is in fact related to the imaginary part of  $\mathbf{T}^1/\mathbf{T}_{scatt}^0$ . This change in phase can be interpreted as the Faraday effect.

From Eq. (A.32), we find in the basis of circular polarization:

$$\Im m \left( \frac{T^1}{T_{scatt}^0} \right)_{\sigma\sigma'} = \delta\phi (-\sigma) \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}} \delta_{\sigma\sigma'}, \quad (\text{A.34})$$

with

$$\delta\phi = 2aV_0B \frac{1+R}{1-R} \frac{1}{[1+\mathcal{M}\sin(2y)^2]}. \quad (\text{A.35})$$

with  $\mathcal{M} = 4R/(1-R)^2$  and the reflectivity  $R = r^2$ . We note that the quantity  $(-\sigma)\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}$  is conserved for a given ray, which generates the accumulation of the Faraday rotation. The function  $\delta\phi$  tends to  $2aV_0B$  as  $R \rightarrow 0$ , since it represents the normal Faraday rotation in an isotropic medium of length  $2a$ , as it

should be for our geometry. When  $R$  is large, two new factors come into play:  $(1 + R)/(1 - R)$  which is the maximum gain factor of the Faraday rotation due the multiple interference in the Fabry-Perot cavity and

$$\mathcal{A}(y) = \frac{1}{1 + \mathcal{M} \sin(2y)^2}$$

which is an Airy function of width  $4/\sqrt{\mathcal{M}}$ . The finesse of the cavity is then  $\mathcal{F} = \pi\sqrt{\mathcal{M}}/2$ . At resonance, the Faraday rotation is maximally amplified - assuming no losses - relative to single-path Faraday rotation [10, 11]. We stress that one needs  $\delta\phi \ll 1$ , in order for Eq. (A.33) to apply. The Faraday rotation has the effect of splitting each transmission peak in the Fabry-Perot cavity into two peaks of smaller amplitude both associated with a different state of helicity.

The amplification of the Faraday rotation is a consequence of the amplified path length of the light. In other words, the Faraday rotation measures the time of interaction of the light with the magnetic field [12]. This time is found to be the *dwel time*  $\tau$  of the light in the cavity for this 1D problem . The change in phase follows the simple relation:

$$\delta\phi = V_0 B \frac{\tau c_0}{m} \tag{A.36}$$

where  $c_0/m$  is recognized as the speed of light in the sphere.

The *dwel time* of the light in the cavity varies between a maximum value of

$$\tau_{dwell}^{max} = (1 + m^2)a/c_0,$$

and a minimum value of

$$\tau_{dwell}^{min} = 4m^2/(1 + m^2) a/c_0.$$

These typical oscillations are visible in the plot of the change of phase  $\delta\phi$  of Fig. A.7.

## A.6 Summary and Outlook

In this paper we addressed the Faraday effect inside a dielectric sphere. We have shown that this theory is consistent with former results concerning the predictions of the light scattered by Rayleigh scatterers in a magnetic field. It is possible to get from this perturbative theory quantitative predictions concerning the *Photonic Hall Effect* for one single Mie sphere, such as the scattering cross section, the dependence on the size parameter or on the index of refraction.

We will start experiments addressing single Mie scattering in a magnetic field. A second challenge is to implement our Mie solution into a multiple scattering theory.

We wish to thank Y. Castin for very stimulating and valuable discussions.

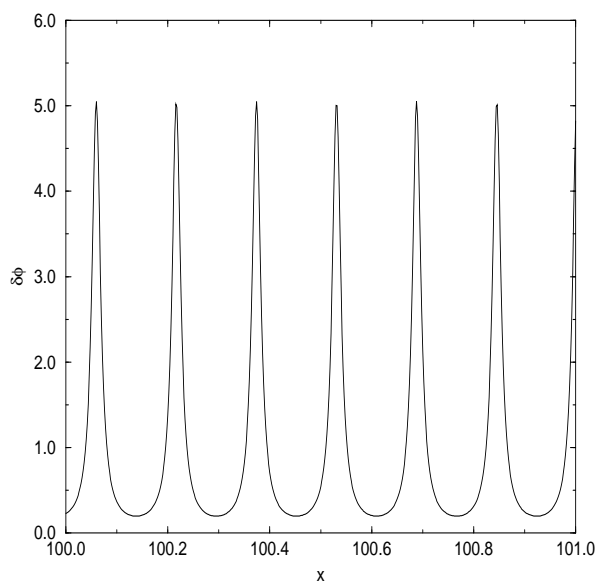


Figure A.7: Magnetically induced change of phase  $\delta\phi$  - similar to Fabry-Perot modes of a cavity - as a function of size parameter  $x$  for the partial wave of  $J = 1$  - “central impact” -. The curve is for  $m = 10$ , and has been normalized by the value  $2aV_0B$ .

# Bibliography

- [1] F. A. Erbacher, R. Lenke, and G. Maret, "Multiple Light Scattering in Magneto-optically active media," *Europhys. Lett.*, 21(5):551–556, 1993.
- [2] G. L. J. A. Rikken and B. A. Van Tiggelen, "Observation of magnetically induced transverse diffusion of light," *Nature*, 381:54–55, 1996.
- [3] A. Sparenberg, G. L. J. A. Rikken, and B. A. Van Tiggelen, "Observation of Photonic Magneto-resistance," *Phys. Rev. Lett.*, 79(4):757-760, 1997.
- [4] F. C. MacKintosh and S. John, "Coherent backscattering of light in the presence of time-reversal-noninvariant and parity-non conserving media," *Phys. Rev. B*, 37(4):1884–1897, 1988.
- [5] B. A. Van Tiggelen, R. Maynard, and T. M. Nieuwenhuizen, "Theory for multiple light scattering from Rayleigh scatterers in magnetic fields," *Phys. Rev. E*, 53(3):2881–2908, 1996.
- [6] R. G. Newton, *Scattering Theory of Waves and Particles*. Springer Verlag, New York, 1982.
- [7] L. Landau and E. Lifchitz, *Quantum Mechanics*. Mir, Moscow, 1967.
- [8] H. C. Van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles*. Dover, New York, 1980.
- [9] A. Bott and W. Zdunkowski, "Electromagnetic energy within dielectric spheres," *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(8):1361–1365, 1987.
- [10] H. Y. Ling, "Theoretical investigation of transmission through a Faraday-active Fabry-Perot étalon," *J. Opt. Soc. Am. A*, 11:754–758, 1994.
- [11] R. Rosenberg, C.B. Rubinstein, and D.R. Herriott, "Resonant Optical Faraday Rotator," *Appl. Opt.*, 3:1079–1083, 1964.
- [12] V. Gasparian, M. Ortuno, J. Ruiz, and E. Cuevas, "Faraday Rotation and Complex-Valued Traversal Time for Classical Light Waves," *Phys. Rev. Lett.*, 75(12), 1995.

## Appendix B

# Stokes parameters for light scattering from a Faraday-active sphere

Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, **63**:305-19, 1999

D. Lacoste and B. A. Van Tiggelen

*Laboratoire de Physique et Modélisation des Milieux Condensés, Maison des Magistères, B.P. 166,  
38042 Grenoble Cedex 9, France*

### Abstract

We present an exact calculation for the scattering of light from a single sphere made of Faraday-active material, to first order in the external magnetic field. We use a recent expression for the T-matrix of a Mie scatterer in a magnetic field to compute the Stokes parameters in single scattering that describe flux and polarization of the scattered light.

## B.1 Introduction

Several reasons exist why one wishes to understand light scattering from a dielectric sphere made of magneto-active material. Single scattering is the building block for multiple scattering. Recently, many experiments such as those reported by Erbacher *et al.* [1] and Rikken *et al.* [2] have been done with diffuse light in a magnetic field. It turns out that the theory using point-like scatterers in a magnetic field, as first developed by MacKintosh and John [3], does not always enable a quantitative analysis, for the evident reason that experiments do not contain “small” scatterers. This paper addresses light scattering from a sphere of any size in a homogeneous magnetic field.

The model of Rayleigh scatterers was used successfully to describe specific properties of multiple light scattering in magnetic fields, such as for instance Coherent Backscattering, *Photonic Hall Effect (PHE)* and *Photonic Magneto-resistance (PMR)*. The first study of one gyrotropic sphere, due to Ford and Werner [4], was applied to the scattering of semiconducting spheres by Dixon and Furdyna [5]. For the case of magneto-active particles, for which the change in the dielectric constant induced by the magnetic field is small, a perturbational approach is in fact sufficient. Kuzmin [6] showed that the problem of scattering by a weakly anisotropic particle of any type of anisotropy can be solved to first order in the perturbation. Using a T-matrix formalism, Lacoste *et al.* [7] developed independently a perturbational approach for the specific case of magneto-optical anisotropy. This was successfully applied to compute the diffusion coefficient for magneto-transverse light diffusion [8]. Using the T-matrix for a Mie scatterer in a magnetic field we have obtained, we discuss the consequences for the Stokes parameters [9] that describe the polarization of the scattered light.

## B.2 Perturbation theory

In this paper we set  $c_0 = 1$ . In a magnetic field  $\mathbf{B}$ , the refractive index is a tensor of rank two. For the standard Mie problem, its value at position  $\mathbf{r}$  depends on the distance to the center of the sphere  $|\mathbf{r}|$ , which has a radius  $a$  via the Heaviside function  $\Theta(|\mathbf{r}| - a)$ , that equals 1 inside the sphere and 0 outside,

$$\varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r}) - \mathbf{I} = [(\varepsilon_0 - 1) \mathbf{I} + \varepsilon_F \hat{\Phi}] \Theta(|\mathbf{r}| - a). \quad (\text{B.1})$$

In this expression,  $\mathbf{I}$  is the identity tensor,  $\varepsilon_0 = m^2$  is the value of the normal isotropic dielectric constant of the sphere of relative index of refraction  $m$  (which is allowed to be complex-valued) and  $\varepsilon_F = 2mV_0B/\omega$  is a dimensionless coupling parameter associated with the amplitude of the Faraday effect ( $V_0$  being the Verdet constant,  $B$  the amplitude of the magnetic field, and  $\omega$  the frequency). We introduced the antisymmetric hermitian tensor  $\hat{\Phi}_{ij} = i\epsilon_{ijk} \hat{B}_k$  (the hat above vectors notes normalized vectors). The Mie solution depends on the dimensionless size parameters  $x = \omega a$  and  $y = mx$ . In this

paper we restrict ourselves to non-absorbing media so that  $m$  and  $\varepsilon_F$  are real-valued. Since  $\varepsilon_F \approx 10^{-4}$  in most experiments, a perturbational approach is valid.

Upon noting that the Helmholtz equation is formally analogous to a Schrödinger equation with potential  $\mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) = [\mathbf{I} - \varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r})] \omega^2$  and energy  $\omega^2$ , the T-operator is given by the following Born series,

$$\mathbf{T}(\mathbf{B}, \mathbf{r}, \omega) = \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{G}_0(\omega, \mathbf{p}) \cdot \mathbf{V}(\mathbf{r}, \omega) + \dots \quad (\text{B.2})$$

Here  $\mathbf{G}_0(\omega, \mathbf{p}) = 1/(\omega^2 \mathbf{I} - p^2 \Delta_{\mathbf{p}})$  is the free Helmholtz Green's operator in gaussian rationalized units for pure dielectric particles, and  $\mathbf{p} = -i\nabla$  is the momentum operator. The tensor of rank two  $(\Delta_p)_{ij} = \delta_{ij} - p_i p_j / p^2$  projects upon the space transverse to the direction of  $\mathbf{p}$ . The T-matrix is defined as,

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'} = \langle \mathbf{k}, \sigma | \mathbf{T} | \mathbf{k}', \sigma' \rangle, \quad (\text{B.3})$$

where  $|\mathbf{k}, \sigma \rangle$  (respectively  $|\mathbf{k}', \sigma' \rangle$ ) represents an incident (respectively emergent) plane wave with direction  $\mathbf{k}$  and state of helicity  $\sigma$  (respectively  $\mathbf{k}'$  and  $\sigma'$ ). We will call  $\mathbf{T}^0$  the part of  $\mathbf{T}$  that is independent of the magnetic field and  $\mathbf{T}^1$  the part of the T-matrix linear in  $\mathbf{B}$ . We have found the following result [7],

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}^1 = \varepsilon_F \omega^2 \langle \Psi_{\mathbf{k}, \sigma}^- | \Theta \Phi | \Psi_{\mathbf{k}', \sigma'}^+ \rangle, \quad (\text{B.4})$$

where the  $\Psi_{\mathbf{k}, \sigma}^{\pm}(\mathbf{r})$  are the unperturbed eigenfunctions of the conventional Mie problem. This eigenfunction represents the electric field at the point  $\mathbf{r}$  for an incident plane wave  $|\mathbf{k}, \sigma \rangle$ . This eigenfunction is “outgoing” for  $\Psi_{\mathbf{k}, \sigma}^+$  and “ingoing” for  $\Psi_{\mathbf{k}, \sigma}^-$ . Eq. (B.4) resembles the perturbation formula for the Zeeman shift in terms of the atomic eigenfunctions, although here it provides a complex-valued amplitude in terms of *continuum* eigenfunctions, rather than a real-valued energy shift in terms of bound states.

### B.3 T matrix for Mie scattering

In order to separate radial and an angular contribution in Eq. (B.4), we used a well-known expansion of the Mie eigenfunction  $\Psi_{\mathbf{k}, \sigma}^+$  in the basis of vector spherical harmonics [10]. We choose the quantification axis  $z$  along the magnetic field. With this choice, the operator  $\mathbf{S}_z$ , the  $z$ -component of a spin one operator, can be associated with the tensor  $-\Phi$ . The eigenfunctions of the operator  $\mathbf{S}_z$  form a convenient basis for the problem. The expansion of Eq. (B.4) in vector spherical harmonics leads to a summation over quantum numbers  $J, J', M$  and  $M'$ . The Wigner-Eckart theorem applied to the vector operator  $\mathbf{S}$  gives the selection rules for this case  $J = J'$  and  $M = M'$ .



The radial integration can be done using a method developed by Bott *et al.* [11], which gives,

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^1 = \frac{16\pi}{\omega} W \sum_{J,M} (-M) \left[ \mathcal{C}_J \mathbf{Y}_{J,M}^e(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J,M}^{e*}(\hat{\mathbf{k}}') + \mathcal{D}_J \mathbf{Y}_{J,M}^m(\hat{\mathbf{k}}) \mathbf{Y}_{J,M}^{m*}(\hat{\mathbf{k}}') \right], \quad (\text{B.5})$$

with the dimensionless parameter:

$$W = V_0 B \lambda,$$

$\lambda$  is the wavelength in the medium. The meaning of the indices  $e, m$  is explained in the Appendix. In the limiting case of a perfect dielectric sphere with no absorption ( $\Im m(m) \rightarrow 0$ ), the coefficients are given by,

$$\mathcal{C}_J = \frac{-c_J^{2*} u_J^2 y}{J(J+1)} \left( \frac{A_J}{y} - \frac{J(J+1)}{y^2} + 1 + A_J^2 \right), \quad (\text{B.6})$$

$$\mathcal{D}_J = \frac{-d_J^{2*} u_J^2 y}{J(J+1)} \left( -\frac{A_J}{y} - \frac{J(J+1)}{y^2} + 1 + A_J^2 \right), \quad (\text{B.7})$$

with  $A_J(y) = u_J'(y)/u_J(y)$ ,  $u_J(y)$  the Ricatti-Bessel function, and  $c_J$  and  $d_J$  the Mie amplitude coefficients of the internal field [9].

Two important symmetry relations must be obeyed by our T-matrix. The first one is parity symmetry and the second one reciprocity. These relations can be established generally when the hamiltonian of a given system has the required symmetries (*cf.* Eq. (15.53) and Eq.(15.59a) P454 of Ref. ([10])). We give in the Appendix a less general derivation of these relations for our specific problem:

$$T_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}), \quad (\text{B.8})$$

$$T_{-\mathbf{k}'-\sigma', -\mathbf{k}-\sigma}(-\mathbf{B}) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}). \quad (\text{B.9})$$

We emphasize that  $\sigma(-\mathbf{k}) = -\sigma(\mathbf{k})$ , i.e.  $\sigma$  indicates in fact helicity and *not* circular polarization. The helicity is the eigenvalue of the operator  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{k}$ .

### B.3.1 The amplitude matrix

The amplitude matrix  $\mathbf{A}$  relates incident and scattered field with respect to an arbitrary plane of reference. A common choice is the plane that contains the incident and the scattered wave vector, and which is for this reason called the scattering plane. We will call the linear base the base made of one vector in this plane and one vector perpendicular to it. In this basis, the amplitude matrix sufficiently

far  $\omega r \gg 1$ , is simply defined from the T-matrix by,

$$\mathbf{A}_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = \frac{-1}{4\pi r} \mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^* = \frac{e^{i\phi}}{i\omega r} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.10})$$

$\phi$  is a phase factor that depends on the relative phase of the scattered wave with respect to the incident wave and which is defined in Ref. ([9]). The complex conjugation in Eq. (B.10) is simply due to a different sign convention in Newton [10]. When no magnetic field is applied, the T-matrix of the conventional Mie-problem is given by a formula analogous to Eq. (B.5) where  $\mathcal{C}_J$  and  $\mathcal{D}_J$  have been replaced by the Mie coefficients  $a_J$  and  $b_J$ , and with  $M = 1$ . Because of rotational invariance of the scatterer, the final result only depends on  $\cos\theta$ , the scalar product of  $\mathbf{k}$  and  $\mathbf{k}'$ ,  $\theta$  is the scattering angle. Therefore we get in the circular basis (associated with the helicities  $\sigma$  and  $\sigma'$ ):

$$T_{\sigma\sigma'}^0 = \frac{2\pi}{i\omega} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} (a_J^* + \sigma\sigma' b_J^*) [\pi_{J,1}(\cos\theta) + \sigma\sigma' \tau_{J,1}(\cos\theta)]. \quad (\text{B.11})$$

Alternatively the T-matrix may be expanded on the basis of the Pauli matrices

$$\mathbf{T}^0 = \frac{2\pi}{i\omega} [(S_1^* + S_2^*)\mathbf{I} + (S_1^* - S_2^*)\sigma_x]. \quad (\text{B.12})$$

In Eq. (B.11), the polynomials  $\pi_{J,M}$  and  $\tau_{J,M}$  are defined in terms of the Legendre polynomials  $P_J^M$  by [9],

$$\pi_{J,M}(\theta) = \frac{M}{\sin\theta} P_J^M(\cos\theta), \quad \tau_{J,M}(\theta) = \frac{d}{d\theta} P_J^M(\cos\theta). \quad (\text{B.13})$$

For  $M = 1$ ,  $\pi_{J,1}$  and  $\tau_{J,1}$  are polynomials of  $\cos\theta$  of order  $J-1$  and  $J$  respectively but not in general for any value of  $M$ . When written in the linear basis of polarization, Eq. (B.11) implies that a Mie scatterer has  $S_3 = S_4 = 0$  as imposed by the rotational symmetry. For the backward direction  $\theta = \pi$ , the reciprocity symmetry implies that  $S_3 + S_4 = 0$  for an arbitrary particle (possibly non-spherical) [9]. We will see that these two properties do not hold anymore when a magnetic field is present.

### B.3.2 General case for $\mathbf{T}^1$ when $\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' \neq 0$

It remains to express the vector spherical harmonics in Eq. (B.5), as a function of the natural angles of the problem. In Fig. B.1, we give a schematic view of the geometry. In the presence of a magnetic field, the rotational invariance is broken because  $\mathbf{B}$  is fixed in space. Because our theory treats  $\mathbf{T}^1$  linear in  $\hat{\mathbf{B}}$ ,  $\mathbf{T}^1$  can be constructed by considering only three special cases for the direction of  $\hat{\mathbf{B}}$ . If  $\hat{\mathbf{k}}$  and  $\hat{\mathbf{k}}'$  are not collinear, we can decompose the unit vector  $\hat{\mathbf{B}}$  in the non-orthogonal but complete basis of  $\hat{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\mathbf{k}}'$  and  $\hat{\mathbf{g}} = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' / |\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'|$ . This results in,

$$\begin{aligned}
\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1 &= \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}})(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}'}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{T}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}'}^1 \\
&+ \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{T}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}}^1 \\
&+ (\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{g}}) \mathbf{T}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{g}}}^1,
\end{aligned} \tag{B.14}$$

The cases where  $\hat{\mathbf{B}}$  is either along  $\hat{\mathbf{k}}$  or  $\hat{\mathbf{k}}'$  turn out to take the form,

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}) = \frac{\pi}{\omega} [R_1(\cos\theta)\sigma + R_2(\cos\theta)\sigma'], \tag{B.15}$$

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}') = \frac{\pi}{\omega} [R_1(\cos\theta)\sigma' + R_2(\cos\theta)\sigma], \tag{B.16}$$

with

$$R_1(\cos\theta) = -\frac{2W}{\pi} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} [\mathcal{C}_J \pi_{J,1}(\cos\theta) + \mathcal{D}_J \tau_{J,1}(\cos\theta)] \tag{B.17}$$

$$R_2(\cos\theta) = -\frac{2W}{\pi} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} [\mathcal{D}_J \pi_{J,1}(\cos\theta) + \mathcal{C}_J \tau_{J,1}(\cos\theta)] \tag{B.18}$$

In Ref. [7] we gave an expression for  $\mathbf{T}_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}})$  involving a double summation over the partial wave number  $J$  and the magnetic quantum number  $M$ . It is actually possible to do the summation over  $M$  explicitly, thus simplifying considerably the numerical evaluation. Indeed, if one expresses  $\mathbf{T}^0$  with respect to a  $z$ -axis perpendicular to the scattering plane for a given partial wave  $J$ , one ends up with the following relation between the polynomials  $\pi_{J,M}$  and  $\tau_{J,M}$ ,

$$\pi_{J,1}(\cos\theta) = 2 \sum_{J \geq M \geq 1} \left[ \frac{(J-M)!}{(J+M)!} \tau_{J,M}(0)^2 \cos(M\theta) \right] + \tau_{J,0}(0)^2 \tag{B.19}$$

$$\tau_{J,1}(\cos\theta) = 2 \sum_{J \geq M \geq 1} \left[ \frac{(J-M)!}{(J+M)!} \pi_{J,M}(0)^2 \cos(M\theta) \right] + \pi_{J,0}(0)^2 \tag{B.20}$$

Upon performing the derivatives of these relations with respect to  $\theta$  and comparing to the expression for  $\mathbf{T}_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}})$  we find,

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}}) = \frac{\pi}{\omega} (Q_1(\theta) + \sigma\sigma' Q_2(\theta)) \tag{B.21}$$

with

$$Q_l(\theta) = -i \frac{d}{d\theta} R_l(\cos \theta) = i \sin \theta \frac{d}{d \cos \theta} R_l(\cos \theta), \quad l = 1, 2. \quad (\text{B.22})$$

We are convinced that a rigorous group symmetry argument exists that relates the derivative of  $T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}})$  with respect to  $\theta$  to  $T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}})$ .

### B.3.3 Particular case for $\mathbf{T}^1$ when $\hat{\mathbf{k}} = \hat{\mathbf{k}}'$ and $\hat{\mathbf{k}} = -\hat{\mathbf{k}}'$

The treatment in section (3.2) becomes degenerate when  $\hat{\mathbf{k}}$  and  $\hat{\mathbf{k}}'$  are collinear, *i.e.* in forward or backward direction. In these cases,  $\hat{\mathbf{B}}$  can still be expressed on a basis made of  $\hat{\mathbf{k}}$  and of two vectors perpendicular to  $\hat{\mathbf{k}}$ . The contribution of these last two vectors has the same form as in  $\mathbf{T}_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}})$  for  $\theta = 0$  or  $\theta = \pi$ , which vanishes. An alternative derivation consists to take the limit  $\theta \rightarrow 0$  so that  $R_1 = R_2$  or  $\theta \rightarrow \pi$  so that  $R_1 = -R_2$  in Eqs. (B.15-B.18). This yields,

$$R_1(1) = R_2(1) = -\frac{W}{\pi} \sum_{J \geq 1} (2J+1) (\mathcal{C}_J + \mathcal{D}_J) \quad (\text{B.23})$$

and

$$R_1(-1) = -R_2(-1) = -\frac{W}{\pi} \sum_{J \geq 1} (-1)^{J+1} (2J+1) (\mathcal{C}_J - \mathcal{D}_J) \quad (\text{B.24})$$

This means,

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}}^1 = \Phi \frac{2\pi}{\omega} R_1(1), \quad (\text{B.25})$$

and

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k},-\mathbf{k}}^1 = \Phi \frac{2\pi}{\omega} R_1(-1). \quad (\text{B.26})$$

Both T-matrices contain the tensor  $\Phi$  introduced in Eq. (B.1) for the dielectric constant of the medium of the sphere. For these two cases, an operator can be associated with these T-matrices, which is  $\mathbf{S}_z$  since we have chosen  $\mathbf{B}$  along the  $z$ -axis. For  $\mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}}^1$ , the presence of the tensor  $\Phi$  is to be expected since we know that the forward scattering amplitude can be interpreted as an effective refractive index in a transmission experiment [9]. In the framework of an effective medium theory, the real part of Eq. (B.25) gives the Faraday effect whereas the imaginary part gives the magneto-dichroism (*i.e.* different absorption for different circular polarization) of an ensemble of Faraday-active scatterers.

## B.4 Magneto-transverse Scattering

From  $\mathbf{T}^1$  matrix, we can compute how the magnetic field affects the differential scattering cross section (summed over polarization) as a function of the scattering angle. Its form can be guessed

before doing any calculation at all, since it must satisfy mirror-symmetry and the reciprocity relation  $d\sigma/d\Omega(\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}', \mathbf{B}) = d\sigma/d\Omega(-\mathbf{k}' \rightarrow -\mathbf{k}, -\mathbf{B})$ . A magneto-cross-section proportional to  $\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}$  or to  $\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}'$  is parity forbidden since  $\mathbf{B}$  is a pseudo-vector. Together with the rotational symmetry of the sphere the only possibility is:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}', \mathbf{B}) = F_0(\cos\theta) + \det(\hat{\mathbf{B}}, \hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') F_1(\cos\theta) \quad (\text{B.27})$$

where  $\det(\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}) = \mathbf{A} \cdot (\mathbf{B} \times \mathbf{C})$  is the scalar determinant constructed from these three vectors. The second term in Eq. (B.27) will be called the magneto-cross-section.

The magneto-cross section implies that there may be more photons scattered ‘‘upwards’’ than ‘‘downwards’’, both directions being defined with respect to the magneto-transverse vector  $\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{B}}$  perpendicular to both incident wave vector and magnetic field. An easy calculation yields,

$$\Delta\sigma = \sigma_{up} - \sigma_{down} = \pi \int_0^\pi d\theta \sin^3\theta F_1(\cos\theta) \quad (\text{B.28})$$

A non-zero value for  $\Delta\sigma$  will be referred to as a *Photon Hall Effect* (PHE).

For Rayleigh scatterers, the above theory simplifies dramatically because one only needs to consider the first partial wave of  $J = 1$  and the first terms in a development in powers of  $y$  ( since  $y \ll 1$  ). From Eqs. (B.6) and (B.7) we find that,  $\mathcal{C}_1 = -2y^3/m^2(2 + m^2)^2$  and  $\mathcal{D}_1 = -y^5/45m^4$ . We can keep only  $\mathcal{C}_1$  and drop  $\mathcal{D}_1$  as a first approximation. Adding all the contributions of Eqs. (B.14) and (B.11), we find, in the linear base

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} = \begin{pmatrix} t_0 \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' + it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') & -it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}} \\ it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' & t_0 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.29})$$

where  $t_0 = -6i\pi a_1^*/\omega$  and  $t_1 = -6C_1 W/\omega$ . This form agrees with the Rayleigh point-like scatterer discussed in Ref. [12].

A magnetic field breaks the rotational symmetry of the particle. If it is contained in the scattering plane, Eq. (B.29) shows that we must have a non-zero value for  $S_3$  and  $S_4$  as opposed to the case when no magnetic field is applied. This property still holds for a Mie scatterer, the difference being only present in the angular dependence of the elements of the amplitude matrix. A magnetic field also violates the standard reciprocity principle as can be seen on Eq. (B.9). This implies that  $S_3 + S_4$  is non zero for the backward direction  $\theta = \pi$ . The relation  $S_3 + S_4 = 0$  for the backward direction was derived by Van Hulst, but does not apply when a magnetic field is present. In fact the magnetic field imposes that  $S_3 = S_4$  at backscattering. This is readily confirmed by the Rayleigh particle, for which Eq. (B.29) implies that  $S_3 + S_4 = 2S_3 = -2it_1 \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}$  for  $\theta = \pi$ .

Eq. (B.29) yields  $F_1(\cos\theta) \sim VB \cos\theta/k$  so that Eq. (B.28) gives  $\Delta\sigma = 0$ . The magneto scattering cross section is shown in Fig. A.3 for a Rayleigh scatterer and in Fig. A.4 of appendix A for a Mie

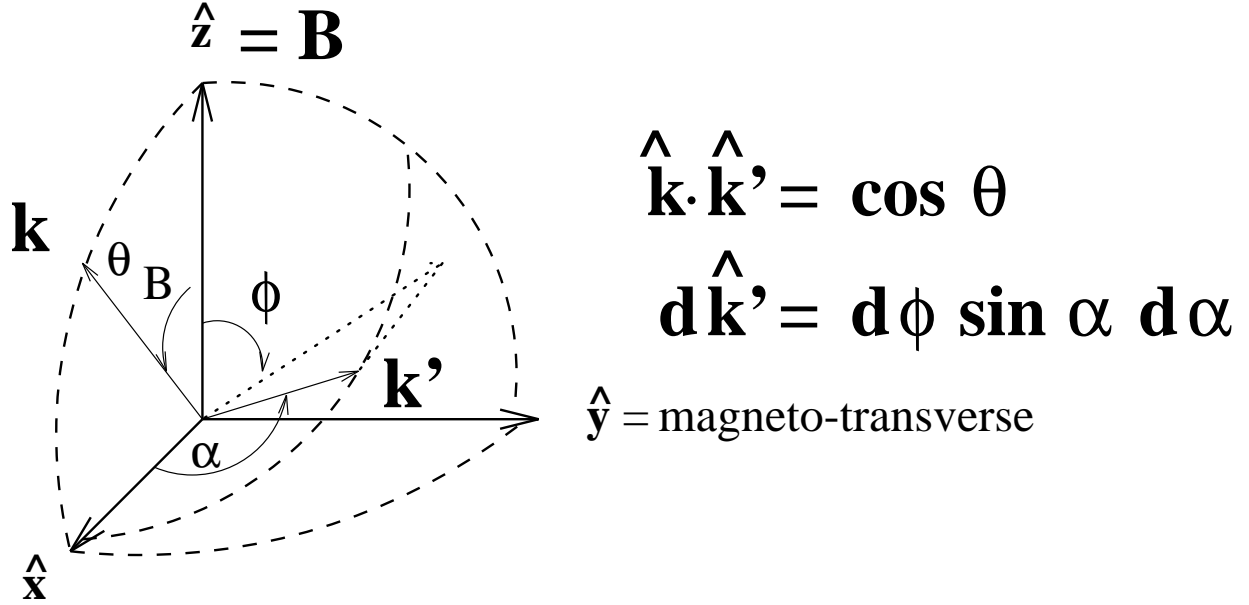


Figure B.1: Schematic view of the magneto-scattering geometry. Generally,  $\theta$  denotes the angle between incident and outgoing wave vectors,  $\phi$  is the azimuthal angle in the plane of the magnetic field and the  $y$ -axis. This latter is by construction the magneto-transverse direction defined as the direction perpendicular to both the magnetic field and the incident wave vector. Angle  $\alpha$  coincides with angle  $\theta$  in the special but relevant case that the incident vector is normal to the magnetic field.

scatterer for which a non zero value of  $\Delta\sigma$  is seen to survive.

## B.5 Stokes parameters

To describe the flux and polarization, a 4 dimensional Stokes vector  $(I, Q, U, V)$  can be introduced [9]. The general relation between scattered Stokes vector and incoming Stokes vector is,

$$(I, Q, U, V)_{out} = \mathbf{F} (I, Q, U, V)_{in} \quad (\text{B.30})$$

For a sphere and without a magnetic field, the F-matrix is well known and equals [9],

$$F_{ij}^0 = \frac{1}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} F_{11} & F_{12} & 0 & 0 \\ F_{12} & F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} & F_{34} \\ 0 & 0 & -F_{34} & F_{33} \end{pmatrix} \quad (\text{B.31})$$

where

$$\begin{cases} F_{11} = (|S_1|^2 + |S_2|^2)/2 \\ F_{12} = (-|S_1|^2 + |S_2|^2)/2 \\ F_{33} = (S_2^* S_1 + S_2 S_1^*)/2 \\ F_{34} = i(-S_2^* S_1 + S_2 S_1^*)/2 \end{cases} \quad (\text{B.32})$$

Among these four parameters only three are independent since  $F_{11}^2 = F_{12}^2 + F_{33}^2 + F_{34}^2$ . The presence of the many zeros in Eq. (B.31) is a consequence of the fact that the amplitude matrix in Eq. (B.10) is diagonal for one Mie scatterer. It is in fact much more general. The form of Eq. (B.31) still holds for an ensemble of randomly oriented particles with an internal plane of symmetry (such as spheroids for instance) [13]. In that case, the averaging is essential to get the many zeros in Eq. (B.31). It also holds for a single anisotropic particle in the Rayleigh-Gans approximation [14],[15].

For the Mie case, the anisotropy has two consequences: the F-elements that were zero for an isotropic particle may take finite values, and they may depend on the azimuthal angle  $\phi$ . When a magnetic field is applied perpendicular to the scattering plane, corrections will appear in the diagonal terms of the amplitude matrix. We will use the vector  $\mathbf{H}$  to denote them. When a magnetic field is applied in the scattering plane, the amplitude matrix becomes off diagonal, which will fill up the zeros in  $F^0$ . We will use the vector  $\mathbf{G}$  to denote these new terms.

If we call  $F^1$  the first-order magnetic correction to the F-matrix one finds,

$$F_{ij}^1 = \frac{1}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} H_{11} & H_{12} & \Re G_3 & -\Im G_3 \\ H_{12} & H_{11} & \Re G_4 & -\Im G_4 \\ \Re G_1 & \Re G_2 & H_{33} & H_{34} \\ \Im G_1 & \Im G_2 & -H_{34} & H_{33} \end{pmatrix}. \quad (\text{B.33})$$

When  $\hat{\mathbf{B}}$  is directed along  $\hat{\mathbf{k}}$ , the G terms are given by,

$$G_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}} \begin{cases} G_1 = (S_1^* R_1^* - S_2 R_2)/2 \\ G_2 = (-S_1^* R_1^* - S_2 R_2)/2 \\ G_3 = (-S_1^* R_2^* + S_2 R_1)/2 \\ G_4 = (S_1^* R_2^* + S_2 R_1)/2 \end{cases} \quad (\text{B.34})$$

The general case (forward and backward directions excluded) has

$$\mathbf{G} = \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}})(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}'}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{G}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}'} + \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{G}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}} \quad (\text{B.35})$$

and  $G_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}'}$  is obtained from  $G_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{k}}}$  by exchanging  $R_1$  and  $R_2$  in Eq. (B.34) like in Eqs. (B.15,B.16). Finally, we need,

$$\mathbf{H} = (\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{g}}) \mathbf{H}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{g}}}, \quad (\text{B.36})$$

with

$$\mathbf{H}_{\hat{\mathbf{B}}=\hat{\mathbf{g}}} \begin{cases} H_{11} = -\Im m(S_1 Q_1 + S_2 Q_2)/2 \\ H_{12} = -\Im m(-S_1 Q_1 + S_2 Q_2)/2 \\ H_{33} = \Im m(-S_1 Q_2 - S_2 Q_1)/2 \\ H_{34} = \Re e(S_1 Q_2 - S_2 Q_1)/2 \end{cases} \quad (\text{B.37})$$

The F-matrix defined in Eq. (B.30) can contain at most 7 independent constants, resulting from the 8 constants in the amplitude matrix minus an irrelevant phase. Our  $F^1$ -matrix has 12 coefficients (4 for the H vector and 8 for the G vector). Therefore 5 relations must exist between these 12 coefficients. These relations have not been explicitly derived.

We can write all the expressions above in a very compact way using the basis of the Pauli matrices [16]

$$\begin{aligned} F_{ij}^0 &= \frac{1}{2} \text{Tr}(A^{0\dagger} \sigma_i A^0 \sigma_j) \\ F_{ij}^1 &= \frac{1}{2} \text{Tr}(A^{1\dagger} \sigma_i A^0 \sigma_j) + \frac{1}{2} \text{Tr}(A^{0\dagger} \sigma_i A^1 \sigma_j), \end{aligned} \quad (\text{B.38})$$

where  $\text{Tr}$  is the trace of the matrix, the superscript  $\dagger$  denotes Hermite conjugation,  $\sigma_i$  are Pauli matrices and  $A^0$ ,  $A^1$  are zeroth and first order correction in the amplitude matrix defined as the T-matrix from Eq. (B.10).

If the incident light is unpolarized, the Stokes vector for the scattered light is simply equal to the first column of the F-matrix in Eq. (B.33). For instance when  $\hat{\mathbf{B}}$  is directed along  $\hat{\mathbf{k}}$ , the magnetic field will only affect  $U = F_{31}^1$  and the circular polarization  $V = F_{41}^1$  which would be zero when no magnetic field is applied. We choose to normalize the matrix elements  $F_{ij}^1$  that quantify the deviation of the polarization from the isotropic case by the flux  $F_{11}^0$  without magnetic field. In Fig. B.2 we plotted these normalized matrix elements for the cases where  $\hat{\mathbf{B}}$  is directed along  $\hat{\mathbf{k}}$  and where  $\hat{\mathbf{B}}$  is directed along  $\hat{\mathbf{g}}$ . We observe that off-diagonal F-elements such as  $F_{12}^1$  and  $F_{41}^1$ , are generally more important in the angle region of  $140 - 170^\circ$ , and increase with the size parameter. In this region, these Stokes parameters seem to be very sensitive to anisotropy as also found from studies of Stokes parameters of quartz particles [16].

The F-matrix of spherical scatterers in Eq. (B.31) contains 8 zeros among its 16 elements. This property persists for an ensemble of randomly oriented non-spherical particles having a plane of symmetry because of the averaging over all the orientations. In a magnetic field even spherical scatterers can have a non zero value for these 8 elements. Furthermore we have good reasons to believe that our theory made for spheres in a magnetic theory should also apply to an ensemble of randomly oriented non-spherical particles in a magnetic field, since the magnetic field direction is the same for all the particles.

We have chosen the size distribution [17] and optical parameters of a reported experiment [18], when no magnetic field is present, but in which all the matrix elements of  $F^0$  were measured and found



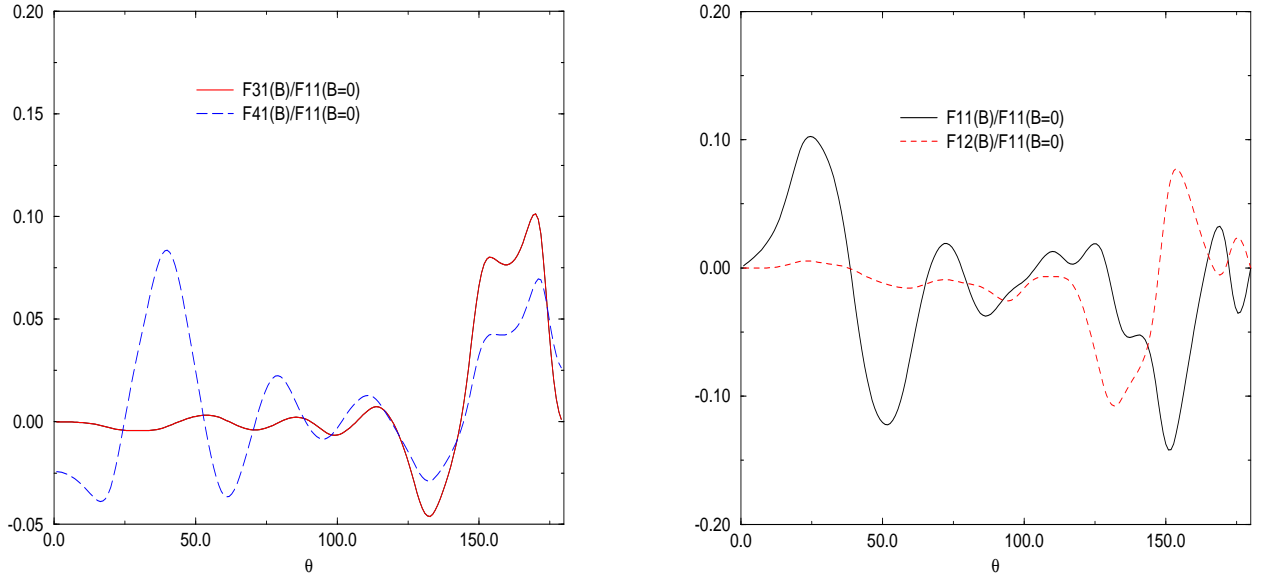


Figure B.2: Scattering matrix elements  $F_{31}^1(B)/F_{11}^1(B=0)$  and  $F_{41}^1(B)/F_{11}^1(B=0)$  of an ensemble of water droplets as a function of scattering angle for  $\hat{\mathbf{B}}$  directed along  $\hat{\mathbf{k}}$  (top), and  $F_{11}^1(B)/F_{11}^1(B=0)$  and  $F_{12}^1(B)/F_{11}^1(B=0)$  for  $\hat{\mathbf{B}}$  directed along  $\hat{\mathbf{g}}$  (bottom). The refractive index is 1.332, a lognormal size distribution has been used with  $r_{eff} = 0.75\mu m$  and  $\sigma_{eff} = 0.45$  and  $\lambda = 632.8nm$ . The curve has been displayed for  $W = 0.1$ .

to be in good agreement with the theoretical evaluation from Eq. (B.31). For water, the parameter  $W \approx 2.4 \cdot 10^{-6}$  for a magnetic field of 1T. From Fig. B.2, we can therefore expect a modification of the order of  $2.4 \cdot 10^{-6}$  in the region near backward scattering for  $F_{31}^1(B)/F_{11}^1(B=0)$  when  $\hat{\mathbf{B}}$  is directed along  $\hat{\mathbf{k}}$ . The magneto-optical effects on polarization are very small. Nevertheless they may become significant in multiple scattering, which usually tends to depolarize completely the light.

### B.5.1 Forward and backward directions

When no magnetic field is present, the situations for  $\theta = 0$  or  $\theta = \pi$  are similar because the scattering plane is undefined in both cases. We also have  $H = 0$  by Eq. (B.36). The remaining contribution is therefore only determined by the G-vector, and the final result reads for  $\theta = 0$ ,

$$F_{\theta=0} = \frac{\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -\Im m(z) \\ 0 & 0 & \Re e(z) & 0 \\ 0 & -\Re e(z) & 0 & 0 \\ -\Im m(z) & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{B.39})$$

with  $z = S_1(1)R_1(1)$ . For  $\theta = \pi$ ,

$$F_{\theta=\pi} = \frac{\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}}{k^2 r^2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \Im m(z') \\ 0 & 0 & -\Re e(z') & 0 \\ 0 & -\Re e(z') & 0 & 0 \\ -\Im m(z') & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{B.40})$$

with  $z' = S_1(-1)R_1(-1)$ .

The functions  $R_1(1)$  and  $R_1(-1)$  defined in Eqs. (B.17,B.18) are very similar to  $S_1(1)$  and  $S_1(-1)$ . Both F-matrices contain only two real-valued independent parameters as do the corresponding T matrices. For unpolarized incident light only the Stokes parameter  $V = F_{41}^1(B)$  of these matrices is non-zero. In Fig. B.2, all the curves are zero for  $\theta = 0$  and  $\theta = \pi$  except the one of  $F_{41}^1(B)/F_{11}^1(B=0)$ . In other words, unpolarized incident light will produce partially circularly polarized light (the degree of circular polarization being precisely  $F_{41}^1(B)/F_{11}^0(B=0)$ ) for  $\hat{\mathbf{B}}$  directed along  $\hat{\mathbf{k}}$  in the forward and backward directions. This can be understood from the fact that the effective index that one can define from Eq. (B.25) suffers from magneto-dichroism (*i.e* different absorption for different circular polarization).

The modified reciprocity relation in the presence of a magnetic field was expressed for the amplitude matrix in Eq. (B.9). For the F-matrix it implies exactly the different signs in the matrix elements of Eq. (B.40) with respect to Eq. (B.39).

## B.6 Summary and Outlook

We have shown that the theory developed for magneto-active Mie scatterers so far is consistent with former results concerning predictions of the light scattering by Rayleigh scatterers in a magnetic field. Our perturbative theory provides quantitative predictions concerning the *Photonic Hall Effect* for one single Mie sphere, such as the scattering cross section, the dependence on the size parameter or on the index of refraction.

Using the magneto-correction to the T-matrix we have derived the Stokes parameters for the light scattered from a single sphere in a magnetic field. We have distinguished two main cases. Either the magnetic field is perpendicular to the scattering plane and there will be corrections to the usual non-zero Stokes parameters, or when the magnetic field is in the scattering plane, the corrections fill up the F-matrix elements which were previously zero. We have discussed the particular cases of forward and backward scattering.

We hope that these results will be useful in comparing them to the situation in multiple scattering. Even after many scattering events, we suspect that the presence of a magnetic field prevents the Stokes parameters  $U, V$  and  $Q$  to be zero. In single scattering, their order of magnitude is controlled by the parameter  $W = V_0 B \lambda$ . In multiple scattering however, this parameter must be replaced by  $f V_0 B l^*$ , where  $f$  is the volume fraction of the scatterers and  $l^*$  the transport mean free path, and  $f l^* \gg 1$ . We expect to find more significant effects in this case.

We thank Geert Rikken and Joop Hovenier for useful comments. We thank the referees for their work, and in particular for mentioning the work of Kuz'min *et al.*

## B.7 Derivation of reciprocity and parity relations

In the indices for polarization in the T-matrix, the state of helicity  $\sigma$  is to be referred to the direction of the wave vector immediately close to it. In Eq. (B.8,B.9),  $T_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}$  for instance really means  $T_{-\mathbf{k}\sigma(-\mathbf{k}), -\mathbf{k}'\sigma'(-\mathbf{k}' )}$ . To derive these equations, we start from Eq. (B.5) in which we change both incoming and outgoing wave vectors into their opposite:

$$\mathbf{T}_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}^1 = \sum_{J, M, \lambda} (-M) \left[ \alpha_{J, \lambda} \mathbf{Y}_{J, M}^\lambda(-\hat{\mathbf{k}}) \cdot \chi_{\sigma(-\mathbf{k})}(-\mathbf{k}) \mathbf{Y}_{J, M}^{\lambda*}(-\hat{\mathbf{k}}') \cdot \chi_{\sigma'(-\mathbf{k}')}(-\mathbf{k}') \right], \quad (\text{B.41})$$

where  $\alpha_{J, \lambda}$  is a well known coefficient,  $\chi_{\sigma(\mathbf{k})}$  is the eigenfunction of the operator  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{k}$  with eigenvalue  $\sigma(\mathbf{k})$  the helicity.  $\mathbf{S}$  is a spin one operator acting on three-dimensional vectors. The summation is to be performed for  $\lambda = e, m$  only, which are associated with the two transverse components of the given vector spherical harmonics.  $\mathbf{Y}_{J, M}^\lambda(\mathbf{k})$  are well-defined linear combinations of  $\mathbf{Y}_{J, J}^M(\mathbf{k}), \mathbf{Y}_{J, J-1}^M(\mathbf{k})$  and  $\mathbf{Y}_{J, J+1}^M(\mathbf{k})$  that obeys [10]

$$\mathbf{Y}_{JM}^\lambda(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{k} = 0, \quad \lambda = e, m.$$

We now use the relations,

$$\begin{aligned} \mathbf{Y}_{J,M}^e(-\hat{\mathbf{k}}) &= (-1)^{J+1} \mathbf{Y}_{J,M}^e(\hat{\mathbf{k}}) \\ \mathbf{Y}_{J,M}^m(-\hat{\mathbf{k}}) &= (-1)^J \mathbf{Y}_{J,M}^m(\hat{\mathbf{k}}) \end{aligned} \quad . \quad (\text{B.42})$$

The eigenfunctions  $\chi_\sigma(\mathbf{k})$  also change under parity since

$$\chi_\sigma(-\mathbf{k})(-\mathbf{k}) = -\chi_\sigma(\mathbf{k})(\mathbf{k}).$$

Because of this additional minus sign, the parities of the vector spherical harmonics are in fact,

$$\begin{aligned} \mathbf{P}\mathbf{Y}_{J,M}^e &= (-1)^J \mathbf{Y}_{J,M}^e \\ \mathbf{P}\mathbf{Y}_{J,M}^m &= (-1)^{J+1} \mathbf{Y}_{J,M}^m \end{aligned} \quad . \quad (\text{B.43})$$

The parity symmetry relation of Eq. (B.8) follows from the application of these relations into Eq. (B.41). The proof of the reciprocity symmetry relation of Eq. (B.9) is similar, where now the following relations are necessary

$$\mathbf{Y}_{J,M}^{\lambda*} = (-1)^{J+M} \mathbf{Y}_{J,-M}^\lambda \quad (\text{B.44})$$

for  $\lambda = e, o, m$  and

$$\chi_{\sigma(\mathbf{k})}^*(\mathbf{k}) = \chi_{-\sigma(\mathbf{k})}(\mathbf{k}).$$

The change of sign of  $\mathbf{B}$  is provided by the  $M$  factor in Eq. (B.41) as surmised.

# Bibliography

- [1] Erbacher, F., Lenke, R. and Maret, G., Multiple light scattering in magneto-optically active media, *Europhys. Lett.*, 1993, **21**, 551-556.
- [2] Rikken, G.L.J.A. and Van Tiggelen, B.A., Observation of magnetically induced transverse diffusion of light, *Nature*, 1996, **381**, 54-55.
- [3] MacKintosh, F.C. and John, S., Coherent backscattering of light in the presence of time-reversal-noninvariant and parity-nonconserving media, *Phys. Rev. B*, 1988, **37**, 1884-1897.
- [4] Ford, G.W. and Werner, S.A., Scattering and absorption of electromagnetic waves by a gyrotropic sphere, *Phys. Rev. B*, 1978, **18**, 6752-6769.
- [5] Dixon, J.R. and Furdyna, J. K., Gyrotropic sphere: selected examples of resonance spectra, *Phys. Rev. B*, 1978, **18**, 6770-6788.
- [6] Kuzmin, V. N. and Babenko, V. A., Light scattering by a weakly anisotropic spherical particle, *Opt. Spectrosc.*, 1981, **50**, 269-273.
- [7] Lacoste, D., Van Tiggelen, B.A., Rikken, G.L.J.A. and Sparenberg, A., Optics of a Faraday-active Mie sphere, *J. Opt. Soc. A*, 1998, **15**, 1636-1642.
- [8] Lacoste, D. and Van Tiggelen, B.A., Transport mean free path for magneto-transverse light diffusion, *Europhys. Lett.*, **45**(6):721-25, 1999.
- [9] Van de Hulst, H.C., *Light Scattering by Small Particles* (Dover, New York, 1980).
- [10] Newton, R.G, *Scattering Theory of Waves and Particles* (Springer Verlag, New York, 1982).
- [11] Bott, A. and Zdunkowski, W., Electromagnetic energy within dielectric spheres, *J. Opt. Soc. Am. A*, 1987, **4**, 1361-1365.
- [12] Van Tiggelen, B.A., Maynard, R. and Nieuwenhuizen, T., Theory for multiple light scattering from Rayleigh scatterers in magnetic fields, *Phys. Rev. E*, 1996, **53**, 2881-2908.

- [13] Bohren, C. F., Huffman, D. R., *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley, New York, 1983).
- [14] Holoubek, J., Small-angle light scattering from anisotropic sphere in the Rayleigh-Gans Debye approximation: the Mueller matrix formalism, *Applied Optics*, 1991, **30**, 4987-4992.
- [15] Kuz'min, V. N., Prishivalko, A. P., Light transmission by a dispersive filter filled with anisotropic particles, *Journal-of-Applied-Spectroscopy*, 1984, **41**, 934-938 Translated from: *Zhurnal-Prikladnoi-Spektroskopii.*, 1984, **41**, 268-272.
- [16] Kuz'min, V. N. and Babenko, V. A., Laws of the behavior of the angular characteristics of light scattering by crystalline particles in the weak-anisotropy approximation, *Journal-of-Applied-Spectroscopy*, 1982, **36**, 238-241 Translated from: *Zhurnal-Prikladnoi-Spektroskopii.*, 1982, **36**, 305-309.
- [17] Hansen, J. E. and Travis, L. D., Light scattering in planetary atmospheres, *Space Science Review*, 1974, **16**, 527-609.
- [18] Foeke, K., Stammes, P. and Hovenier, J.W, Experimental determination of scattering matrices of water droplets and quartz particles, *Applied Optics*, 1991, **30**, 4872-4881.

## Annexe C

# Conventions pour la représentation du champ électromagnétique

### C.1 Harmoniques sphériques vectorielles

Les  $\mathbf{Y}_{JM}^\lambda$  font intervenir les combinaisons linéaires suivantes d'harmoniques sphériques vectorielles  $\mathbf{Y}_{Jl}^M$ .

$$\begin{aligned}\mathbf{Y}_{JM}^e &= \left(\frac{J+1}{2J+1}\right)^{1/2} \mathbf{Y}_{JJ-1}^M - \left(\frac{J}{2J+1}\right)^{1/2} \mathbf{Y}_{JJ+1}^M \\ \mathbf{Y}_{JM}^m &= \mathbf{Y}_{JJ}^M \\ \mathbf{Y}_{JM}^o &= \left(\frac{J}{2J+1}\right)^{1/2} \mathbf{Y}_{JJ-1}^M - \left(\frac{J+1}{2J+1}\right)^{1/2} \mathbf{Y}_{JJ+1}^M,\end{aligned}\tag{C.1}$$

Par construction, les harmoniques sphériques vectorielles  $\mathbf{Y}_{Jl}^M$  sont les fonctions propres des opérateurs  $\mathbf{J}^2$ ,  $\mathbf{L}^2$  et  $J_z$ . Pour se ramener aux fonctions propres de  $L_z$ ,  $S_z$  et  $\mathbf{L}^2$ , notés  $\mathbf{Y}_{JlM}$  on a recours aux coefficients de Clebsch-Gordan (ou ici avec des coefficients 3j) pour  $J = l - 1, l, l + 1$ , ce qui donne

$$\mathbf{Y}_{Jl}^M = \sum_{\mu} \begin{pmatrix} l & 1 & J \\ M - \mu & \mu & M \end{pmatrix} \mathbf{Y}_{lM-\mu\mu}$$

Enfin les  $\mathbf{Y}_{JlM}$  peuvent s'écrire comme le produit d'une harmonique sphérique scalaire  $Y_l^m$ , fonction propre de l'opérateur moment angulaire  $\mathbf{L}$  par une fonction propre  $\chi_\sigma$  de l'opérateur de spin  $\mathbf{S}$ .

$$\mathbf{Y}_{JlM}(\hat{\mathbf{r}}) = Y_l^m(\hat{\mathbf{r}})\chi_\sigma.$$

Concernant la parité de ces vecteurs, on note que les  $\mathbf{Y}_{JM}^e$  ont la parité  $(-1)^{J+1}$  qui est celle du champ électrique du rayonnement électrique multipolaire ou celle du champ magnétique du rayonnement

magnétique multipolaire. Si  $P$  est l'opérateur de parité (qui agit à la fois sur la partie de spin et sur la partie spatiale), on a

$$\begin{aligned} P\mathbf{Y}_{JM}^e &= (-1)^J \mathbf{Y}_{JM}^e \\ P\mathbf{Y}_{JM}^m &= (-1)^{J+1} \mathbf{Y}_{JM}^m \\ P\mathbf{Y}_{JM}^o &= (-1)^J \mathbf{Y}_{JM}^o. \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

## C.2 Fonctions de Bessel

L'intégration radiale nécessaire pour simplifier l'Eq. (4.5) repose sur une méthode développée par Bott [BZ87], qui utilise certaines propriétés des fonctions de Ricatti-Bessel notées  $u_J(\rho)$ , que l'on peut trouver rassemblées à la référence [GR80]. Ces fonctions obéissent à l'équation différentielle suivante

$$u_J'' - \frac{J(J+1)}{\rho^2} u_J + u_J = 0. \quad (\text{C.3})$$

Les relations de récurrence suivantes sont utiles

$$u_J'^2 = -J(J+1) \left( \frac{u_J}{\rho} \right)^2 + \frac{1}{2J+1} \left( (J+1)u_{J-1}^2 + Ju_{J+1}^2 \right),$$

et

$$u_J' = -2J(J+1) \frac{u_J u_J'}{\rho} + \frac{(J+1)^2}{2J+1} u_{J-1}^2 - \frac{J^2}{2J+1} u_J^2.$$

Si on appelle  $u_J(\rho) = \rho j_J(\rho)$ , on a la relation

$$\int_0^a j_J(\rho) j_J(\rho^*) r^2 dr = \frac{a^3}{y^2 - y^{*2}} \left( \frac{A_J^*(y)}{y} - \frac{A_J(y)}{y^*} \right) |u_J(y)|^2, \quad (\text{C.4})$$

où on note  $A_J(y) = u_J'(y)/u_J(y)$  et  $y = mx$ .

En l'absence d'absorption ( $y = y^*$ ), le membre de droite de Eq. (C.4) est indéterminé mais cette indétermination est facilement levée par application de la règle de l'Hôpital.

$$\lim_{y \rightarrow y^*} \frac{a^3}{y^2 - y^{*2}} \left( \frac{A_J^*(y)}{y} - \frac{A_J(y)}{y^*} \right) = \frac{1}{2y^2} \left( \frac{A_J}{y} - \frac{J(J+1)}{y^2} + 1 + A_J^2 \right). \quad (\text{C.5})$$



Deuxième partie

**Diffusion multiple en milieux  
anisotropes**

## Chapitre 1

# Transport radiatif dans les milieux désordonnés

Dans ce chapitre, nous considérons un milieu contenant un grand nombre de diffuseurs. Le tenseur de Green que nous avons défini au chapitre I.3 dépendait explicitement de la forme et de la position des diffuseurs. Cette description propre à une approche microscopique est trop détaillée pour la diffusion multiple. Dans un milieu désordonné, la propagation est décrite par une moyenne du tenseur de Green sur le désordre noté  $\langle \mathbf{G} \rangle$ . Les propriétés de l'amplitude du champ moyen  $\langle \Psi \rangle$  peuvent s'obtenir à partir de ce tenseur de Green moyen, celle de l'intensité moyenne  $\langle \Psi\Psi^* \rangle$  à partir de  $\langle \mathbf{G}\mathbf{G}^* \rangle$ . Dans ce chapitre, nous présentons quelques aspects de la théorie classique du transport pour la lumière, en considérant successivement l'amplitude moyenne puis l'intensité moyenne. Le formalisme diagrammatique est présenté en détail dans un article de Frish [Fri68], un formalisme similaire existe pour le transport électronique [Mah90]. Dans un deuxième temps nous utilisons les résultats de la partie I portant sur la diffusion simple, comme élément de base pour une théorie du transport de la lumière sous champ magnétique en diffusion multiple.

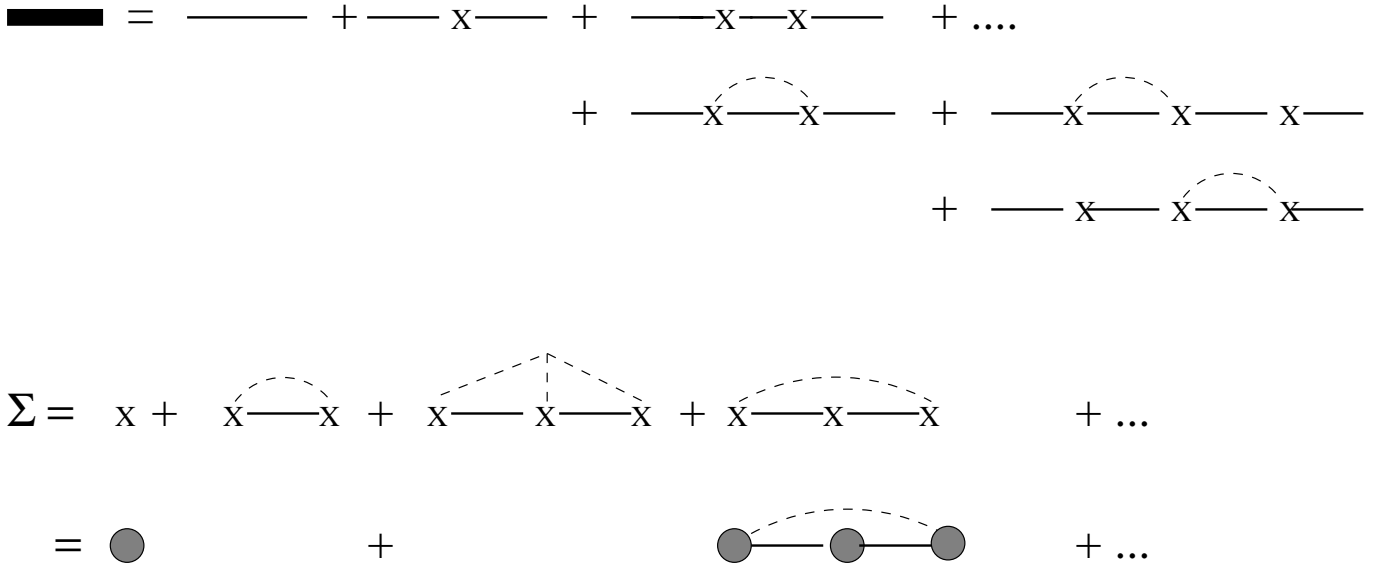


FIG. 1.1 - Représentation du tenseur de Green-Dyson  $\mathbf{G}_D(\omega, \mathbf{p})$  (ligne épaisse ci-dessus) dans un milieu contenant un ensemble de diffuseurs. Les lignes minces représentent les tenseurs de Green dans le vide  $\mathbf{G}_0$ , les croix le potentiel  $V$  responsable de la diffusion, et les lignes pointillées indiquent que la diffusion a lieu sur le même diffuseur. La ligne du bas représente la self-énergie, qui ne contient que des diagrammes irréductibles, et les cercles en gras les matrices  $T$  des différents diffuseurs. A l'ordre le plus bas en densité, on néglige la diffusion récurrente dans la self-énergie (diagrammes à droite sur la dernière ligne), la self-énergie est alors proportionnelle à la matrice  $T$  vers l'avant.

### 1.1 Amplitude moyenne

A partir du tenseur de Green moyenné sur le désordre, appelé aussi tenseur de Green-Dyson, on introduit deux concepts importants: la densité d'états et la self-énergie  $\Sigma$ . Pour réaliser la moyenne sur le désordre, on a recours à une approche diagrammatique. En général on ne sait pas faire cette moyenne exactement, aussi on la calcule seulement en perturbation en fonction du paramètre  $n$ , représentant la densité des diffuseurs. Cela conduit à l'équation de Dyson pour le tenseur de Green-Dyson  $\mathbf{G}_D(\omega, \mathbf{p})$ . Ce tenseur ne dépend que de  $\mathbf{p}$  à cause de la moyenne qui restaure l'invariance par translation du milieu,

$$\mathbf{G}_D(\omega, \mathbf{p}) = \langle \mathbf{G}(\omega, \mathbf{r}, \mathbf{p}) \rangle = \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 \Sigma \mathbf{G}_0 + \mathbf{G}_0 \Sigma \mathbf{G}_0 \Sigma \mathbf{G}_0 + \dots = \left[ \mathbf{G}_0^{-1}(\omega, \mathbf{p}) - \Sigma(\omega, \mathbf{p}) \right]^{-1} \quad (1.1)$$

où la self-énergie  $\Sigma$  représente la somme de tous les diagrammes irréductibles (i.e que l'on ne peut couper en diagrammes plus simples). Une représentation en est donnée à la figure (1.1).

L'ordre le plus bas pour la self-énergie a déjà été calculé au chapitre I.4.1, car il est proportionnel à la matrice  $T$  vers l'avant.

$$\Sigma(\omega, \mathbf{p}) = n\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}}(\omega). \quad (1.2)$$

A cet ordre, la diffusion a lieu de façon indépendante sur chaque diffuseur. Les pôles du tenseur de Green-Dyson fournissent la loi de dispersion pour les excitations du milieu. Après la moyenne, on constate que le milieu se comporte comme un milieu effectif de constante diélectrique

$$\varepsilon(\omega, \mathbf{p}) = \mathbf{I} - \frac{\Sigma(\omega, \mathbf{p})}{\omega^2}.$$

On trouve une partie imaginaire de  $\varepsilon(\omega, \mathbf{p})$  positive, car la moyenne est une opération dissipative, exprimée par le théorème de fluctuation-dissipation. La diffusion est donc responsable de la décroissance du faisceau cohérent. En espace réel, cela correspond pour le tenseur de Green-Dyson et donc pour l'amplitude moyenne du champ, à une décroissance exponentielle:

$$\mathbf{G}_D(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{1}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} e^{i\sqrt{\varepsilon}\omega|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} e^{-|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/2\ell}.$$

La longueur caractéristique de décroissance de  $\mathbf{G}_D(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  définit le libre parcours moyen  $\ell$  de diffusion. En optique c'est la longueur caractéristique de décroissance de la partie cohérente du faisceau incident arrivant sur un milieu diffus.

La correction à l'ordre 1 en champ magnétique dans la matrice  $\mathbf{T}$  que nous avons obtenue dans la partie I, nous renseigne sur certaines propriétés du milieu effectif en diffusion multiple, en l'occurrence sur la rotation Faraday (pour la partie réelle de  $\Sigma^1 = n\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}}^1$ ), et sur le dichroïsme (pour la partie imaginaire). On distingue dans la self-énergie sous champ magnétique, une partie symétrique et une partie antisymétrique

$$\varepsilon_s \mathbf{I} + \varepsilon_a \Phi = \mathbf{I} - \frac{\Sigma(\omega, \mathbf{p}, \mathbf{B})}{\omega^2}.$$

Dans la limite basse fréquence  $\omega \rightarrow 0$ , correspondant aux diffuseurs Rayleigh, pour lesquels le champ électromagnétique change peu à l'échelle de la taille de la particule, et toujours à l'ordre le plus bas en  $n$ , la constante diélectrique effective est indépendante du moment  $\mathbf{p}$ . Au moyen de la matrice  $\mathbf{T}$  du diffuseur ponctuel sous champ magnétique [TMN96], on obtient la partie antisymétrique de la constante diélectrique du milieu effectif, linéaire en champ magnétique,

$$\varepsilon_a = \frac{9f\varepsilon_F}{(m^2 + 2)^2}. \quad (1.3)$$

où  $f$  désigne la fraction volumique en diffuseurs, et  $m$  l'indice relatif du milieu. L'effet Faraday d'un milieu composite composé de particules petites par rapport à la longueur d'onde et de différentes formes (sphériques, en aiguille, aplatie) a été discuté à la Ref. [XHS90], au moyen d'une approche de

milieu effectif non-limitée au régime dilué. Même si plusieurs approches de type milieu effectif existent, celles-ci conduisent aux mêmes prédictions dans la limite basse fréquence.

## 1.2 Théorie phénoménologique du transport

La théorie du transport est une approche macroscopique pour décrire l'intensité moyenne en diffusion multiple. Dans cette section, nous rappelons quelques définitions et résultats importants de cette théorie, concernant notamment les longueurs caractéristiques pour le transport et l'absorption en diffusion multiple. On pourra trouver beaucoup plus de détails sur cette théorie notamment aux Refs. [Ish78] et [Cha60]. On définit la luminance  $\mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t)$  (appelée aussi parfois intensité spécifique), qui représente la densité de radiation au point  $\mathbf{r}$  et dans la direction  $\hat{\mathbf{k}}$  (par unité de fréquence, d'angle solide, de temps et de surface). On note par  $F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}')$  la fonction de phase, qui caractérise la diffusion dans le milieu et qui est proportionnelle à la section efficace de diffusion (*i.e* à la moyenne sur la polarisation du module au carré de la matrice  $\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ ). L'équation du transfert radiatif dépendante du temps traduit un bilan de radiation, entre ce qui est perdu par la diffusion hors de la direction  $\hat{\mathbf{k}}$ , au cours d'un trajet de l'ordre du libre parcours moyen  $\ell$ , et ce qui est gagné par la somme des diffusions qui aboutissent finalement dans cette direction, soit

$$\frac{\ell}{v_E} \partial_t \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) + \ell \hat{\mathbf{k}} \cdot \nabla \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) = \int d\hat{\mathbf{k}}' F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}', t) - \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t), \quad (1.4)$$

où  $v_E$  désigne la vitesse de transport. La vitesse de transport  $v_E$ , qui intervient dans cette équation doit être calculée à partir d'une théorie microscopique, qui prend en compte la phase de l'onde et pas seulement l'intensité comme l'équation du transfert radiatif. On introduit la densité de radiation locale  $I(\mathbf{r}, t)$ , et le courant  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$

$$I(\mathbf{r}, t) = \int \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) d\hat{\mathbf{k}}, \quad \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = v_E \int \hat{\mathbf{k}} d\hat{\mathbf{k}} \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t).$$

L'intégration de l'Eq. (1.4) par rapport à  $\hat{\mathbf{k}}$  fournit l'équation de continuité

$$\partial_t I(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = -\frac{(1-a)v_E}{\ell} I(\mathbf{r}, t).$$

On a introduit l'albedo

$$a = \int d\hat{\mathbf{k}} F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}) = \frac{Q_{scatt}}{Q_{ext}},$$

en fonction des section efficaces de diffusion et d'extinction définies à la partie I. Si on multiplie l'Eq. (1.4) par  $\hat{\mathbf{k}}$  et si on intègre sur  $\hat{\mathbf{k}}$ , on arrive à

$$\frac{\ell}{v_E^2} \partial_t \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{v_E} \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \ell \nabla \cdot \int d\hat{\mathbf{k}} \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) \hat{\mathbf{k}} \hat{\mathbf{k}} = \int d\hat{\mathbf{k}} d\hat{\mathbf{k}}' F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') \hat{\mathbf{k}} \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}', t). \quad (1.5)$$

Si la diffusion est en moyenne à symétrie sphérique (c'est le cas en particulier de la diffusion de Mie classique), l'intégrale  $\int d\hat{\mathbf{k}} F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') \hat{\mathbf{k}}$  est nécessairement proportionnelle à  $\hat{\mathbf{k}}'$ . La constante de proportionnalité n'est rien d'autre que le facteur d'asymétrie  $\langle \cos \theta \rangle$  introduit à la partie I. L'équation (1.5) conduit donc à

$$\frac{\ell}{v_E^2} \partial_t \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{v_E} (1 - \langle \cos \theta \rangle) \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = -\ell \nabla \cdot \int d\hat{\mathbf{k}} \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) \hat{\mathbf{k}} \hat{\mathbf{k}}. \quad (1.6)$$

Pour que l'équation du transfert radiatif puisse être appliquée, il faut que la luminance varie lentement à des échelles de l'ordre du libre parcours moyen. On fait ici une approximation supplémentaire, qui consiste à supposer que la répartition angulaire de la luminance est voisine d'une répartition isotrope. Cette hypothèse permet de décomposer la luminance en deux parties, une partie isotrope  $I(\mathbf{r}, t)$  et un flux  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$  avec

$$\mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) \approx I(\mathbf{r}, t) + \frac{3}{v_E} \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mathbf{k}} + \dots \quad (1.7)$$

Cette expansion revient à décomposer la luminance en harmoniques sphériques et à ne retenir qu'un seul terme ( $J = 1$ ) en plus de la contribution isotrope (pour  $J = 0$ ). Ce terme traduit l'apparition du courant  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$ .

En reportant cette relation dans l'Eq. 1.6, et en négligeant le terme en  $\partial_t \mathbf{J}$  pour des processus variant lentement dans le temps par rapport au temps caractéristique entre deux diffusions  $\ell/v_E$ , on obtient la loi de Fick

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = -D_0 \nabla I(\mathbf{r}, t).$$

Lorsqu'on reporte cette équation dans l'équation de continuité, on obtient l'équation de diffusion pour la densité de radiation

$$\partial_t I(\mathbf{r}, t) = D_0 \nabla^2 I(\mathbf{r}, t) - \frac{(1-a)v_E}{\ell} I(\mathbf{r}, t) = D_0 \left[ \nabla^2 I(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{L_a^2} I(\mathbf{r}, t) \right]. \quad (1.8)$$

Cette équation fournit le coefficient de diffusion

$$D_0 = \frac{1}{3} v_E \frac{\ell}{3(1 - \langle \cos \theta \rangle)} = \frac{1}{3} v_E \ell^*, \quad (1.9)$$

ainsi que le libre parcours moyen de transport

$$\ell^* = \frac{\ell}{1 - \langle \cos \theta \rangle},$$

qui est la longueur caractéristique principale pour la propagation de la lumière en diffusion multiple. L'équation (1.8) définit aussi la longueur caractéristique d'absorption en diffusion multiple

$$L_a = \sqrt{\frac{\ell^* \cdot \ell}{3(1-a)}} = \sqrt{\frac{\ell^* \cdot \ell_{abs}}{3}}, \quad (1.10)$$

en fonction de la longueur caractéristique d'absorption du faisceau cohérent  $\ell_{abs}$  définie à la partie I. Par ailleurs, on peut noter que la relation (1.7) peut s'écrire aussi

$$\mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, t) \approx I(\mathbf{r}, t) - \ell^* \nabla I(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mathbf{k}} + \dots \approx I(\mathbf{r} - \ell^* \hat{\mathbf{k}}, t). \quad (1.11)$$

Dans un milieu quelconque en diffusion multiple, la luminance en un point et une direction donnée est égale à la densité de radiation locale à une distance égale au libre parcours moyen de ce point dans la direction considérée.

### 1.3 Equation de Bethe-Salpether

La théorie du transport décrit correctement l'intensité à des échelles grandes devant le libre parcours moyen grâce à l'équation du transfert radiatif. Mais l'équation du transfert radiatif n'est pas capable de décrire des effets d'interférences dans la diffusion, comme ceux liés à la phase du champ. Par ailleurs on aimerait trouver un fondement microscopique de l'équation du transfert radiatif. Pour toutes ces raisons, on a besoin d'une théorie plus élaborée dont la base est l'équation de Bethe-Salpether. Cette équation est à l'intensité moyenne ce que l'équation de Dyson est à l'amplitude moyenne. A l'ordre le plus bas en  $n$ , correspondant aux diagrammes dits "en échelle", l'équation de Bethe-Salpether redonne l'équation du transfert radiatif.

L'équivalent de la self-énergie est le vertex  $\mathbf{U}$ , qui ne contient lui aussi que des diagrammes irréductibles. Ce vertex  $\mathbf{U}$  est le noyau de l'équation de Bethe-Salpether, que l'on peut écrire formellement [BPP97]

$$\langle \mathbf{G}(\omega) \mathbf{G}^*(\omega') \rangle = \langle \mathbf{G}(\omega) \rangle \langle \mathbf{G}^*(\omega') \rangle + \langle \mathbf{G}(\omega) \rangle \langle \mathbf{G}^*(\omega') \rangle \cdot \mathbf{U}(\omega, \omega') \cdot \langle \mathbf{G}(\omega) \rangle \langle \mathbf{G}^*(\omega') \rangle. \quad (1.12)$$

Comme le milieu est infini, la symétrie de translation impose que  $\mathbf{U}$  ne dépend que de trois moments  $\mathbf{p}$ ,  $\mathbf{p}'$  et  $\mathbf{q}$ . Dans la suite, nous nous limitons à étudier une situation stationnaire de sorte que  $\omega = \omega'$  (la généralisation au cas dynamique ne pose pas de problèmes particuliers). Les paramètres  $\mathbf{p}$  et  $\mathbf{p}'$  sont internes, et représentent des variables rapides associées à la période de l'onde. Au contraire,  $\mathbf{q}$  est une variable macroscopique, c'est à dire lentement variable, associée à l'enveloppe du paquet d'ondes. On introduit les variables  $\mathbf{p}^\pm = \mathbf{p} \pm \mathbf{q}/2$ . Le comportement des quantités physiquement intéressantes en espace réel s'obtient après une transformée de Fourier par rapport à la variable  $\mathbf{q}$ . Comme pour la

self-énergie, on calcule  $\mathbf{U}$  en perturbations par rapport à la densité des diffuseurs. Le terme à l'ordre le plus bas correspond à une succession de diffusions indépendantes où chaque diffuseur n'est visité qu'une fois au plus (approximation de Boltzmann):

$$\mathbf{U}(\mathbf{q}, \mathbf{p}, \mathbf{p}') = n \mathbf{T}_{\mathbf{p}+\mathbf{p}'} \mathbf{T}_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'}^* \quad (1.13)$$

Dans la suite, la présence éventuelle d'un champ magnétique  $\mathbf{B}$  est prise en compte dans la matrice  $\mathbf{T}$ . Une représentation du tenseur des diagrammes en échelle  $L(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B})$  est donnée à la figure 1.2. L'indice  $\pm$  dans la notation  $L^\pm(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B})$  repère deux types de diagrammes, suivant le signe du champ magnétique pour la propagation du champ conjugué (la ligne du bas dans ces diagrammes). Dans ce chapitre, nous ne considérons que le diagramme  $L^+(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B})$ , c'est pourquoi nous omettons le signe  $+$  dans la suite. Cette distinction n'intervient qu'au chapitre sur la rétrodiffusion cohérente. Ce tenseur des diagrammes en échelle obéit finalement à l'équation

$$L^\pm(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = n \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B}) \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^*(\pm\mathbf{B}) + n \sum_{\mathbf{p}''} \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}''}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}(\mathbf{p}''^+, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}''^-, \pm\mathbf{B}) \cdot \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}''}^*(\pm\mathbf{B}) \cdot L^\pm(\mathbf{p}'', \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}), \quad (1.14)$$

où on a omis l'indice  $D$  dans les tenseurs de Green-Dyson figurant dans cette équation.

## 1.4 L'approximation de diffusion

Dans cette courte section, nous précisons comment appliquer l'approximation de diffusion dans le cadre de la formulation avec les diagrammes en échelle. Le comportement à grande échelle de l'intensité s'obtient en développant l'équation (1.14) pour  $\mathbf{q}$  petit (limite hydrodynamique) et en sommant la série obtenue. Par exemple, dans le cas le plus simple où on considère un diffuseur ponctuel en l'absence de champ magnétique, la matrice  $\mathbf{T}$  est indépendante de  $\mathbf{p}$  et  $\mathbf{p}'$ . On la note ici  $t$ . Le bloc de base des diagrammes en échelle est (voir figure 1.2)

$$Q(\mathbf{q})_{ijkl} \sim n|t|^2 \int G_{ij}(\mathbf{p} + \mathbf{q}/2) G_{lk}^*(\mathbf{p} - \mathbf{q}/2) d^3\mathbf{p} \simeq 1 - \mathbf{q}^2 \ell^2 + \mathcal{O}(\mathbf{q}^2).$$

Le tenseur des diagrammes en échelle est une série géométrique de raison  $\mathbf{Q}(\mathbf{q})$ , soit

$$L(\mathbf{p}, \mathbf{p}') \sim \frac{1}{\ell(1 - \mathbf{Q}(\mathbf{q}))} = \frac{3}{\ell^3 \mathbf{q}^2}.$$

L'opération consistant à ne garder que les termes d'ordre 2 au plus en  $\mathbf{q}$  dans l'équation de Bethe-Salpether s'appelle l'approximation de diffusion. Dans cette approximation, on voit que le tenseur  $L(\mathbf{p}, \mathbf{p}')$  diverge pour  $\mathbf{q} \rightarrow 0$ , ce qui est lié au caractère infini du milieu. Cette divergence disparaît pour un milieu de taille finie. L'approximation de diffusion décrit correctement les grandes échelles,



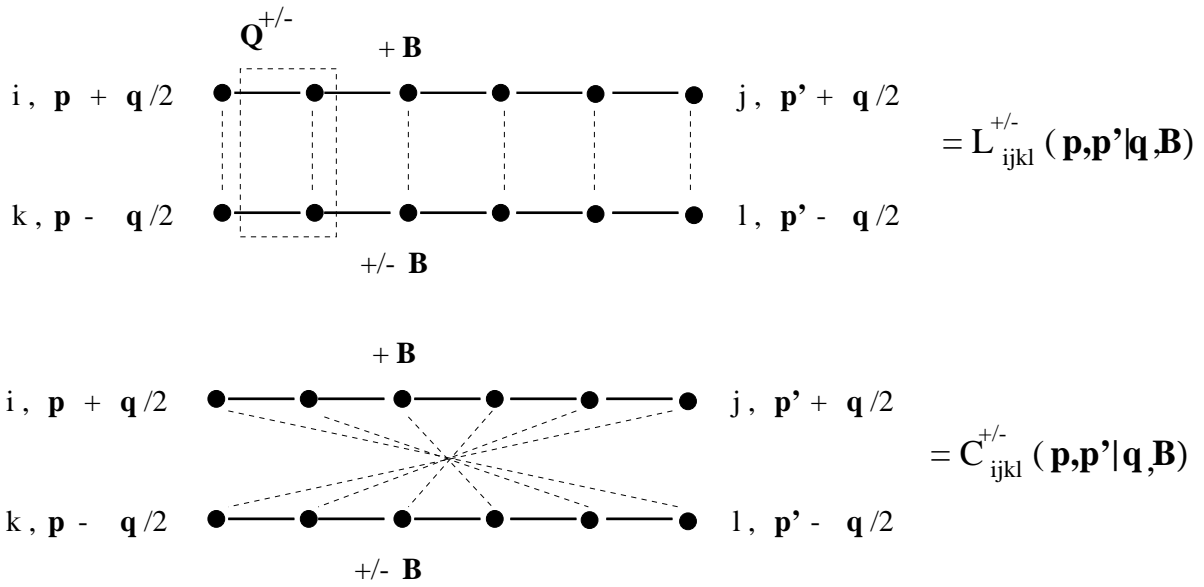


FIG. 1.2 - Représentation des diagrammes en échelle et des diagrammes croisés après la moyenne sur le désordre. Les traits épais représentent les tenseurs de Green-Dyson définis à l'Eq. (1.1), les cercles les matrices  $T$  qui contiennent toutes les diffusions sur chaque diffuseur suivant les mêmes conventions qu'à la figure précédente. Les indices  $i, k$  (respectivement  $j, l$ ) décrivent l'état de polarisation du champ incident (respectivement sortant). Le tenseur  $\mathbf{Q}^{\pm}$  est l'élément de base des diagrammes en échelle. Le diagramme du bas est un diagramme croisé responsable de la rétrodiffusion cohérente, topologiquement différent du diagramme en échelle. L'étude de la rétrodiffusion cohérente abordée au chapitre 3, nécessite d'étudier deux types de tenseurs notés avec un indice  $\pm$ , suivant le signe du champ magnétique pour la propagation du champ conjugué (la ligne du bas dans ces diagrammes).

c'est à dire des chemins de diffusions très longs, mais mal la diffusion par un petit nombre de diffuseurs, par exemple la diffusion simple ou la diffusion double. Dans la suite nous employons l'approximation de diffusion systématiquement pour décrire la diffusion multiple dans un milieu constitué de diffuseurs optiquement anisotropes, par exemple des diffuseurs de Mie Faraday-actifs. En principe, cette approche ne s'applique qu'à un milieu infini; en pratique on peut l'appliquer jusqu'à une distance de l'ordre de quelques libres parcours moyen des bords du milieu diffus, ce qui fait tout l'intérêt de la méthode.

L'approximation de diffusion pour le tenseur des diagrammes en échelle conduit à la forme suivante (voir appendice A)

$$L_{ijkl}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \frac{2\pi}{\ell^2} \frac{d_{ik}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) d_{lj}(-\mathbf{p}', -\mathbf{q}, -\mathbf{B})}{\mathbf{q} \cdot \mathbf{D}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{q}}. \quad (1.15)$$

où  $\mathbf{D}(\mathbf{B})$  désigne en général le coefficient de diffusion. On retrouve ici l'équivalent de l'équation de diffusion (1.8) établie dans le cadre de la théorie du transport. Le principe de réciprocité qu'on peut écrire sous la forme

$$L_{ijkl}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = L_{jilk}(-\mathbf{p}', -\mathbf{p}, -\mathbf{q}, -\mathbf{B}), \quad (1.16)$$

impose la forme particulière du numérateur de l'Eq. (1.15).

Le tenseur  $\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  introduit dans ce numérateur représente une fonction propre du tenseur des diagrammes en échelle, associé à la valeur propre de  $\mathbf{Q}(\mathbf{q})$  proche de 1. En l'absence de champ magnétique, ce tenseur vérifie la relation  $\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = 1 - \ell^* \mathbf{p} \cdot \mathbf{q}$ . Si on se rappelle qu'un terme linéaire en  $\mathbf{q}$  représente un gradient d'intensité, on voit que cette relation permet de retrouver l'équation (1.11) (au remplacement de  $\mathbf{p}$  par  $\mathbf{k}$ ).

### 1.4.1 Diffusion par une tranche

Nous présentons brièvement dans cette section une technique utilisée pour traiter de la diffusion multiple dans un milieu semi-infini ou dans une tranche, dans le cadre de l'approximation de diffusion, utilisant le propagateur pour les diagrammes en échelles. Cette technique est bien documentée dans la littérature [Gol84, dH80b, Ish78]. La solution pour le milieu semi-infini est employée pour calculer le profil d'intensité de la rétrodiffusion cohérente au chapitre 3, et la solution pour la tranche est utilisée au chapitre 4.

Soit un milieu contenant un ensemble de diffuseurs dans une tranche  $L > z > 0$ . On désigne par  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  le propagateur au point  $\mathbf{r}' = \{\mathbf{r}'_{\perp}, z'\}$  pour une source en  $\mathbf{r} = \{\mathbf{r}_{\perp}, z\}$ . L'axe  $z$  est dirigé selon la normale du milieu, et  $\mathbf{r}_{\perp}$  et  $\mathbf{r}'_{\perp}$  sont deux vecteurs perpendiculaires à la normale. A cause de l'invariance par translation dans le plan  $(x, y)$  de la tranche, le propagateur ne dépend que de la différence  $\mathbf{r}_{\perp} - \mathbf{r}'_{\perp}$ . La transformée de Fourier de  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  à deux dimensions par rapport à  $\mathbf{r}_{\perp} - \mathbf{r}'_{\perp}$  est

notée  $\tilde{P}(\mathbf{q}, z, z')$ . Le propagateur  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  satisfait à l'équation de diffusion [Cra76]

$$(-\nabla^2 + \frac{1}{L_a^2})P(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{1}{D_0}\delta(z - z'), \quad (1.17)$$

où  $D_0$  désigne le coefficient de diffusion, et  $L_a$  la longueur d'absorption en diffusion multiple définie à l'Eq. (1.10). Dans un milieu semi-infini ou fini, on doit ajouter à cette équation des conditions aux limites appropriées. L'étude du problème de Milne pour la diffusion multiple à travers une tranche de taille finie, montre que l'intensité n'est jamais nulle aux bords du milieu (c'est à dire ici en  $z = 0$  et  $z = L$ ). Pour rendre compte de cette intensité finie aux bords, on utilise une condition aux limites, qui impose l'annulation de l'intensité à l'extérieur du milieu sur deux plans placés à une distance  $z_0$  des bords du milieu, d'où les conditions [dMAL88]

$$\begin{aligned} \forall \mathbf{r}_\perp, \forall \mathbf{r}'_\perp, L > z' > 0, & \quad P(\{\mathbf{r}_\perp, z = -z_0\}, \{\mathbf{r}'_\perp, z'\}) = 0 \\ \forall \mathbf{r}_\perp, \forall \mathbf{r}'_\perp, L > z' > 0, & \quad P(\{\mathbf{r}_\perp, z = L + z_0\}, \{\mathbf{r}'_\perp, z'\}) = 0. \end{aligned} \quad (1.18)$$

La solution d'une équation de diffusion avec de telles conditions aux limites se résout simplement. On peut, comme Ping Sheng, utiliser la méthode des images pour se ramener à la solution dans un milieu infini [She90], ou résoudre explicitement l'équation (1.17) comme une équation différentielle par rapport à  $z'$  (ou  $z$ ) contenant un terme de source. En l'absence d'absorption ( $1/L_a = 0$ ), la solution a une forme simple

$$\tilde{P}(\mathbf{q} = 0, z, z') = \frac{1}{4D_0} \frac{(L + 2z_0 - |z - z'|)^2 - (L - z - z')^2}{L + 2z_0}.$$

Le composante du courant transmis (en  $z' = L$ ), vaut

$$J_T = -D_0 \partial_z \tilde{P}(\mathbf{q} = 0, z, z' = L) = \frac{z_0 + z}{L + 2z_0}.$$

Par comparaison avec la solution de Milne, qui permet également de calculer ce courant, on trouve qu'il faut prendre pour  $z_0$  la valeur  $z_0 \simeq 0.7104\ell^*$ , en l'absence d'absorption et lorsqu'on ne tient pas compte de l'écart entre l'indice dans la tranche et à l'extérieur de la tranche. L'approximation de diffusion fournit la valeur proche de  $z_0 = 2D_0 = 2\ell^*/3$ , ce qui montre toute la validité de cette approximation dans ce type de géométrie. Les plans où l'intensité s'annulent sont donc situés à environ un libre parcours moyen des bords du milieu. A partir de l'intensité  $\tilde{P}(\mathbf{q} = 0, z, z')$ , on obtient par intégration les coefficients de réflexion et de transmission pour la tranche en fonction de  $z_0$ ,  $L$  et éventuellement  $L_a$  [TMN96].

## Chapitre 2

# Effet Hall Photonique

### 2.1 Introduction

L'Effet Hall Photonique a été étudié sur le plan théorique par Van Tiggelen [Tig95], et la première mise en évidence expérimentale a été obtenue par Rikken au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses (LCMI) dès 1995 [RT96]. Cet effet présente de nombreuses analogies avec l'effet Hall "classique" bien connu en physique des semi-conducteurs. En effet, étant donné un courant de diffusion  $\mathbf{J}$ , un champ magnétique peut donner naissance en diffusion multiple, dans un milieu constitué de diffuseurs Faraday-actifs, à un courant  $\ell_{\perp} \mathbf{B} \times \mathbf{J}$ , dans une direction à la fois perpendiculaire au courant  $\mathbf{J}$  et au champ magnétique appliqué  $\mathbf{B}$ . L'analogie de la charge des porteurs  $q$  de l'effet classique est donc cette longueur  $\ell_{\perp}$  proportionnelle à la constante de Verdet des diffuseurs. Cette longueur peut être positive ou négative suivant la direction du courant magnéto-transverse. Dans le cas classique les porteurs sont déviés par la force de Lorentz, ce qui donne naissance à une différence de potentiel, la tension Hall. A cause de l'absence de charge pour le photon, l'Effet Hall Photonique a une origine différente: il est lié à la modification de la section efficace des diffuseurs Faraday-actifs produite par l'application d'un champ magnétique.

C'est pourquoi, l'Effet Hall Photonique se compare peut être mieux à l'effet Beenakker-Senftleben [KM62, MHB84]. Cet effet concerne une anisotropie d'origine magnétique dans les coefficients de transport des gaz paramagnétiques dilués. Il est provoqué par la précession des moments magnétiques des molécules entre deux collisions. L'angle de rotation est le produit du temps moyen entre deux collisions par la fréquence caractéristique des collisions. Pour l'Effet Hall Photonique, c'est le vecteur polarisation qui tourne à cause de l'effet Faraday, d'un angle qui est également lié au temps moyen entre deux collisions. Pour l'effet Hall classique, cet angle de rotation repère la position d'un électron sur la trajectoire hélicoïdale suivie dans un champ magnétique. Dans le cas de l'Effet Beenakker-Senftleben, des mesures de conductivité thermique sous champ magnétique, ont ainsi permis de mettre en évidence expérimentalement l'existence d'un courant perpendiculaire au champ appliqué et au gradient de

température, qui est l'analogie du courant de diffusion magnéto-transverse que nous considérons.

Dans ce chapitre consacré à l'Effet Hall Photonique en diffusion multiple, nous présentons une revue des expériences sur ce sujet menées ou en cours au LCMI. Une interprétation de ces résultats expérimentaux est proposée sur la base d'un modèle théorique pour la diffusion magnéto-transverse, applicable à des diffuseurs de Mie. Cette approche de la diffusion magnéto-transverse, qui fait également l'objet de l'appendice A, utilise largement les résultats de la partie I obtenus en diffusion simple. L'équivalent de l'Effet Hall Photonique en diffusion simple apparaît au niveau de la section efficace de diffusion, qui a été calculée à partir de la matrice T à l'appendice I.A. Dans cet appendice, on a montré théoriquement qu'un unique diffuseur Rayleigh ne génère pas d'effet Hall Photonique alors que c'est le cas pour deux diffuseurs Rayleigh ensemble ou pour un diffuseur de Mie.

## 2.2 Diffusion magnéto-transverse dans le régime de Mie

### 2.2.1 Généralités

Dans le régime de diffusion multiple, le champ magnétique offre un moyen privilégié sur le plan expérimental de modifier de façon contrôlée le coefficient de diffusion  $\mathbf{D}(\mathbf{B})$ . Ce dernier devient un tenseur sous champ magnétique. La correction linéaire en champ dans  $\mathbf{D}(\mathbf{B})$  correspond au courant magnéto-transverse responsable de l'Effet Hall Photonique. Les corrections quadratiques en champ magnétique génèrent une magnéto-résistance photonique, qui a été observée expérimentalement [SRT97]. Cette magnéto-résistance photonique est analogue à la magnéto-résistance qui apparaît dans les semi-conducteurs. D'après la relation de Onsager  $D_{ij}(\mathbf{B}) = D_{ji}(-\mathbf{B})$ , toute modification du coefficient de diffusion linéaire en champ magnétique, est nécessairement antisymétrique. Dans l'équation de diffusion, seule intervient la partie symétrique de  $\mathbf{D}(\mathbf{B})$  (à cause de la présence de l'opérateur laplacien  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{D}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{q}$ ), c'est pourquoi on doit avoir recours à l'équation de Fick pour déterminer la partie antisymétrique du coefficient de diffusion. Comme on l'a vu dans la théorie macroscopique du transport à la section 1.2, la loi de Fick relie le courant de diffusion au gradient de densité de radiation  $\nabla I(\mathbf{r}, t)$  (l'équivalent d'un gradient de concentration ou de température dans les applications plus classiques de la loi de Fick) à des échelles grandes devant le libre parcours moyen

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{D}(\mathbf{B}) \cdot \nabla I(\mathbf{r}, t). \quad (2.1)$$

Sous champ magnétique, le courant  $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$  contient deux contributions

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = -D_0 \nabla I(\mathbf{r}, t) - D_{\perp} \mathbf{B} \times \nabla I(\mathbf{r}, t).$$

Le terme proportionnel à  $D_{\perp}$  décrit un courant magnéto-transverse, dont la détermination est l'objet de cette section. Dans le système d'unités choisi, la partie transverse du coefficient de diffusion est

homogène à une longueur notée

$$\ell_{\perp} = \frac{3D_{\perp}}{c_0}.$$

$\ell_{\perp}$  doit être interprété comme le libre parcours moyen de transport pour la diffusion magnéto-transverse.

La détermination de ce courant magnéto-transverse en diffusion multiple a d'abord fait l'objet d'une étude dans le cadre d'un modèle de diffuseurs Rayleigh sous champ magnétique en 1995 [Tig95]. Cette méthode a fourni des prédictions quantitatives qui sont comparées dans les sections suivantes aux expériences menées par le groupe de M. Rikken sur l'Effet Hall Photonique, et aussi au modèle présenté ci-dessous pour la diffusion magnéto-transverse dans le régime de Mie. Le modèle pour la diffusion magnéto-transverse dans le régime Rayleigh conduit finalement à l'expression  $\ell_{\perp} = \ell \Im m(\varepsilon_a)$ , où  $\varepsilon_a$  désigne la partie antisymétrique de l'indice du milieu effectif de l'Eq. (1.3). En termes des indices des diffuseurs  $n_s$  et du milieu  $n_m$ , cela donne

$$\ell_{\perp} = \frac{3n_s n_m}{(n_s^2 - n_m^2)(n_s^2 + 2n_m^2)} \frac{V_0 B \lambda_0}{\pi^2}, \quad (2.2)$$

où  $\lambda_0$  désigne la longueur d'onde de la lumière dans le vide. On note que  $\ell_{\perp}$  est indépendant de la concentration  $n$  des diffuseurs magnéto-optiques. Physiquement, cela tient à ce que la rotation Faraday se produit dans les diffuseurs de sorte que  $\varepsilon_a \sim n$ , alors que le libre parcours moyen varie comme  $1/n$ . Cette présence du facteur  $\varepsilon_a$  dans l'expression finale de  $\ell_{\perp}$  s'interprète de la façon suivante: un unique diffuseur Rayleigh ne possède pas d'effet Hall Photonique, il faut donc en avoir au moins deux pour avoir un effet Hall non nul. Or la probabilité de trouver deux particules dans ce milieu est proportionnelle à la concentration  $n$ .

Deux approches sont présentées ci-dessous pour la diffusion magnéto-transverse dans le régime de Mie. La première utilise un traitement scalaire du transport de la lumière au moyen de l'équation du transfert radiatif. La seconde est vectorielle, c'est à dire qu'elle inclue la polarisation, et repose sur l'équation de Bethe-Salpether. Dans la seconde formulation, le coefficient de diffusion est finalement obtenu par application d'une relation de Kubo, dont l'emploi est bien connu dans les systèmes électroniques [Mah90]. Cette méthode a déjà permis de calculer le coefficient de diffusion dans un autre système anisotrope, constitué par un cristal liquide nématique monodomaine orienté par un champ magnétique [TMH96, Tig98]. Dans ce système complexe, le coefficient de diffusion a pu être obtenu indépendamment et par une autre approche par Stark *et al.* [SL96, SL97] avec pour les deux méthodes un bon accord avec les expériences.

### 2.2.2 Modèle de théorie du transport

Cette section présente un modèle simple inspiré de la théorie du transport pour le coefficient de diffusion magnéto-transverse  $D_{\perp}$ , applicable à un ensemble de diffuseurs de Mie ayant des propriétés

magnéto-optiques, inclus dans une matrice dépourvue de propriétés magnétiques. Cette approche repose sur les principes généraux de la théorie du transport abordés à la section 1.2. On fait ici l'hypothèse que la polarisation ne joue aucun rôle dans la diffusion magnéto-transverse, ce qui permet d'utiliser l'équation du transfert radiatif dans sa formulation scalaire. Par là même, on néglige aussi tous les effets liés à la phase du champ en diffusion multiple, car la description ne concerne que l'intensité moyenne.

La fonction de phase  $F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}', \hat{\mathbf{B}})$  pour des particules sphériques soumises à un champ magnétique transverse à la direction de la lumière incidente peut s'écrire sous la forme suivante:

$$F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}', \hat{\mathbf{B}}) = F_0(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') + \det(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}', \hat{\mathbf{B}}) F_1(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}'), \quad (2.3)$$

où les fonctions  $F$  et  $F_1$  ne dépendent que de l'angle de diffusion  $\theta$ . La fonction  $F_1(\theta)$  a été introduite dans l'appendice A pour caractériser l'Effet Hall Photonique d'une unique particule en diffusion simple. On peut l'exprimer en fonction de la partie magnéto-transverse de la matrice  $T$  d'une unique particule sous la forme

$$\sin \theta F_1(\theta) = \frac{\sum_{\sigma\sigma'} \Re e \left( T_{\sigma\sigma'}^0(\theta) \overline{T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}}, \theta)} \right)}{\pi \int_{-1}^1 d \cos \theta \sum_{\sigma\sigma'} |T_{\sigma\sigma'}^0(\theta)|^2}. \quad (2.4)$$

La luminance  $\mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, \mathbf{B})$  et le courant sont définis comme à la section 1.2, et sont à présent dépendants du champ magnétique  $\mathbf{B}$ . Pour des processus variant lentement dans le temps par rapport au temps caractéristique entre deux diffusions  $\ell/v_E$ , l'équation du transfert radiatif s'écrit

$$\ell \hat{\mathbf{k}} \cdot \nabla \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, \mathbf{B}) + \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, \mathbf{B}) = \int d\hat{\mathbf{k}}' F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}', \mathbf{B}) \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}', \mathbf{B}). \quad (2.5)$$

Comme précédemment, multiplions cette équation par  $\hat{\mathbf{k}}$ , et intégrons sur cette direction  $\hat{\mathbf{k}}$ . Le membre de droite de l'Eq. (2.5) contient deux intégrales, qui font respectivement intervenir  $F_0$  et  $F_1$ . Ces intégrales sont les suivantes:

$$\int d\hat{\mathbf{k}} F_0(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' = \langle \cos \theta \rangle,$$

d'une part, et d'autre part

$$\int d\hat{\mathbf{k}} F_1(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') \det(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}', \hat{\mathbf{B}})^2 = A_1. \quad (2.6)$$

En choisissant un système de coordonnées lié à  $\hat{\mathbf{k}}'$ , on montre facilement que

$$\int d\hat{\mathbf{k}} F(\hat{\mathbf{k}}, \hat{\mathbf{k}}') \hat{\mathbf{k}} = \langle \cos \theta \rangle \hat{\mathbf{k}}' + A_1 \hat{\mathbf{B}} \times \hat{\mathbf{k}}'.$$

Après intégration sur  $\hat{\mathbf{k}}'$ , l'Eq. (2.5) conduit à l'expression suivante:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, \mathbf{B}) (1 - \langle \cos \theta \rangle) - A_1 \hat{\mathbf{B}} \times \mathbf{J}(\mathbf{r}, \mathbf{B}) = -\ell v_E \nabla \cdot \int d\hat{\mathbf{k}} \mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, \mathbf{B}) \hat{\mathbf{k}} \hat{\mathbf{k}},$$

Pour simplifier le membre de droite de cette équation, on suppose toujours que la distribution angulaire de la luminance est proche d'une distribution isotrope, c'est à dire

$$\mathcal{I}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{k}}, \mathbf{B}) \approx I(\mathbf{r}, \mathbf{B}) + \frac{3}{v_E} \mathbf{J}(\mathbf{r}, \mathbf{B}) \cdot \hat{\mathbf{k}} + \dots \quad (2.7)$$

Finalement, on retrouve bien la loi de Fick (2.1) avec comme coefficient de diffusion

$$\mathbf{D}(\mathbf{B}) = \frac{1}{3} v_E [(1 - \langle \cos \theta \rangle) \mathbf{I} - A_1 \varepsilon \cdot \mathbf{B}]^{-1}, \quad (2.8)$$

où  $\varepsilon$  désigne le tenseur de Lévi-Civitta. Dans le cas où  $A_1 B \ll 1 - \langle \cos \theta \rangle$ , un développement limité du terme dans le crochet conduit à

$$D_{ij}(\mathbf{B}) = \frac{1}{3} v_E \frac{\ell}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \delta_{ij} + \frac{1}{3} v_E A_1 \frac{\ell}{(1 - \langle \cos \theta \rangle)^2} \varepsilon_{ijk} \hat{B}_k. \quad (2.9)$$

Cette équation redonne le libre parcours moyen de transport  $\ell^* = \ell / (1 - \langle \cos \theta \rangle)$ , et définit une nouvelle longueur caractéristique:  $\ell_{\perp} = A_1 \ell^* / (1 - \langle \cos \theta \rangle)$ , le libre parcours moyen de transport pour la diffusion magnéto-transverse. Le coefficient  $A_1$  est directement relié à l'Effet Hall Photonique d'un unique diffuseur, de sorte que l'Eq. (2.9) montre que l'Effet Hall Photonique en diffusion multiple est directement proportionnel à l'Effet Hall Photonique en diffusion simple, avec le même signe et amplifié par le facteur  $1 / (1 - \langle \cos \theta \rangle)^2$ . On remarque que  $\ell_{\perp}$  dépend encore davantage du facteur d'asymétrie des diffuseurs  $\langle \cos \theta \rangle$  que le libre parcours moyen de transport  $\ell^*$ . La raison en est que la correction magnétique à la section efficace de diffusion intervient comme un facteur d'anisotropie supplémentaire qui s'ajoute au  $\langle \cos \theta \rangle$ , au dénominateur dans le coefficient de diffusion (2.8). Le facteur en  $1 / (1 - \langle \cos \theta \rangle)^2$  résulte alors simplement du développement limité à l'ordre un en champ magnétique.

### 2.2.3 Modèle de théorie des champs

On peut trouver insuffisante une description de la diffusion magnéto-transverse, qui a son origine dans la rotation Faraday, un effet de rotation de la polarisation, uniquement sur la base d'une théorie du transport scalaire. Nous présentons dans cette section, une autre méthode conduisant à la même longueur  $\ell_{\perp}$ , qui utilise la formulation microscopique de la théorie du transport de la lumière en diffusion multiple, incluant la polarisation, au moyen de l'équation de Bethe-Salpether. Cette équation de Bethe-Salpether est issue du formalisme de théorie des champs. Pour plus de détails sur ce modèle, on pourra se reporter à l'appendice A.



Le coefficient de diffusion  $\mathbf{D}(\mathbf{B})$  s'obtient en développant l'équation de Bethe-Salpether à l'ordre 2 en  $\mathbf{q}$ . A partir des fonctions de corrélation  $\langle E_n E_m^* \rangle$ , on en déduit la densité de radiation  $\langle E_i(\mathbf{p}^+) E_i^*(\mathbf{p}^-) \rangle$  et le courant associé au transport de l'énergie, ce qui conduit par la loi de Fick au coefficient de diffusion. Le courant associé au transport de l'énergie n'est rien d'autre que le vecteur de Poynting  $\Re(\mathbf{E}(\mathbf{p}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{p}))$ , où  $\mathbf{H}$  désigne l'induction magnétique du champ (à ne pas confondre avec le champ externe magnétique  $\mathbf{B}$ ). A partir des équations de Maxwell, on obtient:

$$J_n(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \frac{1}{2\omega} \sum_{\mathbf{p}} (2p_n \delta_{ik} - p_k \delta_{in} - p_i \delta_{nk}) \langle E_k(\mathbf{p}^+, \mathbf{B}) E_i^*(\mathbf{p}^-, \mathbf{B}) \rangle. \quad (2.10)$$

Le tenseur des diagrammes en échelles  $L_{ijkl}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q})$  est directement relié aux fonctions de corrélation  $\langle E_n E_m^* \rangle$  pour le champ électromagnétique dans le milieu diffus en fonction d'un terme de source noté  $\mathbf{S}$  [MJ88]:

$$\langle E_n(\mathbf{p}^+) E_m^*(\mathbf{p}^-) \rangle = G_{ni}(\mathbf{p}^+) G_{km}^*(\mathbf{p}^-) \sum_{\mathbf{p}'} L_{ijkl}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) S_{jl}(\mathbf{p}'), \quad (2.11)$$

la présence des tenseurs de Green-Dyson traduit la propagation de la lumière jusqu'à une distance de l'ordre du libre parcours moyen des bords du milieu, le reste de la diffusion à l'intérieur du milieu (supposé infini) étant pris en charge par  $L_{ijkl}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q})$ . Ce tenseur décrit le transport de l'intensité comme cas particulier  $n = m$  et  $j = l$ , mais plus généralement il fournit aussi le transport des paramètres de Stokes dans le milieu, qui décrivent complètement l'état de polarisation (cette méthode sera employée au chapitre suivant pour le calcul des paramètres de Stokes en diffusion multiple dans les milieux chiraux).

La détermination du coefficient de diffusion de la loi de Fick (2.1), se ramène donc à évaluer le tenseur  $\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  de l'Eq. (1.15). Une des contraintes qui limitent les formes possibles pour  $\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  est la conservation de l'énergie. En diffusion multiple, la conservation de l'énergie prend la forme d'une identité de Ward qui est l'équivalent pour la diffusion multiple du théorème optique [LT96]:

$$\sum_{\mathbf{p}'} \mathbf{U}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{q}, \mathbf{B}) \cdot \Delta \mathbf{G}_{\mathbf{q}}(\mathbf{p}', \mathbf{B}) = \Delta \Sigma_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}, \mathbf{B}), \quad (2.12)$$

où on a introduit

$$\Delta \Sigma_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}, \mathbf{B}) = \frac{1}{2i} (\Sigma(\mathbf{p}^+, \mathbf{B}) - \Sigma(\mathbf{p}^-, \mathbf{B})),$$

en fonction de la self-énergie  $\Sigma$  définie précédemment; la même définition s'applique à  $\Delta \mathbf{G}_{\mathbf{q}}(\mathbf{p}')$  en fonction du tenseur de Green-Dyson. Pour  $\mathbf{q} = 0$ , l'Eq. (2.12) impose la forme de  $\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ , à savoir  $\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q} = 0, \mathbf{B}) = \Delta \Sigma_{\mathbf{p}}(\mathbf{q} = 0, \mathbf{B})$  (ce qui correspond à une valeur propre nulle pour l'opérateur de collision  $\mathbf{I} - \mathbf{Q}(\mathbf{q})$ , le dénominateur du tenseur des diagrammes en échelles). A l'ordre 1 en  $\mathbf{q}$ , l'égalité

de Ward et l'équation de Bethe-Salpether sont vérifiées pour

$$\begin{aligned}
 \mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) &= \Delta\Sigma_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}, \mathbf{B}) + \mathcal{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) - \Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}), \\
 \Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) &= \mathcal{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) + n \sum_{\mathbf{p}'} \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}(\mathbf{p}', \mathbf{B}) \cdot \Gamma(\mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}', \mathbf{B}) \cdot \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^*(\mathbf{B}), \quad (2.13) \\
 \mathcal{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) &= 2(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q})\mathbf{I} - \mathbf{p}\mathbf{q} - \mathbf{q}\mathbf{p}.
 \end{aligned}$$

où  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  est un tenseur linéaire en  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{q}$ , transverse par rapport à  $\mathbf{p}$ , et hermitique. Les relations de symétries vérifiées par le tenseur  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  (parité et réciprocity) sont déduites simplement à partir des relations de symétries correspondantes pour la matrice  $\mathbf{T}$ . On note  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  la partie magnétique de  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ .

Il reste à écrire la forme la plus générale pour le tenseur  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ , compte tenu de toutes ces conditions. Mathématiquement, on cherche un tenseur  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  globalement invariant par rotation des vecteurs qui le constituent. Pour cette raison, on peut associer à ce tenseur une représentation du groupe  $\text{SO}(3)$ . Le nombre de tenseurs différents intervenant dans  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  s'obtient en dénombrant le nombre de fois que la représentation triviale (qui à tout élément d'un groupe associe l'identité) intervient dans l'application linéaire  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) \in 3 \otimes 3 \otimes 3 \otimes 3 \otimes 3$  (on utilise le langage incorrect consistant à désigner une représentation par sa dimension). On trouve 4, comme 6 moins 2 tenseurs qui ne sont pas transverses. Parmi ces 4 tenseurs, il n'y a qu'un scalaire, c'est bien évidemment  $\det(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}})$ . Il n'est pas difficile d'identifier les trois autres tenseurs, de sorte que la forme générale de  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  fait intervenir 4 coefficients réels (à cause de la condition d'hermiticité de  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ ) notés  $a_i$ :

$$\delta\Gamma_{lj}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}}) = a_1 \det(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}}) \delta_{lj} - i\varepsilon_{ljk} p_k \left[ a_2 (\hat{\mathbf{B}} \cdot \mathbf{q}) + a_3 (\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{p}}) (\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}) \right] + a_4 [p_k \Phi_{kl} q_j + q_l p_k \Phi_{kj}]. \quad (2.14)$$

Physiquement, ces quatre coefficients correspondent aux 4 paramètres de Stokes  $I$ ,  $Q$ ,  $U$  et  $V$  de la lumière diffusée. La présence de tenseurs autres que le tenseur identité dans l'expression de  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  implique que la lumière diffusée devient polarisée en présence d'un champ magnétique. Bien entendu, en l'absence de champ magnétique,  $\delta\Gamma_{lj}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) \propto \delta_{lj}$  car la lumière diffusée est dépolarisée en diffusion multiple.

Le coefficient de diffusion est finalement obtenu par une relation de Kubo [Mah90, TMH96]

$$\mathbf{D} \cdot \mathbf{q} = v_E \frac{\pi c_0}{\omega^2} \sum_{\mathbf{p}} \mathbf{p} \text{Tr} \mathbf{G}(\mathbf{p}, \mathbf{B}) \cdot \Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}, \mathbf{B}) = v_E \ell \int \frac{d^2 \hat{\mathbf{p}}}{4\pi} \hat{\mathbf{p}} \text{Tr} \Gamma(\hat{\mathbf{p}}, \mathbf{q}, \mathbf{B}). \quad (2.15)$$

Cette relation montre que seule la trace de  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  intervient dans le coefficient de diffusion, dont la

partie magnétique est proportionnelle à  $a_1$ . Une équation fermée peut être obtenue pour ce coefficient  $a_1$ , qui donne (voir l'appendice A)

$$a_1 = \frac{\pi \int_0^\pi d\theta \sin^3 \theta F_1(\theta)}{(1 - \langle \cos \theta \rangle)^2}. \quad (2.16)$$

La trace de  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  fournit le coefficient de diffusion d'après l'Eq. (2.15)

$$D_{ij}(\mathbf{B}) = \frac{1}{3} v_E \frac{\ell}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \delta_{ij} + \frac{1}{3} v_E a_1 \ell \varepsilon_{ijk} \hat{B}_k. \quad (2.17)$$

On retrouve bien le résultat du modèle scalaire car d'après Eq. (2.16) et (2.6),  $a_1 = A_1 / (1 - \langle \cos \theta \rangle)^2$ . Pour obtenir par le calcul le libre parcours moyen magnéto-transverse  $\ell_\perp$ , une théorie scalaire était donc suffisante. L'avantage de la seconde formulation est qu'elle permet de traiter des cas plus complexes où la polarisation de la lumière diffusée intervient explicitement. L'application de cette théorie à des expériences sur l'Effet Hall Photonique fait l'objet des sections suivantes.

## 2.3 Dispositif expérimental

Une représentation de la géométrie utilisée pour l'observation de l'Effet Hall Photonique est donnée à la figure 2.1. L'échantillon a la forme d'un cylindre dont l'axe est dirigé dans la direction de la lumière incidente  $\mathbf{k}$ , direction qui est perpendiculaire au champ magnétique appliqué. La lumière incidente est non-polarisée. Le champ magnétique et la direction incidente de la lumière définissent un plan, et on appelle  $I^+$  l'intensité diffusée au dessus de ce plan et  $I^-$  la même intensité diffusée au dessous de ce plan. Dans les deux cas, la lumière diffusée est collectée au moyen de fibres optiques à la surface d'un détecteur, en général une photo-diode ou un photo-multiplicateur, qui intègre la lumière diffusée sur toutes les directions émergentes possibles. L'expérience permet de mesurer les intensités  $I^+$  et  $I^-$ , ainsi que la part de la différence d'intensité  $\Delta I(\mathbf{B}) = I^+(\mathbf{B}) - I^-(\mathbf{B})$  linéaire en champ magnétique. On appelle  $\eta$  la quantité représentant cette différence normalisée par rapport à la demi-somme des intensités diffusées en l'absence de champ notée  $I_0$ , soit

$$\eta = \frac{2(I^+(\mathbf{B}) - I^-(\mathbf{B}))}{I^+(\mathbf{B} = 0) + I^-(\mathbf{B} = 0)} = \frac{\Delta I(\mathbf{B})}{I_0}. \quad (2.18)$$

Considérons les intensités spécifiques dans deux directions symétriques par rapport au plan  $(\mathbf{k}, \mathbf{B})$ . La luminance peut se décomposer dans l'approximation de diffusion en une partie isotrope et un flux. Dans la différence  $\Delta I(\mathbf{B})$ , les contributions isotropes des intensités spécifiques vont s'annuler, alors que les flux induits par le champ magnétique s'ajoutent, c'est pourquoi cette expérience mesure effectivement un *courant* de lumière diffusée et non pas simplement une intensité diffusée. Au dénominateur au contraire, seule la partie isotrope de la luminance intervient.

La différence  $\Delta I(\mathbf{B})$  est mesurée expérimentalement au moyen d'une détection synchrone. Cela a au moins deux avantages: d'une part le gain énorme de l'appareil permet de mesurer des signaux relatifs très faibles jusqu'à  $\eta \simeq 10^{-7}$  environ, d'autre part l'appareil est synchronisé par rapport à la référence fournie par le champ magnétique, ce qui permet de mesurer la phase du signal par rapport au champ magnétique. Cette phase est la marque expérimentale d'un signal "réel", et permet d'éliminer un signal produit par du bruit ou par un autre artéfact. En effet, pour un signal "réel", cette phase mesurée par rapport à celle du champ magnétique, vaut  $0^\circ$  ou  $180^\circ$ , ce qui définit le signe de l'Effet Hall Photonique. Contrairement à l'Effet Hall classique, dont le signe ne dépend que du signe de la charge des porteurs (électrons ou trous), des changements de signe de l'Effet Hall Photonique ont été observés en fonction de presque tous les paramètres physiques accessibles expérimentalement (constante de Verdet, indice relatif, concentration des diffuseurs, taille des diffuseurs, longueur d'onde et même polarisation incidente de la lumière à la partie III).

En l'absence de champ magnétique, on peut être surpris de constater que l'expérience conduit à  $\Delta I(\mathbf{B} = 0) \neq 0$ . Cela traduit une dissymétrie dans la lumière diffusée par l'échantillon et recueillie dans les fibres optiques qui transportent  $I^+$  et  $I^-$ . Le dispositif expérimental permet de régler séparément le gain sur les deux voies  $I^+$  et  $I^-$ , ce qui permet de minimiser cette différence, ce qu'on a intérêt à faire lorsqu'on cherche à mesurer un signal faible dans le signal différence  $\Delta I(\mathbf{B})$ . On peut d'ailleurs noter qu'on n'a pas non plus de tension Hall nulle en l'absence de champ magnétique dans le cas de l'Effet Hall classique. En effet en général, les deux contacts qui servent à la mesure de tension Hall ne sont pas nécessairement sur les mêmes équipotentielles (dont la position précise résulte des conditions aux limites du potentiel sur la jonction semi-conductrice lorsqu'un courant la traverse).

## 2.4 Premières expériences

Dans les premières expériences mettant en évidence l'Effet Hall Photonique de 1995, les matériaux utilisés comme diffuseurs étaient des terres rares comme  $\text{CeF}_3$  et  $\text{EuF}_2$ . Comme ces matériaux sont paramagnétiques, la constante de Verdet est inversement proportionnelle à la température, ce qui a permis de vérifier pour ces matériaux la linéarité de l'Effet Hall Photonique avec la constante de Verdet en changeant la température [RT96]. Les matériaux choisis sont transparents, et leur dichroïsme circulaire magnétique (MCD) est si faible qu'il n'est pas mesurable. La linéarité de l'Effet Hall Photonique avec le champ magnétique et le signe de l'effet ont été vérifiés soigneusement. Les diffuseurs ont un diamètre allant jusqu'à  $5\mu\text{m}$ , c'est à dire que ce sont des diffuseurs Mie à la longueur d'onde utilisée  $\lambda_0 = 457\text{nm}$  dans le vide, car le paramètre de taille vaut environ  $x \approx 40$ . Le milieu porteur est du glycérol, qui a une constante de Verdet bien plus faible que celle de  $\text{CeF}_3$  (les valeurs des constantes de Verdet et des indices de réfraction sont données dans le tableau 2.2).

La dépendance de l'Effet Hall Photonique en fonction de la fraction volumique, extraite de l'article de Rikken *et al.* (1996), est présentée sur la partie droite de la figure 2.2. La courbe mesurée est

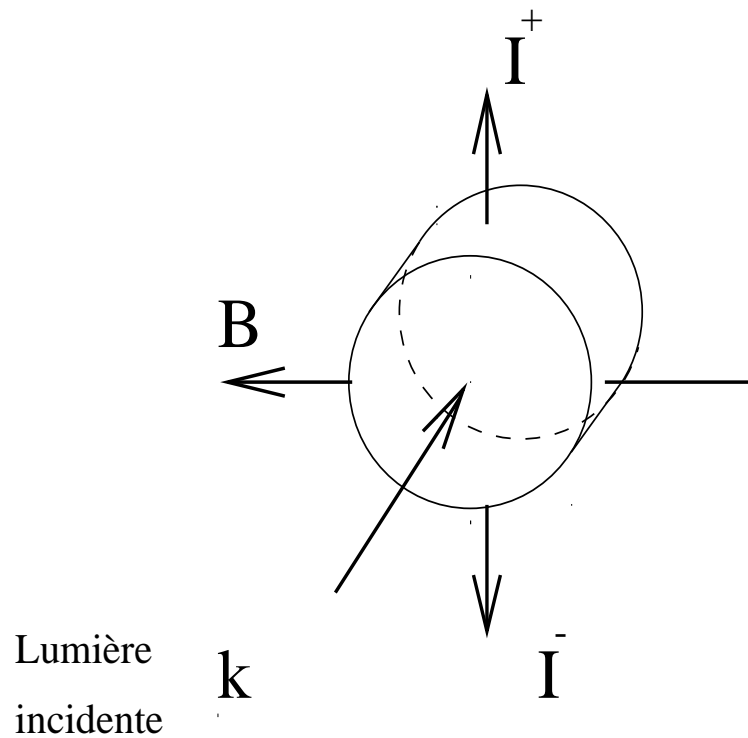


FIG. 2.1 - Représentation schématique de la géométrie de l'Effet Hall Photonique. L'échantillon est approximativement cylindrique, son axe est dirigé selon la direction de lumière incidente d'intensité  $\mathbf{k}$ . Les intensités de la lumière diffusée, au dessus (respectivement au dessous) du plan formé par le champ magnétique  $\mathbf{B}$  et le vecteur d'onde de la lumière incidente sont notées  $I^+$  (respectivement  $I^-$ ). La différence entre ces deux intensités  $\Delta I(\mathbf{B})$ , est mesurée en fonction du champ magnétique. Cette mesure est l'équivalent d'une mesure de courant Hall pour l'Effet Hall classique produit par le passage d'un courant dans un semi-conducteur sous champ magnétique.

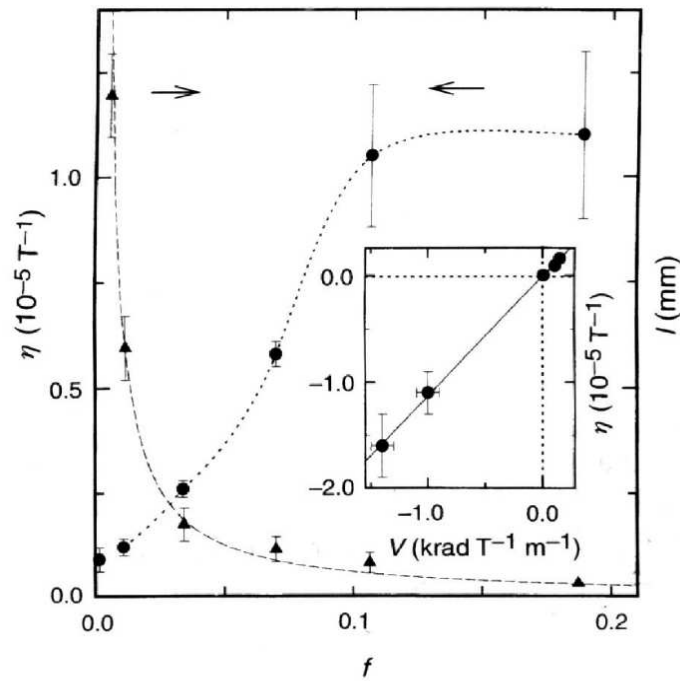


FIG. 2.2 - Figure extraite de l'article de Rikken et al. (1996), montrant la dépendance de l'Effet Hall Photonique normalisé  $\eta$  et du libre parcours moyen de transport  $\ell^*$  en fonction de la fraction volumique  $f$ , pour un échantillon de  $CeF_3$  dans du glycérol à 77K. Le libre parcours moyen est mesuré au moyen d'une sphère intégratrice, avec une incertitude de l'ordre de 30%. La ligne pointillée sur la partie gauche est un ajustement utilisant la dépendance attendue en  $1/f$  du libre parcours moyen, la ligne pointillée sur la partie droite relie simplement les points expérimentaux. Le médaillon montre la dépendance de  $\eta$  en fonction de la constante de Verdet pour trois échantillons, de gauche à droite:  $EuF_2$ ,  $CeF_3$ ,  $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$  et  $ZnS$ , tous dans le glycérol. La droite est obtenue par une régression linéaire à partir des points expérimentaux.

croissante et semble parvenir sur les deux derniers points à un plateau. La mesure du libre parcours moyen au moyen d'une sphère intégratrice sur la gauche de la courbe montre que ce dernier est plus grand que la taille caractéristique de l'échantillon (environ 0.5mm), ce qui signifie que les deux premiers points sont dans le régime de diffusion simple alors que les deux derniers sont dans un régime de diffusion multiple. Il est bon de souligner ici la difficulté de faire des déterminations précises de libre parcours moyen de transport à partir de mesures en transmission, l'incertitude systématique estimée pour ces mesures est de 30%.

## 2.5 Interprétation

Les modèles théoriques présentés plus haut ne donnent accès qu'à la longueur caractéristique  $\ell_{\perp}$  pour la diffusion magnéto-transverse, il reste encore à relier cette longueur à la quantité réellement mesurée qui est  $\eta$ . On a recours pour cela à la résolution de l'équation de diffusion dans la géométrie cylindrique (qui est celle de l'échantillon) en prenant en compte les conditions aux limites appropriées comme à la section 1.4.1. Une résolution numérique de l'équation de diffusion pour la géométrie cylindrique, conduit à l'expression suivante [RT96]

$$\eta \approx 5 \frac{\ell_{\perp}}{R}, \quad (2.19)$$

où  $R$  est le rayon du cylindre. Le facteur 5 prend en compte la géométrie de l'échantillon, à travers les trois longueurs du problème, à savoir la longueur du cylindre  $L$ , son rayon  $R$  (typiquement  $R = 0.5\text{mm}$ ), et le libre parcours moyen de transport de la lumière  $\ell^*$ . L'applicabilité de l'équation de diffusion n'a pas fait l'objet d'autres tests expérimentaux que la mesure de l'Effet Hall Photonique elle-même, et nous l'utiliserons aussi bien pour discuter le modèle Rayleigh ou le modèle Mie pour la diffusion magnéto-transverse.

La valeur de  $\ell_{\perp}$  fournie par le modèle théorique de diffusion magnéto-transverse pour des diffuseurs Rayleigh, selon l'Eq. (2.2), est environ  $\ell_{\perp}/B \simeq 0.1 \text{ nmT}^{-1}$ , avec le bon signe mais un ordre de grandeur au dessous de la valeur mesurée expérimentalement. La différence est interprétée dans la Ref. [RT96] comme étant liée au fait que les particules diffusantes sont des diffuseurs de Mie alors que la théorie ne considère que des diffuseurs Rayleigh. Par ailleurs le modèle Rayleigh ne permet pas non plus de rendre compte de la linéarité observée entre l'Effet Hall Photonique et la constante de Verdet (le médaillon dans la figure 2.2), car les points correspondent à des milieux d'indices différents, ce qui d'après l'Eq. (2.2) ne devrait pas conduire à un comportement linéaire en fonction de la constante de Verdet.

Le modèle théorique de diffusion magnéto-transverse pour des diffuseurs Mie discuté à la section 2.2 est capable de calculer le rapport de  $\ell_{\perp}/\ell^*$  en fonction du paramètre de taille ou de l'indice des sphères. La figure 2.3a représente ce rapport en fonction du paramètre de taille  $x$  pour l'indice de

réfraction de l'échantillon de  $\text{CeF}_3$ . Dans la limite de Rayleigh, la théorie prévoit que  $\ell_{\perp}/\ell^* \propto x^5$ , ce qui correspond à la partie négative au tout début de la courbe. La figure 2.3a contient également le comportement de  $\ell_{\perp}/\ell^*$  dans le régime de Rayleigh-Gans, qui ne suppose pas  $x < 1$  contrairement au régime Rayleigh, mais seulement  $|m - 1| \ll 1$  et  $2x|m - 1| \ll 1$ . Cette courbe prouve qu'un ensemble de diffuseurs Rayleigh-Gans possède lui aussi l'Effet Hall Photonique.

Au voisinage du paramètre de taille expérimental (environ  $x \approx 40$ ), le modèle de Mie pour la diffusion magnéto-transverse conduit à  $\ell_{\perp}/\ell^* = +0.05 V_0 B \lambda$ , comme on peut le voir sur la figure 2.3a (ici  $\lambda$  désigne la longueur d'onde de la lumière dans le milieu porteur et non dans le vide). Cela correspond à  $\ell_{\perp}^*/\ell^* = -1.7 \cdot 10^{-5}/T$ . La valeur expérimentale tirée de la figure 2.2, est  $\ell_{\perp}/\ell^* \approx -1.1 \pm 0.3 \cdot 10^{-5}/T$  pour une suspension 10 % en fraction volumique. Dans les deux modèles, il est bon de noter que la biréfringence du  $\text{CeF}_3$  est négligée (celle-ci est faible en principe mais pas nulle). En fait, la cause principale de l'incertitude est liée à la détermination de  $\ell_{\perp}$  ou de  $\ell^*$  sur la base de la loi de Fick qui peut être entachée d'une erreur systématique pouvant aller jusqu'à un facteur 2. Un autre facteur d'imprécision tient à la distribution de taille, qui est assez large dans cet échantillon, et qui élimine très probablement toutes les oscillations visibles sur la courbe de  $\ell_{\perp}/\ell^*$  de la figure 2.3a, en fonction du paramètre de taille  $x$ . Ces oscillations qui portent le nom de "ripples", interviennent aussi dans la section efficace ou dans le libre parcours moyen de la théorie de Mie classique (voir figure 3.2 dans la partie I), et sont liées aux résonances dans les diverses ondes partielles qui interviennent dans la section efficace [dH80a]. Dans ces conditions, nous constatons sur cet exemple que l'accord entre le modèle de Mie et l'expérience est satisfaisant, et améliore nettement la prédiction du modèle Rayleigh [RT96].

Nous appliquons à présent ce modèle à d'autres échantillons que  $\text{CeF}_3$  en particulier à ceux du médaillon de la figure 2.2, pour lesquels la dépendance de l'Effet Hall Photonique en fonction de la constante de Verdet ne pouvait être expliquée dans le cadre du modèle Rayleigh pour la diffusion magnéto-transverse. Il s'agit d'échantillons polydisperses contenant  $\text{CeF}_3, \text{ZnS}, \text{Al}_2\text{O}_3, \text{TiO}_2$  et  $\text{EuF}_2$ , tous en suspension dans le glycérol. Certaines caractéristiques physiques de ces matériaux, les prédictions théoriques pour  $\ell_{\perp}/\ell^*$  pour les modèles de Mie et de Rayleigh notés respectivement avec un indice "Mie" ou "Ray", et les mesures expérimentales  $(\ell_{\perp}/\ell^*)_{exp}$  sont reportées dans le tableau 2.2. Les estimations pour  $(\ell_{\perp}/\ell^*)_{exp}$  sont déduites des mesures de  $\eta$  du médaillon de la figure 2.2 et des mesures du libre parcours moyen données dans le tableau au moyen de l'Eq. (2.19). Nous constatons que le modèle de Mie reproduit correctement l'ordre de grandeur et le signe attendu pour l'Effet Hall Photonique, avec une précision améliorée par rapport au modèle Rayleigh. L'accord entre le modèle de Mie et l'expérience est en général voisin d'un facteur 2, ce qui est très raisonnable compte tenu des sources d'incertitudes notées plus haut. Les plus grands écarts entre la théorie et l'expérience sont obtenus pour  $\text{TiO}_2$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Dans le premier cas, la courbe théorique de  $\ell_{\perp}/\ell^*/(V_0 B \lambda)$ , oscille de façon très importante en fonction du paramètre de taille  $x$ , comme on peut le voir à la figure 2.3b, ce qui rend l'estimation de  $\ell_{\perp}$  extrêmement dépendante de la distribution de taille (contrairement à la



Matériau	n	$V_0$ (rad/T.m)	a( $\mu$ m)	$\ell^*$	$(\ell_{\perp}/\ell^*)_{Ray}T^{-1}$	$(\ell_{\perp}/\ell^*)_{Mie}T^{-1}$	$(\ell_{\perp}/\ell^*)_{exp}T^{-1}$
Glycérol	1.48	6.3	-	-	-	-	-
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.77	10	0.5	20	$1.2 \cdot 10^{-8}$	$3.3 \cdot 10^{-7}$	$2 \pm 1 \cdot 10^{-6}$
TiO <sub>2</sub>	2.7	100	1	10	$4.2 \cdot 10^{-8}$	$2.5 \cdot 10^{-6}$	$1.5 \cdot 10^{-5}$
ZnS	2.37	150	4	15	$6.5 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$6.7 \pm 0.3 \cdot 10^{-6}$
EuF <sub>2</sub>	1.58	-1600	5	100	$-1 \cdot 10^{-6}$	$-2 \cdot 10^{-5}$	$-1.5 \pm 0.3 \cdot 10^{-5}$
CeF <sub>3</sub>	1.62	-1100	2	100	$-6.5 \cdot 10^{-7}$	$-1.7 \cdot 10^{-5}$	$-1.1 \pm 0.3 \cdot 10^{-5}$

TAB. 2.2 - Comparaison entre les modèles de Mie et Rayleigh pour la diffusion magnéto-transverse, et les mesures d'Effet Hall Photonique de la figure 2.2. Il s'agit d'échantillons polydisperses contenant CeF<sub>3</sub>, ZnS, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> et EuF<sub>2</sub> tous en suspension dans le glycérol, étudiés à la longueur d'onde de 457nm. Les colonnes du tableau représentent de gauche à droite, l'indice n, la constante de Verdet V<sub>0</sub>, le rayon estimé des diffuseurs a; une mesure expérimentale du libre parcours moyen  $\ell^*$ , la valeur de  $(\ell_{\perp}/\ell^*)_{Ray}T^{-1}$  d'après le modèle de Rayleigh, la valeur de  $(\ell_{\perp}/\ell^*)_{Mie}T^{-1}$  correspondante pour le modèle de Mie, et enfin la valeur expérimentale de  $(\ell_{\perp}/\ell^*)_{exp}T^{-1}$  déduite des mesures d'Effet Hall Photonique de la figure 2.2.

courbe de la figure 2.3a pour CeF<sub>3</sub> qui varie peu dans le domaine de paramètre de taille considéré). L'estimation théorique de  $\ell_{\perp}$  pour TiO<sub>2</sub> qui figure dans le tableau 2.2 correspond à une moyenne sur la distribution de taille pour des paramètres de taille  $10 > x > 0$ . Pour cet échantillon de TiO<sub>2</sub>, la distribution de taille explique probablement l'écart entre la valeur théorique et la valeur expérimentale. En revanche, pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, la courbe de  $\ell_{\perp}/\ell^*/(V_0B\lambda)$  en fonction de  $x$  est assez similaire à celle de CeF<sub>3</sub>, mais le signal expérimental est très faible ( $\eta \simeq 10^{-7}$ ) et donc l'incertitude sur la valeur expérimentale est grande. De plus dans ce dernier cas, la constante de Verdet est du même ordre que celle du milieu porteur (le glycérol), alors que la théorie suppose que le milieu porteur est dépourvu de propriétés magnétiques.

## 2.6 Dépendance en fonction de la concentration

Le modèle de Mie permet d'expliquer la croissance de la courbe en fonction de la fraction volumique visible à la figure 2.2. En effet, entre la gauche de la courbe et la droite, on passe d'un régime de diffusion simple à un régime de diffusion double. D'après le résultat de l'Eq. (2.17), l'Effet Hall Photonique en régime de diffusion multiple est augmenté par le facteur d'amplification  $1/(1 - \langle \cos \theta \rangle)^2$ . Ce facteur est significatif, puisqu'on estime que l'échantillon de CeF<sub>3</sub> a un facteur d'anisotropie d'environ  $\langle \cos \theta \rangle \simeq 0.9$ . A plus haute concentration, la figure 2.2 semble montrer l'apparition d'un plateau, bien que limité seulement à deux points expérimentaux. Dans le modèle Rayleigh, l'Effet Hall Photonique tend vers un plateau dans le régime de diffusion multiple.

Au contraire, dans le modèle de Mie, l'Effet Hall Photonique devrait décroître comme  $1/f$  à haute

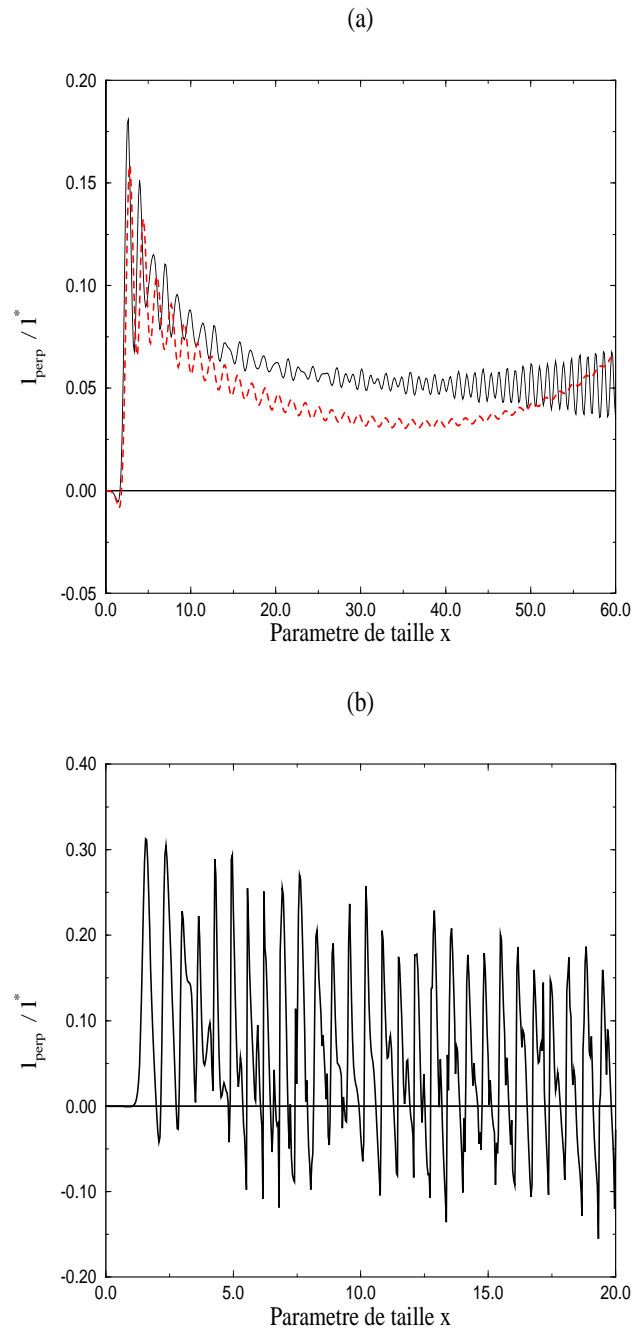


FIG. 2.3 - Rapport de  $\ell_{\perp}/\ell^* = (1 - \langle \cos \theta \rangle) a_1$  en fonction du paramètre de taille  $x = 2\pi a/\lambda$  des sphères de Mie, normalisé par  $V_0 B \lambda$ . L'indice correspond à des particules de (a)  $\text{CeF}_3$  ou de (b)  $\text{TiO}_2$  dans du glycérol. Sur la figure (a), on a représenté en outre en ligne pointillée, cette même courbe dans le régime de Rayleigh-Gans ( $m \rightarrow 1$ ) pour lequel une valeur finie du rapport est obtenue. Dans le cas de  $\text{TiO}_2$ , les oscillations de  $\ell_{\perp}/\ell^*$  rendent toute estimation de  $\ell_{\perp}$  très dépendante de la distribution de taille.

concentration (car  $\ell_{\perp} \propto \ell^* \propto 1/f$ ). Cette différence entre les deux modèles a une origine claire: un unique diffuseur de Mie possède l'Effet Hall Photonique, alors qu'un unique diffuseur Rayleigh ne le possède pas. En revanche, deux diffuseurs Rayleigh le possèdent (voir appendice I.A). Il faut donc au moins deux diffuseurs, d'où en moyenne le facteur  $f$  supplémentaire pour le cas Rayleigh correspondant à une probabilité moyenne de trouver une particule dans le volume expérimental. Pour tenter d'éclaircir ce point expérimentalement, A. Napierala du LCMi a réalisé des expériences consistant à étudier la dépendance de l'Effet Hall Photonique en fonction de la fraction volumique à plus haute concentration que dans les premières expériences et en gardant toujours le même matériau (c'est à dire des diffuseurs Mie composés de  $\text{CeF}_3$ ) [Nap98]. Cette expérience est reportée à la figure 2.4. Le milieu porteur est une colle d'indice  $n = 1.564$  et la longueur d'onde dans le vide utilisée est  $\lambda_0 = 472\text{nm}$ . A part le domaine de concentration et le milieu porteur qui a indice voisin de celui du glycérol, il s'agit essentiellement de la même expérience, que celle reportée à la figure 2.2.

L'expérience est difficile à interpréter, car seuls les points de concentration supérieure à 0.25 sont de façon certaine en diffusion multiple. Sur la partie gauche de la courbe, le comportement linéaire en fonction de  $f$  est probablement lié à la diffusion double, la limite de cette droite pour  $f \rightarrow 0$  donne une valeur finie et positive qui est en accord avec la valeur finie attendue pour l'Effet Hall Photonique en diffusion simple. Entre  $f = 0.25$  et  $0.45$ ,  $\eta$  varie peu mais au delà, on observe une décroissance nette, qui pourrait être la trace du comportement attendu en  $1/f$  pour l'Effet Hall Photonique en diffusion multiple dans le modèle de Mie. Malheureusement à ces concentrations, l'échantillon n'est plus parfaitement homogène. Il y a peut-être une contribution de la diffusion par ces inhomogénéités (des bulles d'air notamment). Par ailleurs la relation entre le libre parcours moyen et la concentration s'écarte de la loi en  $1/f$  à haute concentration. Dans ce régime, il n'y a pas de théorie pour l'Effet Hall Photonique et même une théorie pour  $\ell$  et  $\ell^*$  devient sophistiquée (voir notamment la contribution de Bush et Soukoulis dans la Ref. [Gro98]).

Enfin, d'autres expériences dues à G. Düchs ont montré l'existence de l'Effet Hall Photonique Inverse [D98]. Dans ces expériences, les diffuseurs ne sont pas Faraday-actifs mais le milieu l'est. L'effet observé est typiquement un ordre de grandeur plus grand que dans le cas direct considéré jusqu'ici, mais surtout il change de signe entre le régime de diffusion simple et celui de diffusion multiple. Les modèles de Mie ou Rayleigh présentés plus haut pour la diffusion magnéto-transverse n'ont bien entendu aucune raison de pouvoir s'appliquer au problème inverse, qui est un problème bien différent. D'ailleurs, le changement de signe entre les régimes de diffusion simple et multiple est tout à fait inattendu et ne peut pas s'expliquer dans le cadre de ces modèles, qui prévoient un coefficient de proportionnalité positif pour l'Effet Hall Photonique entre ces deux régimes.

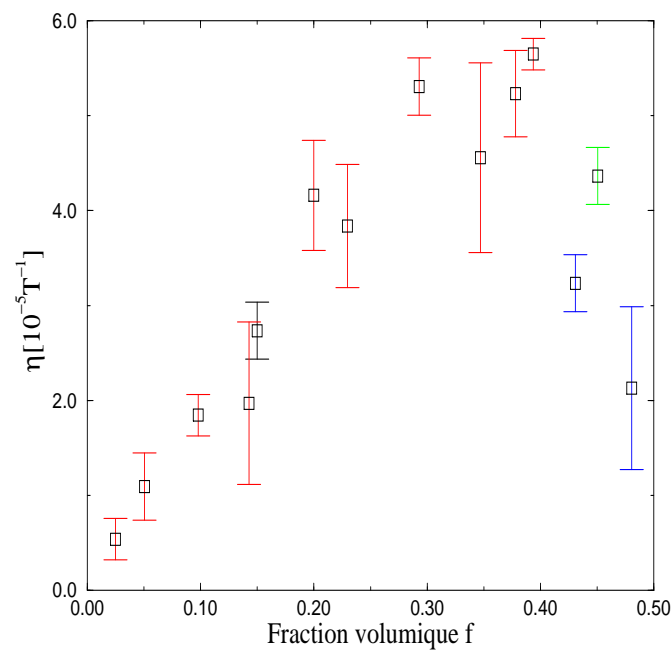


FIG. 2.4 - Effet Hall Photonique en fonction de la fraction volumique pour des échantillons polydisperses de  $CeF_3$  dans le régime de Mie. Le milieu porteur est une colle d'indice  $n = 1.564$  et la longueur d'onde dans le vide utilisée est  $\lambda_0 = 472\text{nm}$ . On observe une croissance quasi-linéaire en concentration, jusqu'à  $f = 0.25$  environ. Au delà on entre dans le régime de diffusion multiple, où on observe une décroissance de  $\eta$  à haute concentration. Cette expérience a été réalisée par A. Napierala du LCMI.

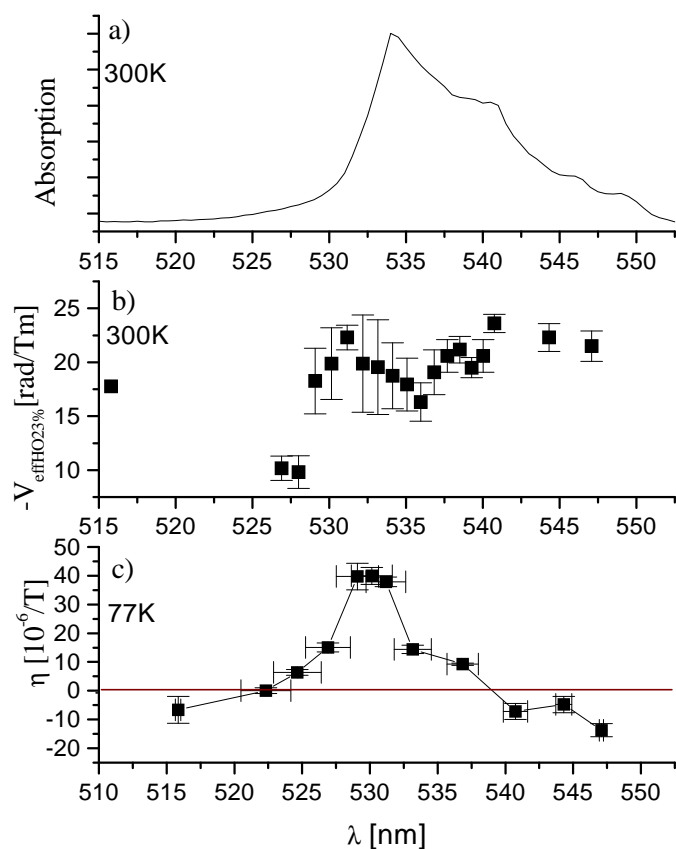


FIG. 2.5 - Mesures réalisées par S. Wiebel avec un échantillon contenant 23% de  $\text{HoF}_3$  en volume au voisinage d'un raie d'absorption du matériau: (a) absorption mesurée à température ambiante, (b) partie réelle de la constante de Verdet mesurée à température ambiante, (c) Effet Hall Photonique  $\eta$  mesurée à 77K.

## 2.7 Dépendance en fonction de l'absorption

Cette section présente et discute des expériences et des simulations portant sur la dépendance de l'EHP en fonction de l'absorption dans les diffuseurs. Les expériences ont été réalisées par S. Wiebel du LCMi et sont décrites dans la Ref. [Wie99]. Les simulations ont été réalisées à partir du modèle discuté à la section 2.2. Cette étude est le pendant de la section 2.5, dans laquelle des mesures de l'EHP pour différentes valeurs de la partie réelle de l'indice du diffuseur ont été discutées. Dans le cas des diffuseurs absorbants, c'est la partie imaginaire de l'indice qui est modifiée.

Seul le cas où les diffuseurs sont absorbants est retenu ici, bien que S. Wiebel ait également réalisé des expériences où l'absorption est présente dans la matrice qui contient les diffuseurs au lieu de l'être dans les diffuseurs eux-mêmes. En effet, il est important de noter que l'indice relatif qui intervient dans

la solution de Mie classique (ou dans la solution de Mie sous champ magnétique) est défini comme le rapport de l'indice du diffuseur, qui peut être complexe, sur *la partie réelle* de l'indice du milieu entourant le diffuseur. La solution classique ne s'applique donc pas au cas où le milieu entourant le diffuseur est absorbant (une des difficultés tient à ce que l'onde incidente de la solution classique n'est plus une onde plane lorsque le milieu est absorbant). C'est la raison pour laquelle les expériences dans ce cas là sont bien plus difficiles à interpréter théoriquement que dans le cas où les diffuseurs sont absorbants. Ce cas là n'est pourtant pas sans espoir, la diffusion de Mie classique dans un milieu absorbant a été étudiée en détails par G. Fardella. Celle-ci peut être abordée au moyen du concept d'onde inhomogène [Far95].

Les expériences ont été réalisées avec des échantillons contenant environ une fraction volumique de 23% de terres rares (du  $\text{HoF}_3$ ). La longueur d'onde choisie correspond à une raie d'absorption de ce matériau. De cette façon, l'absorption dans le diffuseur est modifiée en variant la longueur d'onde de la lumière incidente, sur une gamme de longueurs d'onde où la matrice contenant les diffuseurs est peu absorbante. Sur la figure 2.5, on a représenté des mesures de l'absorption, de la partie réelle de la constante de Verdet des diffuseurs et de l'EHP en fonction de la longueur d'onde. L'absorption et la partie réelle de la constante de Verdet ont été mesurées à température ambiante, et l'EHP à basse température. La constante de Verdet à basse température est reliée à la constante de Verdet à haute température par un facteur d'amplification positif et indépendant de la longueur d'onde. La partie imaginaire de la constante de Verdet des diffuseurs a été évaluée et est tout à fait négligeable. Loin du pic d'absorption, on remarque que l'EHP est négatif, au voisinage du pic d'absorption, l'EHP est positif. Par ailleurs, on constate que l'EHP n'est visiblement pas proportionnel à la constante de Verdet comme c'est le cas loin d'une raie d'absorption, mais suit plutôt la courbe d'absorption avec en plus un changement de signe en fonction de l'absorption.

L'absorption modifie l'EHP à deux niveaux différents. D'une part au niveau de la diffusion simple car l'indice est modifié, et d'autre part au niveau de la solution de l'équation de diffusion par l'intermédiaire du facteur géométrique égal à 5 dans l'Eq. (2.19). En effet, en présence d'absorption, une longueur caractéristique supplémentaire intervient dans la solution de l'équation de diffusion, c'est la longueur d'absorption en diffusion multiple  $L_a$  définie à l'Eq. (1.10). Le facteur géométrique dans l'Eq. (2.19) augmente lorsque l'absorption augmente. Qualitativement, on peut dire que l'absorption augmente le gradient longitudinal d'intensité dans le milieu, qui est en quelque sorte l'équivalent de la tension appliquée à la jonction dans une expérience sur l'effet Hall électronique. Dans le cas de l'EHP, c'est ce gradient longitudinal d'intensité qui est à l'origine du courant magnéto-transverse. Il est important de noter que l'équation de diffusion même en présence d'absorption, ne peut expliquer le changement de signe de l'EHP, qui doit être expliqué au niveau de la diffusion simple.

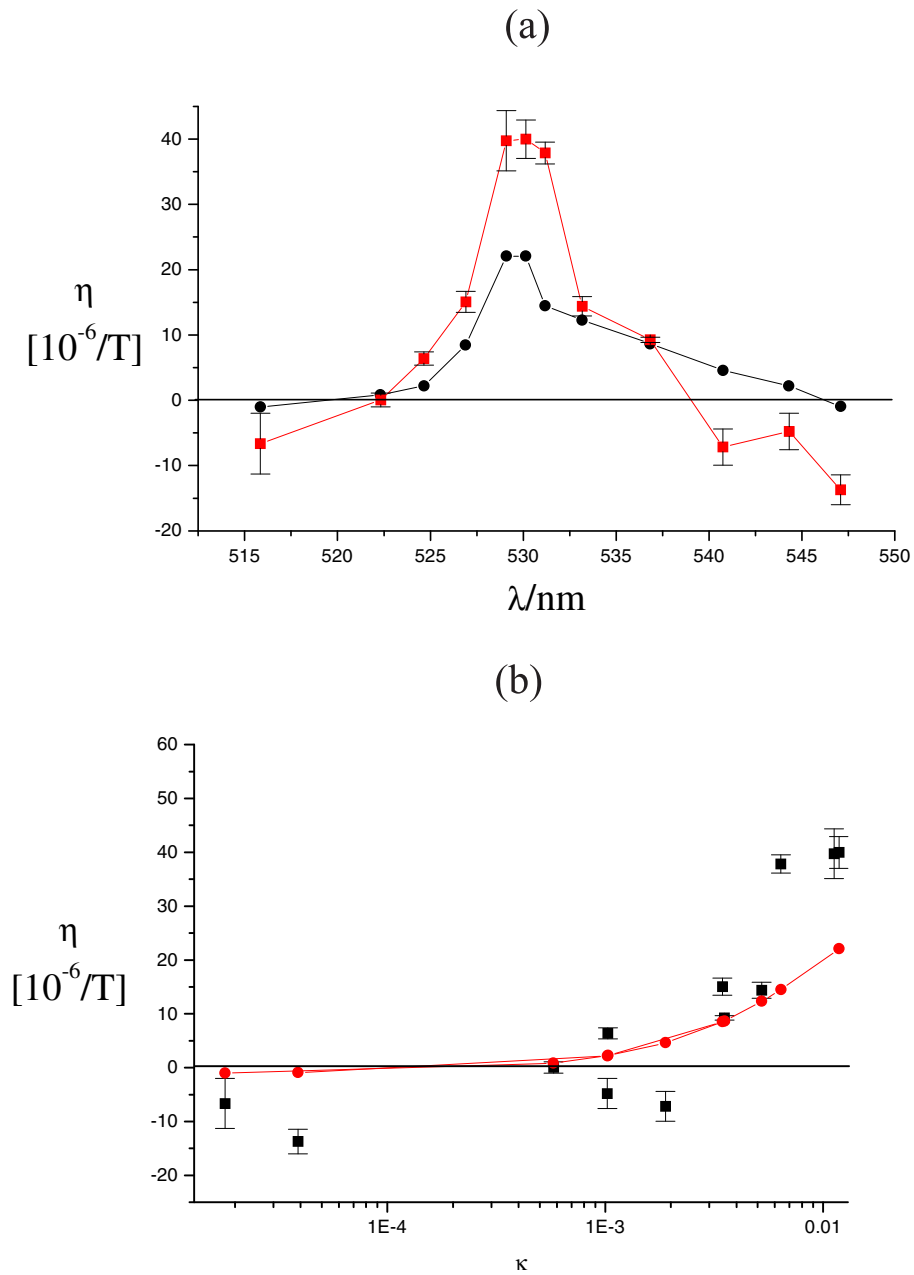


FIG. 2.6 - Comparaison entre les mesures d'Effet Hall Photonique (il s'agit des mesures de la figure 2.5) réalisées par S. Wiebel et des simulations à partir du modèle pour la diffusion magnéto-transverse discuté à la section 2.2. (a) L'EHP en fonction de la longueur d'onde, les mesures sont les carrés avec barres d'erreur et les ronds les simulations. (b) L'EHP en fonction de la partie imaginaire de l'indice des diffuseurs notée  $\kappa$ , il s'agit des mêmes points expérimentaux, les simulations apparaissent en trait continu.

Les expériences sont comparées à une simulation sur la base du modèle de la section 2.2 pour l'EHP à la figure 2.6. On a supposé que le facteur géométrique garde la valeur 5 utilisée à l'Eq. (2.19), quelle que soit la valeur de l'absorption considérée. Les simulations ont été réalisées en moyennant les courbes de l'Effet Hall Photonique sur un intervalle de paramètre de taille compris entre  $x = 20$  et  $x = 50$ , correspondant à des particules de rayon compris entre  $1\mu\text{m}$  et  $2.5\mu\text{m}$ . On constate un accord raisonnable entre les mesures et la solution théorique. En particulier, le modèle théorique reproduit le changement de signe de l'Effet Hall Photonique en fonction de l'absorption, ce qui est un point particulièrement important. Ce changement de signe est visible sur les points les plus à gauche ou les plus à droite de la figure 2.6. On remarque que l'écart entre les mesures et l'estimation théorique est notablement plus grand pour les mesures où l'absorption est la plus importante. Diverses explications peuvent être avancées dans la mesure où la méthode employée à la section 2.2 ne peut s'appliquer qu'en régime de diffusion multiple, lorsque l'absorption n'est pas trop forte, c'est à dire pour des situations où la longueur d'absorption en diffusion multiple  $L_a$  est beaucoup plus petite que la taille du système  $L$ . Au maximum du pic d'absorption des courbes de la figure 2.6, la longueur d'absorption  $L_a$  vaut environ  $30\mu\text{m}$  à comparer à la taille du système  $L = 0.5\text{mm}$ . La modification du facteur géométrique en présence d'absorption devrait encore améliorer l'estimation théorique utilisée à la figure 2.6, car ce facteur augmente pour des absorptions croissantes. Cette correction est significative, car on a estimé que le facteur géométrique augmente environ d'un facteur 2 entre les points les plus à gauche de la figure 2.6 où l'absorption est négligeable et le point correspondant à l'absorption maximale.



## Appendix A

# Transport mean free path for magneto-transverse light diffusion

Europhys. Lett., **45**(6):721-25, 1999

D. Lacoste and B. A. Van Tiggelen

*Laboratoire de Physique et Modélisation des Milieux Condensés, Maison des Magistères, B.P. 166,  
38042 Grenoble Cedex 9, France*

### Abstract

We derive an expression for the transport mean free path  $\ell_{\perp}^*$  associated with magneto-transverse light diffusion for a random collection of Faraday-active Mie scatterers. This expression relates the magneto-transverse diffusion in multiple scattering directly to the magneto-transverse scattering of a single scatterer.

Magneto-transverse light diffusion - more popularly known as the “Photonic Hall Effect” (PHE) - has been predicted theoretically some three years ago [1], and has been confirmed experimentally one year later [2]. Phenomenologically, the effect has many similarities to the well-known electronic Hall effect: Given a diffusion current  $\mathbf{J}$ , the presence of an external and constant magnetic field creates a flow in the “magneto-transverse” direction  $q\mathbf{B} \times \mathbf{J}$ , with  $q$  the charge of the current carriers. By the non-existence of photon charge, the physics of the PHE seems different, and compares perhaps better to the so-called Beenakker-Senftleben effect in dilute gazes [3]. The evident driver behind the electronic Hall effect is the Lorentz force acting on a charged particle while colliding with the impurities. According to Ref. [1] the PHE finds its origin in the Faraday effect for dielectric scatterers, that slightly changes their scattering amplitude. The charge  $q$  is replaced by a material parameter  $V$  with the symmetry of charge, quantifying the Faraday effect of the particle’s material. In a homogeneous medium the Faraday effect implies a rotation  $VB$  per unit length of the polarization vector of linearly polarized light. Two other magneto-optical effects in multiple scattering, such as the suppression of coherent backscattering in a magnetic field [4, 5], and “Photonic Magneto-Resistance” [6] are known to exist, and basically originate from the same Faraday effect.

In an isotropic medium, Fick’s phenomenological law relates the diffusion current to the energy-density gradient  $\nabla\rho$  according to  $\mathbf{J} = -D_0\nabla\rho$  [7].  $D_0$  is the conventional diffusion constant for radiative transfer and is usually related to the transport mean free path  $\ell^*$  and the transport velocity  $v_E$  according to  $D = \frac{1}{3}v_E\ell^*$ . The velocity is relevant only for dynamical experiments. In order to describe stationary phenomena like the PHE, we can put  $v_E = 1$ . Fick’s law applies to media much bigger than  $\ell^*$  and, when supplied by boundary conditions involving the incident flux, can be solved for the emerging current. In a magnetic field, the diffusion constant must be replaced by a second-rank tensor. By Onsager’s relation  $D_{ij}(\mathbf{B}) = D_{ji}(-\mathbf{B})$ , the part linear in the external magnetic field must be an antisymmetric tensor, and Fick’s law becomes,

$$\mathbf{J} = -\mathbf{D}(\mathbf{B}) \cdot \nabla\rho = -D_0\nabla\rho - D_{\perp}\mathbf{B} \times \nabla\rho. \quad (\text{A.1})$$

The term containing  $D_{\perp}$  describes a magneto-transverse diffusion current. In analogy to  $D_0$ , we shall define the transport mean free path  $\ell_{\perp}^*$  for magneto-transverse diffusion as  $D_{\perp} = \frac{1}{3}v_E\ell_{\perp}^*$ . For the electronic Hall effect,  $\ell_{\perp}^*$  would be proportional to the Hall conductivity  $\sigma_{xy}$ , whose sign is determined by the charge of the current carriers. Similarly,  $\ell_{\perp}^*$  of the PHE can have both signs depending on the scattering.

Anisotropy in the scattering cross-section - quantified by the familiar anisotropy factor  $\langle \cos\theta \rangle$  [8] - is well known to make the transport mean free path  $\ell^*$  different from the extinction length  $\ell$  [9]. The latter is the average distance between two subsequent scattering events. In this Letter we will show that the PHE can be understood as a generalization of this anisotropy factor to magneto light diffusion, which establishes a difference in scattering between “upward” and “downward” directions

(with respect to the plane of incident light and magnetic field). To this end we use our solution for the Faraday-active dielectric sphere [10] to relate the PHE in multiple scattering, quantified by  $\ell_{\perp}^*$ , directly to the PHE of one single particle. Although such a link may be physically clear, it is not evident from previous work [1]. A microscopic approach provides both the exact sign as well as the role of anisotropy, which will enable us to conclude this Letter with a realistic comparison to reported experiments [2].

The magneto-active dielectric sphere has been discussed by Ford et al. [11]. Experiments and symmetry arguments show the PHE to be linear in  $B$ . Therefore we have developed a linear perturbation formula for the scattering amplitude  $\mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\mathbf{B})$  of one magneto-active dielectric sphere [10]. The differential cross-section, proportional to the modulus squared of the scattering amplitude must satisfy the reciprocity relation  $d\sigma/d\Omega(\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p}', \mathbf{B}) = d\sigma/d\Omega(-\mathbf{p}' \rightarrow -\mathbf{p}, -\mathbf{B})$ . A magneto-cross-section proportional to  $(\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{B}})$  or  $(\hat{\mathbf{p}}' \cdot \hat{\mathbf{B}})$  is parity-forbidden since  $\mathbf{B}$  is a pseudo-vector and  $\mathbf{p}$  a vector. Together with the rotational symmetry of the sphere it must have the form,

$$\frac{1}{\sigma_{\text{tot}}} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p}', \mathbf{B}) = F_0(\theta) + \det(\hat{\mathbf{p}}, \hat{\mathbf{p}}', \hat{\mathbf{B}}) F_1(\theta), \quad (\text{A.2})$$

where  $\cos \theta = \hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{p}}'$ ,  $\sigma_{\text{tot}}$  is the total cross-section and  $\det(\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C}) = \mathbf{A} \cdot (\mathbf{B} \times \mathbf{C})$  the scalar determinant that can be constructed from three vectors. The second term in Eq. (A.2) will be called the magneto cross-section. For a small Rayleigh scatterer one finds  $F_1(\theta) \sim VB \cos \theta/k$ . The antisymmetry of this magneto cross-section between forward scattering and backscattering causes the PHE to vanish. The Mie solution breaks this symmetry and a PHE was seen to emerge [10].

We will use field techniques developed in Refs. [9, 12] to calculate the magneto-transverse transport mean free path for a random collection of identical Faraday-active dielectric spheres. The four-rank tensor  $L_{ijkl, \mathbf{p}\mathbf{p}'}(\Omega, \mathbf{q})$  linearly connects field correlations  $\langle E_i(\omega + \Omega/2, \mathbf{p} + \mathbf{q}/2) \bar{E}_j(\omega - \Omega/2, \mathbf{p} - \mathbf{q}/2) \rangle$  of incident and outgoing fields in space-time;  $\Omega$  is the Laplace of time, and  $\mathbf{q}$  is the Fourier variable of space. On long time and length scales ( $\Omega, \mathbf{q} \rightarrow 0$ ) and without absorption it takes the diffuse form,

$$L_{ijkl, \mathbf{p}\mathbf{p}'}(\Omega, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \frac{l_{ik}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) l_{lj}(-\mathbf{p}', -\mathbf{q}, -\mathbf{B})}{-i\Omega + \mathbf{q} \cdot \mathbf{D}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{q}}. \quad (\text{A.3})$$

The symmetric form of the nominator is imposed by the reciprocity principle. Rigorous transport theory yields [12],

$$\mathbf{l}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = i[\mathbf{G}(\mathbf{p}, \mathbf{B}) - \mathbf{G}^*(\mathbf{p}, \mathbf{B})] - i\mathbf{G}(\mathbf{p}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{\Gamma}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}, \mathbf{B}). \quad (\text{A.4})$$

$\mathbf{G}(\mathbf{p}, \mathbf{B})$  denotes the Dyson Green's tensor of the ensemble-averaged electric field to be specified later; the asterisk denotes hermitean conjugation in polarization space. We left out explicit reference to the optical frequency  $\omega = pc_0$ .

The tensor  $\mathbf{\Gamma}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  is linear in  $\mathbf{q}$ . In real space, the wavenumber  $\mathbf{q}$  corresponds to the gradient in Fick's law (A.1). The exact relation between  $\mathbf{\Gamma}$  and the diffusion tensor is [1, 12],

$$\mathbf{D}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{q} = \frac{\pi}{k^2} \sum_{\mathbf{p}} \mathbf{p} \text{Tr} \mathbf{G}(\mathbf{p}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{\Gamma}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}, \mathbf{B}) = \ell \int \frac{d^2 \hat{\mathbf{p}}}{4\pi} \hat{\mathbf{p}} \text{Tr} \mathbf{\Gamma}(\hat{\mathbf{p}}, \mathbf{q}, \mathbf{B}), \quad (\text{A.5})$$

This shows that only the trace of  $\mathbf{\Gamma}$  comes in. The term  $\text{Tr} \delta\mathbf{\Gamma}$  linear in  $\mathbf{B}$  provides the PHE.

For a low density  $n$  of particles with T-matrix  $\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B})$ ,  $\mathbf{\Gamma}$  obeys the Bethe-Salpeter equation [12],

$$\mathbf{\Gamma}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = 2(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}) + n \sum_{\mathbf{p}'} \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}(\mathbf{p}', \mathbf{B}) \cdot \mathbf{\Gamma}(\mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}', \mathbf{B}) \cdot \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^*(\mathbf{B}). \quad (\text{A.6})$$

We shall solve this equation for the magneto-active Mie particle, up to linear contributions in  $\mathbf{B}$ .  $\mathbf{\Gamma}$  determines the anisotropy in scattering; Without magnetic field it can be ascertained that  $\mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = 2(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}) / (1 - \langle \cos \theta \rangle)$ , with  $\langle \cos \theta \rangle$  the anisotropy factor in scattering [8].

Eq. (A.6) shows that  $\mathbf{\Gamma}$  is a hermitean tensor, linear in  $\mathbf{q}$ . We will ignore the longitudinal field in Eq. (A.6) that turned out to be of higher order. This makes  $\mathbf{\Gamma}$  as well  $\mathbf{G}$  effectively a hermitean  $2 \times 2$  matrix. It is convenient to express all such matrices with respect to a helicity base (with  $\sigma(\mathbf{p}) = -\sigma(-\mathbf{p}) = \pm 1$  the helicity of the plane wave with wave number  $\mathbf{p}$ ) which makes them a linear combination of the identity  $U$  and the three Pauli spin matrices  $\sigma_{x,y,z}$  [13]. If the  $z$ -axis is taken along the wave-vector, the Green's tensor can be written as  $G_{\sigma\sigma'}(\mathbf{p}, \mathbf{B}) = G_0(p) U + G_1(p) (\mathbf{B} \cdot \mathbf{k}) \sigma_z$ , with  $G_0(p) = 1/[k^2 - p^2 + ik/\ell]$  the Dyson Green's function in terms of the extinction length  $\ell$ ; furthermore  $G_1(p) \sim G_0^2$ .

We separate the magneto-term as  $\mathbf{\Gamma}(\mathbf{B}) = \mathbf{\Gamma}^0 + \delta\mathbf{\Gamma}(\mathbf{B})$ . Mirror-symmetry imposes that  $\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B}) = \mathbf{T}_{-\mathbf{p}-\mathbf{p}'}(\mathbf{B})$  so that, by Eq. (A.4),  $\mathbf{\Gamma}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = -\mathbf{\Gamma}(-\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ . Finally, this implies

$$\begin{aligned} \delta\Gamma_{\sigma\sigma'}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}}) = & a_1(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q} \times \hat{\mathbf{B}}) U + \sigma_z \left[ a_2(\hat{\mathbf{B}} \cdot \mathbf{q}) + a_3(\hat{\mathbf{B}} \cdot \mathbf{p})(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}) \right] \\ & + a_4 \left[ (\hat{B}_y q_x + \hat{B}_x q_y) \sigma_x + (\hat{B}_y q_y - \hat{B}_x q_x) \sigma_y \right] \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

in terms of 4 real-valued coefficients  $a_n$  to be determined. They correspond to the 4 Stokes parameters  $I$ ,  $Q$ ,  $U$  and  $V$ . The presence of matrices other than the unit matrix in Eq. (A.7) implies that the diffuse radiation (A.4) becomes polarized in the presence of a magnetic field. By Eq. (A.5), the PHE is determined by  $\text{Tr} \delta\mathbf{\Gamma} \sim a_1$ , for which Eq. (A.6) provides a closed equation.

The linearization of Eq. (A.6) in the magnetic field generates three coupled contributions:  $\delta\mathbf{\Gamma} = \delta\mathbf{\Gamma}_1 + \delta\mathbf{\Gamma}_2 + \delta\mathbf{\Gamma}_3$ . The first comes from  $\delta\mathbf{\Gamma}(\mathbf{B})$  itself, the second from  $\delta\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B})$  and the third from  $\delta\mathbf{G}(\mathbf{B})$ . The T-matrix of a Mie sphere without magnetic field can be expressed as [8],

$$T_{\sigma\mathbf{p}\sigma'\mathbf{p}'}^0 = -\frac{2\pi i}{k} e^{-i\sigma\phi} [\bar{S}_1(\theta) + \bar{S}_2(\theta)\sigma(\mathbf{p})\sigma'(\mathbf{p}')] = -\frac{2\pi i}{k} e^{-i\sigma\phi} [(\bar{S}_1 + \bar{S}_2) U + (\bar{S}_1 - \bar{S}_2)\sigma_x]. \quad (\text{A.8})$$

Since  $\sigma_x\sigma_y = i\sigma_z$  and  $\sigma_z\sigma_x = i\sigma_y$  many terms generated by  $\delta\Gamma$  in Eq. (A.6) contain one of the traceless Pauli spin matrices. Since  $\delta G \sim \sigma_z$  it follows that  $\text{Tr } \delta\Gamma_3 = 0$ . Since  $\sigma_x^2 = U$  one term involving  $a_4$  survives in  $\text{Tr } \delta\Gamma_1$  but is eliminated by the integral over the azimuthal angle  $\phi$ . The first contribution simplifies to,

$$\text{Tr } \delta\Gamma_1(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \int d^2\hat{\mathbf{p}}' F_0(\theta) \text{Tr } \delta\Gamma(\mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = 2a_1 \langle \cos\theta \rangle (\mathbf{p} \cdot \mathbf{q} \times \hat{\mathbf{B}}). \quad (\text{A.9})$$

with  $F_0(\theta)$  defined in Eq. (A.2). The second equality follows by substituting  $\text{Tr } \delta\Gamma(\mathbf{p}', \mathbf{B}, \mathbf{q}) = 2a_1(\mathbf{p}' \cdot \mathbf{q} \times \hat{\mathbf{B}})$ . The contribution  $\text{Tr } \delta\Gamma_2$  is obtained by substituting  $\Gamma^0 = 2(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q})/(1 - \langle \cos\theta \rangle)$ ,

$$\text{Tr } \delta\Gamma_2(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \frac{2}{1 - \langle \cos\theta \rangle} \int d^2\hat{\mathbf{p}}' (\mathbf{p}' \cdot \mathbf{q}) \det(\hat{\mathbf{p}}, \hat{\mathbf{p}}', \hat{\mathbf{B}}) F_1(\theta), \quad (\text{A.10})$$

and involves the magneto cross-section introduced in Eq. (A.2). From  $\text{Tr } \delta\Gamma_3 = 0$ , and Eq. (A.7) we have  $\text{Tr } \delta\Gamma_1 = 2a_1(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q} \times \hat{\mathbf{B}}) - \text{Tr } \delta\Gamma_2$ . Eqs. (A.9) and (A.10) hold for any  $\mathbf{q}$  and it is convenient to choose  $\mathbf{q} = \hat{\mathbf{p}} \times \hat{\mathbf{B}}$ . This yields the desired equation,

$$a_1 = \frac{1}{(1 - \langle \cos\theta \rangle)^2} \int d^2\hat{\mathbf{p}}' \frac{\det^2(\hat{\mathbf{p}}, \hat{\mathbf{p}}', \hat{\mathbf{B}})}{|\hat{\mathbf{p}} \times \hat{\mathbf{B}}|^2} F_1(\theta) = \frac{\pi}{(1 - \langle \cos\theta \rangle)^2} \int_0^\pi d\theta \sin^3\theta F_1(\theta). \quad (\text{A.11})$$

The last equality follows upon integration over the azimuthal angle  $\phi$ .

We can now insert our result for  $\text{Tr } \Gamma$  into formula (A.5) for the diffusion tensor. Since  $\text{Tr } \delta\Gamma = 2a_1 p_i \epsilon_{ijk} q_j \hat{B}_k$ , the final result reads,

$$D_{ij}(\mathbf{B}) = \frac{1}{3} \frac{\ell}{1 - \langle \cos\theta \rangle} \delta_{ij} + \frac{1}{3} a_1 \ell \epsilon_{ijk} \hat{B}_k. \quad (\text{A.12})$$

This equation identifies  $\ell^* = \ell/(1 - \langle \cos\theta \rangle)$  as the transport mean free path of light in multiple scattering, and  $\ell_\perp^* \equiv a_1 \ell$  as the transport mean free path for magneto-transverse light scattering. In Ref. [10] we have shown that the integral in Eq. (A.11) equals exactly the normalized PHE of one magneto-active Mie sphere. Eq. (A.12) thus states that the PHE in multiple scattering is directly proportional to the normalized PHE of one single Mie sphere, including the same sign, and amplified by the factor  $1/(1 - \langle \cos\theta \rangle)^2$ . Note that the magneto-transverse transport mean free depends even more on the anisotropy factor  $\langle \cos\theta \rangle$  than the conventional transport mean free path  $\ell^*$ .

In Fig. 1 we show  $\ell_\perp^*/\ell^*$  as a function of the size parameter, for an index of refraction  $m = 1.128$ , corresponding to  $\text{CeF}_3$  in glycerol. Around  $x \approx 40$ , (radius  $2 \mu\text{m}$ ) we calculate  $\ell_\perp^*/\ell^* = +0.06 VB\lambda$  which, for  $V = -1100 \text{ rad/mT}$  (at temperature  $T = 77 \text{ K}$ ) and vacuum wavelength  $\lambda_0 = 0.457 \mu\text{m}$  yields  $\ell_\perp^*/\ell^* = -2 \cdot 10^{-5}/T$ . The experimental value is  $\ell_\perp^*/\ell^* \approx -1.1 \pm 0.3 \cdot 10^{-5}/T$  for a 10 vol-%

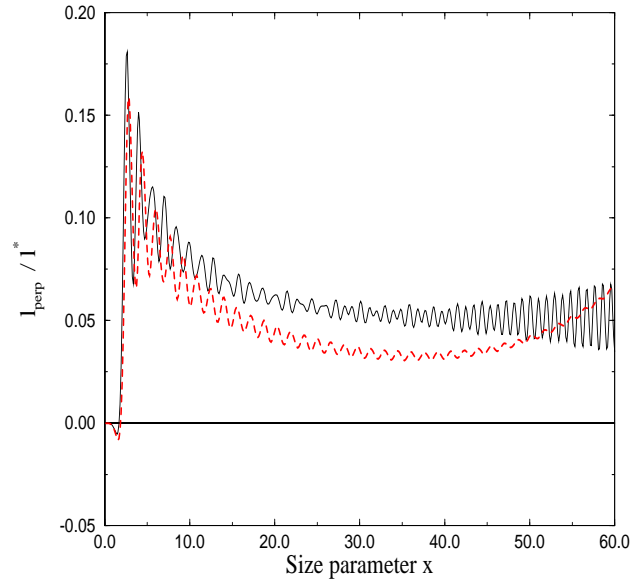


Figure A.1: Ratio of magneto-transverse transport mean free path and isotropic transport mean free path  $\ell_{\perp}^*/\ell^* = (1 - \langle \cos \theta \rangle) a_1$ , as a function of the size parameter  $x = 2\pi a/\lambda$  of the Mie spheres. The index of refraction is  $m = 1.128$  corresponds to  $\text{CeF}_3$  in glycerol. The ripple structure is attributed to resonances in the various partial waves that built up the scattering amplitude for large  $x$ . For size parameters  $x < 1$  (Rayleigh regime) we find that  $\ell_{\perp}^*/\ell^* \sim x^5$  vanishes rapidly. Dashed line: the same for  $m \rightarrow 1$  (Rayleigh-Gans regime), for which a finite value is seen to survive.

suspension [2]. We estimate a systematic error of at least a factor of two in *attributing* values to  $\ell_{\perp}$  and  $\ell^*$  on the basis of Fick's law. Another uncertain factor is the broad size distribution in this sample, which probably washes out the oscillations of  $\ell_{\perp}^*/\ell^*$  as a function of size parameter  $x$  that are seen in Fig. 1. Besides  $\text{CeF}_3$ , the present theory is also able to reproduce the measured sign and magnitude for the PHE of polydisperse samples containing  $\text{ZnS}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$  and  $\text{EuF}_2$ . The sign can change as a function of  $x$  and  $m$  and cannot be predicted by a simple argument known to us. The estimated anisotropy factor for our sample equals  $\langle \cos \theta \rangle \approx 0.9$ . The amplification factor  $1/(1 - \langle \cos \theta \rangle)^2$  for the PHE is therefore significant, and improves theoretical predictions made for Rayleigh scatterers considerably [2].

We conclude that the present theory captures the basic physics of the magneto-transverse light diffusion both qualitatively and quantitatively.

We thank Geert Rikken, Anja Sparenberg and Venkatesh Gopal for the many discussions. This work has been made possible by the Groupement de Recherches POAN.

# Bibliography

- [1] B.A. Van Tiggelen, Phys. Rev. Lett **75**, 422 (1995).
- [2] G.L.J.A. Rikken and B.A. Van Tiggelen, Nature **381**, 54 (1996).
- [3] J.J.M. Beenakker, G. Scoles, H.F.P. Knaap and R.M. Jonkman, Phys. Lett. **2**, 5 (1962).
- [4] F.C. MacKintosh and S. John, Phys. Rev B **37**, 1884 (1988); A.S. Martinez and R. Maynard, Phys. Rev. B **50**, 3714 (1994).
- [5] F. Erbacher, R. Lenke and G. Maret, Europhys. Lett. **21**, 551 (1993).
- [6] A. Sparenberg, G.L.J.A. Rikken and B.A. Van Tiggelen, Phys. Rev. Lett. **79**, 757 (1997).
- [7] P.M. Chaikin and T.C. Lubensky, *Principles of Condensed Matter Physics* (Cambridge, 1997).
- [8] H.C. Van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles*, (Dover, 1981, New York).
- [9] P. Sheng, *Introduction to Wave Scattering, Localization, and Mesoscopic Phenomena* (Academic, 1995, San Diego).
- [10] D. Lacoste, B.A. Van Tiggelen, G.L.J.A. Rikken and A. Sparenberg, J. Opt. Soc. A **A**, **15**, 1636 (1998).
- [11] G.W. Ford and S.A. Werner, Phys. Rev. B **18**, 6752 (1978).
- [12] B.A. Van Tiggelen, R. Maynard and A. Heiderich, Phys. Rev. Lett. **77**, 639 (1996). For the electronic equivalent of Bethe-Salpeter equation see: G.D. Mahan, *Many Particle Physics* (Plenum, New York, 1981).
- [13] E. Merzbacher, *Quantum Mechanics* (Wiley, 1970).



## Chapitre 3

# Rétrodiffusion cohérente

L'équation de diffusion et l'équation du transfert radiatif décrivent le transport de l'intensité moyenne. Le caractère ondulatoire de la lumière se traduit par la possibilité d'une réduction de la transmission due à des effets d'interférences qui demeurent même en diffusion multiple. Supposons que l'amplitude de transmission  $A$  puisse se décomposer comme une somme de termes associés à des chemins physiquement différents que l'on repère par un indice  $p$ . Parmi ces chemins, certains sont fermés, c'est à dire qu'ils partent et aboutissent au même diffuseur. Dès que ces boucles contiennent plus d'un diffuseur, elles peuvent être traversées dans deux sens. Soient  $C_p$  une telle boucle traversée dans un sens et  $D_p$  la même boucle traversée dans l'autre sens. L'amplitude totale s'écrit comme une somme de chemins

$$A = \sum_p (C_p + D_p),$$

et l'intensité vaut

$$I = \sum_p (C_p C_p^* + D_p D_p^*) + \sum_p (C_p D_p^* + D_p C_p^*) + \sum_{p \neq p'} (C_p + D_p)(C_{p'}^* + D_{p'}^*).$$

On distingue trois termes dans cette expression. On appelle le premier terme contribution incohérente, le second contribution cohérente, le dernier correspond à une contribution appelée speckle [BF94]. La théorie de Boltzmann ne prend en compte que la contribution incohérente, à l'exclusion des deux autres qui contiennent des termes d'interférences. En physique quantique cela correspond à ne considérer que les probabilités et à négliger les interférences entre amplitudes de probabilités.

Si le système obéit au principe de réciprocité,  $C_p = D_p$  auquel cas la contribution cohérente égale la contribution incohérente. Cela se traduit par une contribution double pour chaque boucle, et donc pour l'onde une probabilité de retour plus grande (ou un coefficient de transmission moindre). Il y a un effet mesurable lié à cela en optique, c'est la rétrodiffusion cohérente. Lorsque la direction

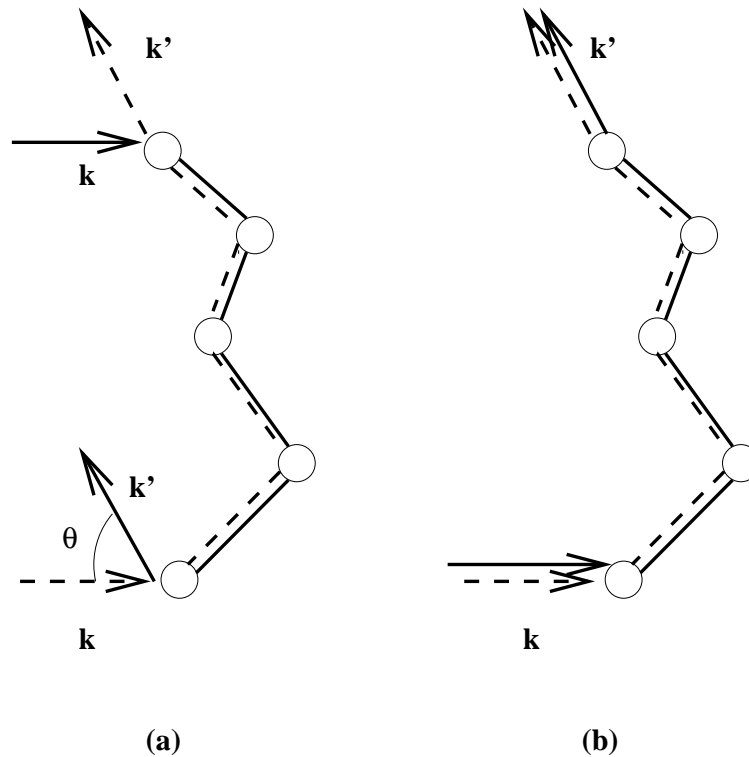


FIG. 3.1 - Schémas représentant les chemins à prendre en compte pour la rétrodiffusion cohérente (a) et les deux chemins "directs" qui sont les seuls considérés dans la théorie de Boltzmann pour le transport de la lumière (ou dans l'équation du transfert radiatif) (b). Les traits continus représentent la propagation du champ, les traits pointillés celle du champ conjugué. On peut noter que le déphasage entre les deux chemins dans le schéma (a) n'est lié qu'au déphasage accumulé sur le premier et sur le dernier diffuseur ce qui conduit à  $\delta\theta \simeq \lambda/l$ . En général, les deux chemins passent par des diffuseurs différents et subissent des déphasages différents, ce dernier type de diagramme contient la contribution des tavelures (speckle), que nous n'abordons pas ici.

incidente de la lumière est confondue avec la direction émergente, le trajet peut être considéré comme fermé. En pratique le trajet n'est pas exactement fermé à cause du déphasage accumulé sur le premier et le dernier diffuseur (voir figure 3.1), qui cause la disparition progressive de l'effet d'interférences lorsqu'on s'éloigne de la direction arrière. Comme prédit par Barabanenkov (1973) et mis en évidence expérimentalement par divers groupes, Kuga et Ishimaru (1985), Wolf and Maret (1985), Van Albada and Lagendijk (1985), l'intensité moyenne (*i.e* après avoir réalisé une moyenne sur le désordre) dans la direction arrière a la forme d'un cône très étroit de largeur angulaire  $\lambda/\ell$ . La hauteur de ce cône, appelée facteur d'augmentation  $E$ , est donnée par le rapport de la contribution cohérente sur la contribution incohérente, ce qui vaut donc 1 dans le cas idéal. Cet effet est une manifestation de la localisation faible, dans la mesure où l'on peut le considérer comme précurseur du régime de localisation forte atteint lorsque  $\lambda \simeq \ell$ .

### 3.1 Rétrodiffusion cohérente sous champ magnétique

La rétrodiffusion cohérente est un effet robuste, dont les caractéristiques principales ne sont pas affectées par la forme, le nombre, ou par toute propriété statistique liée aux diffuseurs. Même l'absorption dont on sait qu'elle détruit les interférences en diffusion multiple n'a pas d'impact sur l'interférence elle-même (*i.e* sur le facteur d'augmentation) [AWMM88]. Seules comptent en fait les propriétés du milieu vis à vis du principe de réciprocité, comme l'a noté pour la première fois Golubentsev [Gol84]. Comme la réciprocité est brisée par un champ magnétique, on s'attend à ce qu'un champ magnétique altère la rétrodiffusion cohérente. Dans leur étude de la rétrodiffusion cohérente dans les milieux magnéto-optiques et chiraux constitués de diffuseurs ponctuels, MacKintosh et John analysent en détails la façon dont le cône de rétrodiffusion cohérente est modifié dans l'approximation de diffusion. Dans le "canal" de polarisation qui conserve l'hélicité (pour la lumière incidente et pour la lumière diffusée), la présence d'un champ magnétique détruit la rétrodiffusion cohérente. L'activité optique dans le milieu est sans effet dans ce "canal" de polarisation et n'affecte que le canal d'hélicités opposés. Ces idées ont été généralisées à différents aspects de la diffusion multiple dans les milieux magnéto-optiques par Van Tiggelen *et al.* au moyen du modèle du diffuseur ponctuel sous champ magnétique introduit dans la partie I [TMN96]. Le problème inverse des diffuseurs Mie non-magnétiques dans un milieu magnétique est beaucoup plus ardu que le problème direct, et n'a pu être abordé pour l'instant qu'au moyen de simulations numériques de Monte Carlo par Martinez *et al.* [MM94].

La destruction de la rétrodiffusion cohérente a été confirmée expérimentalement en 1993 par Erbacher, Lenke et Maret, qui ont mené également des mesures de fonctions de corrélations de l'intensité (c'est à dire du speckle), en fonction du champ magnétique [ELM93]. Les expériences plus récentes de cette équipe à Constance apportent la preuve expérimentale qu'un champ magnétique introduit de l'anisotropie dans le cône de rétrodiffusion cohérente, et peut-être même provoque un déplacement du maximum du cône. Ces expériences pourraient valider le travail théorique de Maradudin, portant

sur la rétrodiffusion cohérente sous champ magnétique, dans le cas où la diffusion peut être considérée à deux dimensions uniquement [LMW91]. En tous les cas, la rétrodiffusion cohérente sous champ magnétique est visiblement une thématique très riche.

Dans l'appendice B, les modifications apportées par un champ magnétique sur la rétrodiffusion cohérente sont considérées au moyen de la théorie perturbative des diffuseurs Mie magnéto-optiques développée dans cette thèse, dans l'approximation de diffusion. Les effets magnéto-optiques se produisent à l'intérieur des diffuseurs, qui sont toujours placés dans un environnement non-magnétique, ce qui était le cas dans les expériences de Erbacher *et al.* de 1993. Le champ magnétique affecte la rétrodiffusion cohérente à deux niveaux: il y a d'une part la diminution du facteur d'augmentation  $E$  en fonction du champ magnétique, contrôlée par un paramètre  $\lambda$ , quadratique en champ magnétique. Il y a d'autre part, les lignes de facteur d'augmentation  $E$  constant, qui sont des cercles en l'absence de champ magnétique, et qui acquièrent une forme anisotrope en présence de champ magnétique, que nous analysons à l'ordre un en champ magnétique. Deux types de corrections magnétiques interviennent dans cette description, l'une est transverse, l'autre longitudinale par rapport au champ magnétique. L'expression de la correction transverse est très analogue à l'Effet Hall Photonique. D'autre part, il apparaît que la diminution du facteur d'augmentation induite par le champ devient de moins en moins prononcée lorsque la taille des diffuseurs augmente. Comme il a été suggéré par Erbacher *et al.* [ELM93], cette diminution contrôlée par  $\lambda$  est également amplifiée au voisinage des résonances de Mie. On montre aussi que la constante de Verdet effective, qu'on peut définir à partir de ce paramètre  $\lambda$  est reliée à l'énergie électromagnétique stockée dans les diffuseurs, c'est à dire au temps de séjour, discuté dans la première partie.

## Appendix B

# Coherent backscattering of light in a magnetic field

submitted to Phys. Rev. E

D. Lacoste and B. A. van Tiggelen

*Laboratoire de Physique et Modélisation des Milieux Condensés, Maison des Magistères, B.P. 166,  
38042 Grenoble Cedex 9, France*

### Abstract

This paper describes how coherent backscattering is altered by an external magnetic field. In the theory presented, magneto-optical effects occur inside Mie scatterers embedded in a non-magnetic medium. Unlike previous theories based on point-like scatterers, the decrease of coherent backscattering is obtained in leading order of the magnetic field using rigorous Mie theory. This decrease is strongly enhanced in the proximity of resonances, which cause the path length of the wave inside a scatterer to be increased. Also presented is a novel analysis of the shape of the backscattering cone in

a magnetic field.

## B.1 Introduction

The enhancement of backscattering in propagation of waves in a random medium is a well documented topic. Weak localization theory explains how interference effects between direct and reverse scattering events produce Coherent Backscattering (CBS). The main features of CBS are insensitive to many aspects of the statistics of the inhomogeneities. Even absorption does not alter the relative strength of the interference [1]. The interference is only affected by the properties of the medium with respect to the reciprocity principle as first noted by Golubentsev [2]. MacKintosh and John [3] analyzed how CBS is altered by Faraday rotation and natural optical activity in a medium of inhomogeneities smaller than the wavelength, and in the diffusion approximation. Using a method based on point-like scatterers, Van Tiggelen *et al.* extended these ideas and discussed the anisotropy induced by a magnetic field in light diffusion [4]. The case of non-magnetic Mie scatterers embedded in a Faraday-active medium has been studied by means of Monte Carlo simulations by Martinez *et al.* [5]. Maradudin *et al.* considered specifically the two dimensional coherent backscattering of light from a randomly rough surface in the presence of a magnetic field [6]. Experimentally, CBS in a magnetic field has been studied by Erbacher, Lenke and Maret [7], and some of their results will be discussed here.

In section B.2, the main results of a recent calculation of the T-matrix for a Mie scatterer in a magnetic field are presented [8, 9], and serve in section B.3 as the building block to study diffusion of light in a magnetic field. After having detailed the main features of the Faraday effect for multiple Rayleigh and Mie scattering, the modification of the line shape of CBS in a medium with finite-size scatterers in a magnetic field is investigated in the last section.

## B.2 T-matrix in a magnetic field

In this paper,  $c_0 = 1$  has been set. In a magnetic field, the refractive index is a tensor of rank two. For the standard Mie problem, it depends on the distance to the center of the sphere  $r$ , which has a radius  $a$ , via the Heaviside function  $\Theta(r - a)$ , that equals 1 inside the sphere and 0 outside,

$$\varepsilon(\mathbf{B}, \mathbf{r}) - \mathbf{I} = [(\varepsilon_0 - 1)\mathbf{I} + \varepsilon_F \Phi] \Theta(r - a). \quad (\text{B.1})$$

In this expression,  $\varepsilon_0 = m^2$  is the value of the normal isotropic dielectric constant of the sphere of relative index of refraction  $m$ , and

$$\varepsilon_F = 2mV_0B/\omega \quad (\text{B.2})$$

is a dimensionless coupling parameter associated with the amplitude of the Faraday effect ( $V_0$  being the Verdet constant,  $B$  the amplitude of the magnetic field and  $\omega$  the frequency). The antisymmetric hermitian tensor  $\Phi_{ij} = i\epsilon_{ijk}\hat{B}_k$  has been introduced (the hat above vectors means that the vectors have been normalized). The Mie solution depends on the dimensionless size parameters  $x = \omega a$  and

$y = mx$ . In this paper, only non-absorbing media are considered so that  $m$  and  $\varepsilon_F$  are real-valued. Since  $\varepsilon_F \approx 10^{-4}$  in most experiments, a perturbational approach is valid. The part of  $\mathbf{T}$  that is independent of the magnetic field is denoted  $\mathbf{T}^0$ , the part of the T-matrix linear in  $\mathbf{B}$  is  $\mathbf{T}^1$ , and the second order correction  $\mathbf{T}^2$ .

Two important symmetry relations must be obeyed by a T-matrix of a scatterer in a magnetic field. The first one is parity symmetry and the second one is reciprocity [8]:

$$T_{-\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}), \quad (\text{B.3})$$

$$T_{-\mathbf{k}'-\sigma', -\mathbf{k}-\sigma}(-\mathbf{B}) = T_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{B}). \quad (\text{B.4})$$

It is important to note that  $\sigma(-\hat{\mathbf{k}}) = -\sigma(\hat{\mathbf{k}})$ , i.e.  $\sigma$  indicates the helicity. In particular, relations (B.3, B.4) must hold for  $\mathbf{T}^1$ .  $\mathbf{T}^2$  satisfies Eq. (B.4) without a minus sign for  $\mathbf{B}$  and obeys the standard reciprocity principle. For this reason,  $\mathbf{T}^2$  will not contribute to the suppression of the backscattering cone considered in this article, the next order being  $\mathbf{T}^3$ .

Because  $\mathbf{T}^1$  is linear in  $\hat{\mathbf{B}}$ , it can be constructed by considering only three special cases for the direction of  $\hat{\mathbf{B}}$ . If  $\hat{\mathbf{k}}$  and  $\hat{\mathbf{k}}'$  are not collinear, the unit vector  $\hat{\mathbf{B}}$  can be decomposed in the non-orthogonal but complete basis of  $\hat{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\mathbf{k}}'$  and  $\hat{\mathbf{g}} = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' / |\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'|$ . This results in [8],

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1 &= \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}})(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}'}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}') + \frac{(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') - \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{k}}}{(\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2 - 1} \mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}) \\ &+ (\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{g}}) \mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}}), \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

With respect to an helicity base,  $\mathbf{T}^1$  takes the form,

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}) = \frac{\pi}{\omega} [R_1(\theta)\sigma + R_2(\theta)\sigma'], \quad (\text{B.6})$$

$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{k}}') = \frac{\pi}{\omega} [R_1(\theta)\sigma' + R_2(\theta)\sigma], \quad (\text{B.7})$$

with

$$R_1(\theta) = -\frac{2\varepsilon_F}{m} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} [\mathcal{C}_J \pi_{J,1}(\theta) + \mathcal{D}_J \tau_{J,1}(\theta)] \quad (\text{B.8})$$

$$R_2(\theta) = -\frac{2\varepsilon_F}{m} \sum_{J \geq 1} \frac{2J+1}{J(J+1)} [\mathcal{D}_J \pi_{J,1}(\theta) + \mathcal{C}_J \tau_{J,1}(\theta)] \quad (\text{B.9})$$

where the coefficients  $\mathcal{C}_J$  and  $\mathcal{D}_J$  have been defined in Ref. [8]. For  $\mathbf{T}_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}})$ , the following expression has been found



$$T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}}) = \frac{\pi}{\omega}(Q_1 + \sigma\sigma'Q_2) \quad (\text{B.10})$$

with

$$Q_1 = -i\frac{d}{d\theta}R_1, \quad Q_2 = -i\frac{d}{d\theta}R_2. \quad (\text{B.11})$$

For  $\hat{\mathbf{k}} = \hat{\mathbf{k}}'$ ,

$$\mathbf{T}_{\mathbf{k},\mathbf{k}}^1 = \Phi \frac{2\pi}{\omega}R_1(0), \quad (\text{B.12})$$

with

$$R_1(0) = R_2(0) = -\frac{\varepsilon_F}{m} \sum_{J \geq 1} (2J+1) (\mathcal{C}_J + \mathcal{D}_J). \quad (\text{B.13})$$

### B.3 Diffusion of light in a magnetic field

The equation of radiative transfer aims to describe the propagation of the average intensity in multiple scattering, but violates reciprocity [10]. The reason is that it does not contain the most-crossed diagrams ( $C_{ijkl}^+$ ) responsible for CBS. By definition, the four-rank tensor  $L_{ijkl}$  linearly connects the field correlations of incident and outgoing fields. This can be represented by a diagram that starts on the first scattering event, and which has two lines, corresponding to the propagation of the field and to the complex conjugate of the field as can be seen in Fig. (B.1). For  $L_{ijkl}^+$  both fields propagate in the same magnetic field  $\mathbf{B}$  as opposed to  $L_{ijkl}^-$  for which both fields propagate with opposite sign for the magnetic field  $\mathbf{B}$  [4]. The relations deduced from the application of the reciprocity relation (B.4) are

$$C_{ijlk}^\pm(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = L_{ijkl}^\mp \left( \frac{\mathbf{p} - \mathbf{p}' + \mathbf{q}}{2}, \frac{\mathbf{p}' - \mathbf{p} + \mathbf{q}}{2}, \mathbf{p} + \mathbf{p}', \mathbf{B} \right), \quad (\text{B.14})$$

and

$$L_{ijkl}^\pm(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = L_{jikl}^\pm(-\mathbf{p}', -\mathbf{p}, -\mathbf{q}, -\mathbf{B}). \quad (\text{B.15})$$

On long length scales ( $\mathbf{q} \rightarrow 0$ ) and for stationary situations ( $\Omega = 0$ ), the ladder diagrams  $L_{ijkl}^-$  take the following hydrodynamic form [11],

$$L_{ijkl}^-(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \frac{2\pi}{\ell^2} \frac{d_{ik}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) d_{lj}(-\mathbf{p}', -\mathbf{q}, -\mathbf{B})}{D\mathbf{q}^2 + \lambda/\ell}. \quad (\text{B.16})$$

The symmetry of the numerator is imposed by the reciprocity principle;  $\lambda$  is a scalar dimensionless parameter that elucidates the breaking of reciprocity by the magnetic field in multiple scattering. In

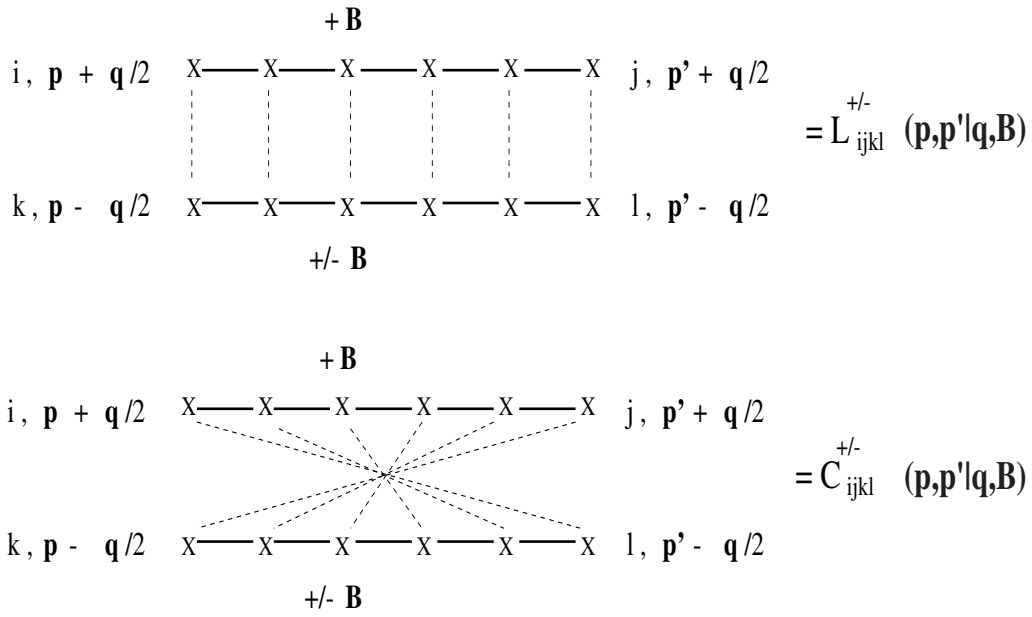


Figure B.1: Ladder diagrams  $L_{ijkl}^{\pm}$  and the most-crossed diagrams  $C_{ijkl}^{\pm}$  in a magnetic field. Bold lines denote the Dyson-Green tensor, the crosses denote T-matrices and dotted lines connect identical particles.

Eq. (B.16),  $D$  is the conventional diffusion coefficient for radiative transfer, and  $\ell$  is the scattering mean free path, which is a typical distance between two scattering events. This diffusion constant was shown theoretically and experimentally [12] to depend on the square of the magnetic field. These corrections are not considered here since the dephasing parameter  $\lambda/(D\ell)$  is only discussed to *second* order in the magnetic field. The enhancement factor of coherent backscattering is a ratio of a coherent contribution, described by the most-crossed diagrams, over an incoherent contribution represented by the ladder diagrams. The parameter  $\lambda$  plays the role of an “absorption” term for the coherent contribution only, and is therefore responsible for the decrease of the coherent backscattering cone in a magnetic field. This parameter  $\lambda$  can be expressed as the square of a Faraday dephasing angle, which is the product of a Verdet constant, the magnetic field strength, and a characteristic length scale for the propagation of light in the medium. Since the scattering mean free path  $\ell$  is a natural and experimentally relevant length scale for coherent backscattering, it is possible to define an effective Verdet constant  $V_{eff}$  from a relation derived in [3],

$$\lambda = \frac{4}{3}V_{eff}^2 B^2 \ell^2. \quad (\text{B.17})$$

Equation (B.17) was obtained by MacKintosh and John [3], who considered a situation where the scatterers and the outside medium both have a Verdet constant  $V_{eff}$ .

To first order in the magnetic field, the tensor  $d_{ik}$  defined in Eq. (B.16) must take the form

$$\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q} = 0, \mathbf{B}) = \mathbf{I} + d_2 \Phi. \quad (\text{B.18})$$

where  $d_2$  describes persisting polarization effects in diffuse scattering due to the magnetic field [11]. For low density  $n$  of particles,  $d_2$  can be determined from the Bethe-Salpether equation

$$L_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^-(\mathbf{B}) = n\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B})\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^*(-\mathbf{B}) + n \sum_{\mathbf{p}''} \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}''}(\mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}(\mathbf{p}'', \mathbf{B}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}'', -\mathbf{B}) \cdot \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}''}^*(-\mathbf{B}) \cdot L_{\mathbf{p}''\mathbf{p}'}^-(\mathbf{B}), \quad (\text{B.19})$$

where  $\mathbf{G}(\mathbf{p}, \mathbf{B})$  denotes the ensemble averaged Dyson Green’s tensor (see Appendix A for details of notations), and the asterisk denotes hermitian conjugation in polarization space. This equation is slightly more complicated than the one for  $L_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^+$  [11] because it involves both  $\mathbf{B}$  and  $-\mathbf{B}$  due to the definition (B.16). Inserting Eqs. (B.16) and (B.18) into Eq. (B.19) and expanding to first and second order in the magnetic field using Eq. (B.5), fixes  $d_2$  and  $\lambda$  rigorously. The final result reads

$$d_2 = i \left( \frac{-A_2}{1 - \langle \cos \theta \rangle_p} - \eta \right), \quad (\text{B.20})$$

$$\lambda = \frac{1}{3} \left( A_1^2 + \frac{A_2^2}{1 - \langle \cos \theta \rangle_p} \right), \quad (\text{B.21})$$

with

$$A_1^2 = \frac{1}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 d\mu \left[ 2 \frac{|R_1|^2 + |R_2|^2 - 2 \Re e(R_1 \overline{R_2}) \mu}{1 - \mu^2} + |Q_1|^2 + |Q_2|^2 \right], \quad (\text{B.22})$$

$$A_2 = \frac{1}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 \Re e(R_1 S_2 + R_2 S_1) d\mu - \eta. \quad (\text{B.23})$$

Equations (B.20-B.23) contain the main results of this paper and will be discussed in sections B.5 to B.8. The factor  $1/(1 - \langle \cos \theta \rangle_p)$  in Eqs. (B.20) and (B.21) is related to a depolarization length which will be introduced in the next section. In equation (B.21),  $\lambda$  contains two terms: the first one is seen to dominate for finite size particles ( $x \gg 1$ ) whereas the second one prevails for small particles ( $x \ll 1$ ). Sections B.5 and B.6 will discuss these two contributions respectively. Far from resonances, the first term corresponds to the Faraday rotation of the wave inside the scatterer, whereas the second represents the Faraday rotation between two scattering events. Although the medium outside the scatterers is not Faraday active, the Faraday rotation from one scatterer to the next can be defined in the framework of an effective medium theory using the parameter  $\eta$ , which will be defined in section B.5.

## B.4 Depolarization length

In this section, the factor  $1/(1 - \langle \cos \theta \rangle_p)$ , which tends to amplify the second term of Eq. (B.21) is defined. The term  $A_2^2$  is easily seen to dominate for small particles. The total cross-section of one particle is given by [13],

$$Q_{scatt} = \frac{1}{x^2} \int_{-1}^1 (|S_1|^2 + |S_2|^2) d\mu, \quad (\text{B.24})$$

with  $\mu = \cos \theta$ . The transport mean free path is defined as  $\ell^* = \ell/(1 - \langle \cos \theta \rangle)$ , where the asymmetry parameter  $\langle \cos \theta \rangle$  is given by

$$\langle \cos \theta \rangle = \frac{1}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 (|S_1|^2 + |S_2|^2) \mu d\mu.$$

Likewise, a depolarization length can be defined as  $\ell_{dep} = \ell/(1 - \langle \cos \theta \rangle_p)$ , where

$$\langle \cos \theta \rangle_p = \frac{1}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 2 \Re e(S_1 \overline{S_2}) \mu d\mu.$$

Rayleigh scattering has a forward-backward symmetry so that  $\langle \cos \theta \rangle = 0$ . However, scattering is not isotropic due to the polarization and one can easily show that for Rayleigh scatterers  $\langle \cos \theta \rangle_p = 0.5$ .

In the limit of large forward scattering and for  $m = 1.33$ , both asymmetry parameters,  $\langle \cos \theta \rangle$  and  $\langle \cos \theta \rangle_p$  tend towards a limit close to 0.85, as shown in Fig. (B.2a). In the forward direction the differences between the two states of polarization vanish since  $S_1(0) = S_2(0)$ .

The well-known oscillations and ripple structure [13] of the asymmetry parameter  $\langle \cos \theta \rangle$  are also present in  $\langle \cos \theta \rangle_p$ . As shown in Fig. (B.2b), for a relative high value of the relative index of refraction ( $m = 2.73$  corresponding to  $\text{TiO}_2$ ), the asymmetry parameters  $\langle \cos \theta \rangle$  and  $\langle \cos \theta \rangle_p$  may take negative values, which can be seen in this particular case near  $x = 2$ . In this very particular case, where the scattering is essentially in the backward direction, the characteristic length for the loss of the polarization  $\ell_{dep}$  can be smaller than the characteristic length for the loss of the phase in multiple light scattering, which is  $\ell$ .

## B.5 Faraday rotation for multiple Rayleigh scattering

Equation (B.20) for  $d_2$  and the second term in Eq. (B.21) can be understood from an “effective medium” theory, valid for Rayleigh scatterers. The real part of the forward scattering amplitude (B.12) is associated with the Faraday effect and the imaginary part with magneto-dichroism (*i.e.* different absorption for different circular polarization) of an ensemble of Faraday-active scatterers. For a dilute system, the antisymmetric part of this effective refractive index  $\varepsilon_a$  is defined as

$$\varepsilon_a = -\frac{2\pi n}{\omega^3} R_1(0). \quad (\text{B.25})$$

For the real part of this effective refractive index, the dimensionless parameter  $\eta$  is defined by

$$\eta = \Re(\varepsilon_a) k \ell. \quad (\text{B.26})$$

Equations (B.20) and (B.23) involve this parameter  $\eta$ , which represents a characteristic phase in multiple scattering, due to the Faraday effect in the effective medium accumulated over a distance  $\ell$ . An ensemble of Rayleigh scatterers (for which the electromagnetic field changes only slightly on a scale comparable to the particle size) has the finite value

$$\varepsilon_a = \frac{9f\varepsilon_F}{(m^2 + 2)^2}. \quad (\text{B.27})$$

The Faraday effect of a composite material made of particles smaller than the wavelength, and of different shape (spherical, needle like, plate like) was discussed in Ref. [14], using a more general version of the effective medium approximation (not limited to dilute samples).

For Rayleigh scatterers ( $x \rightarrow 0$ ), one obtains

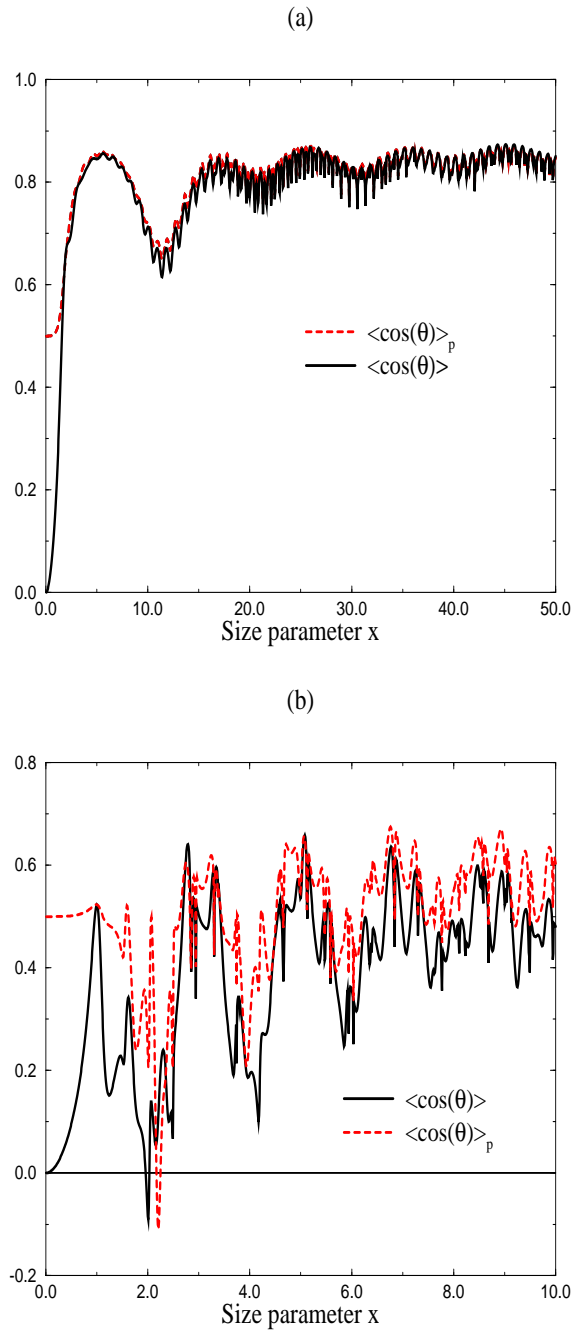


Figure B.2: Asymmetry parameters  $\langle \cos \theta \rangle$  and  $\langle \cos \theta \rangle_p$  as a function of the size parameter  $x$  for a relative index of refraction  $m = 1.33$  (a) and  $m = 2.73$  (b).

$$d_2 = \frac{9i\varepsilon_F}{4(m^2 - 1)^2 x^3},$$

$$\lambda = \frac{27\varepsilon_F^2}{8(m^2 - 1)^4 x^6},$$

so that, by definition (B.17),

$$\frac{V_{eff}}{fV_0} = \frac{9\sqrt{2}m}{(m^2 + 2)^2}. \quad (\text{B.28})$$

Apart from a factor depending on the index of refraction, the effective Verdet constant is found to be the product of the volume fraction of the particles by their Verdet constant. As noticed before [4], one finds a factor of  $\sqrt{2}$  more than expected on the basis of the effective medium approach of Eq. (B.27) if  $V_{eff}$  would have defined by  $\varepsilon_a = 2V_{eff}B/\omega$ . This discrepancy is due to the denominator in Eq. (B.21),  $1 - \langle \cos \theta \rangle_p = 1/2$  for Rayleigh particles.

From the experimental parameters described in the experiments of Erbacher *et al.* (a relative index of refraction of  $m = 1.15$ ), the estimate using Eq. (B.28) is

$$\frac{V_{eff}}{fV_0} \approx 1.32. \quad (\text{B.29})$$

This value is to be compared with the experimental value of  $1.55 \pm 0.15$  [7]. The proximity of the two values probably explains the success of previous theories based on Rayleigh scatterers, although this experiment dealt with Mie particles. In this experiment, the maximum of the distribution of the size parameters was roughly estimated at  $x \simeq 23$  but the width of the distribution was very broad. Using the parameters of Erbacher *et al.*, our Mie theory reproduces the limit of Eq. (B.29) for  $x = 0$ , but predicts a value of only 0.4 at  $x \simeq 23$ . The solid line in figure B.3a represents the effective Verdet constant as a function of the size parameter  $x$ , for the same relative index of refraction used in the experiment of Erbacher *et al.*. One can clearly see in this figure that a distribution of large spheres of size parameter  $x$  of the order of 20 or higher can not explain the experimental result. However if the size distribution of the scatterers was rather centered around a size parameter of roughly 10, the experimental value of the effective Verdet constant could possibly be recovered from this Mie theory. In figure B.3b, an higher value of the relative index was chosen. In this case, the effective Verdet constant is seen to be enhanced by resonances, which will be the subject of the section B.7.

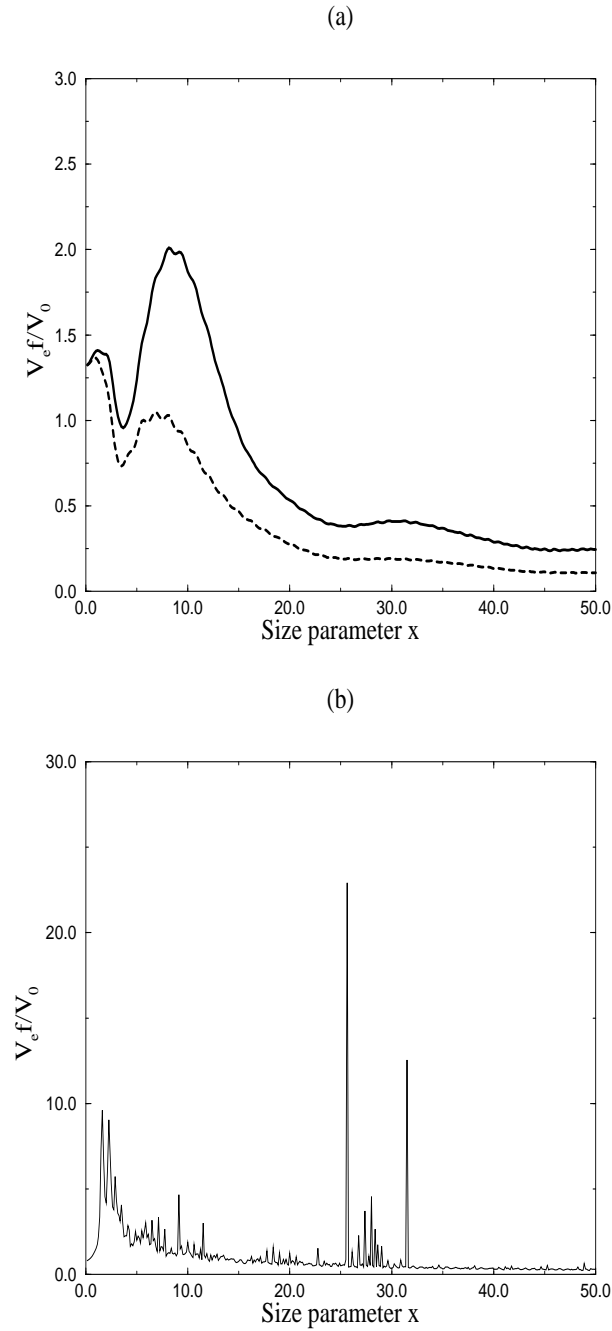


Figure B.3: Plot of the effective Verdet constant  $\frac{V_{eff}}{fV_0}$  as a function of the size parameter  $x$ . (a) The solid line represents the solution of Eqs. (B.20-B.23), containing contributions from all the rays incident on the sphere, whereas the dashed line corresponds to the contribution of only the first partial wave  $J = 1$  (the ray with central impact in geometrical optics). The scattering medium has an index of refraction of 1.7, the value in the experiment of Erbacher *et al.* (b) The same plot for an index of refraction of 2.73 for which resonances are clearly visible. The host medium is in both cases glycerol (of index of refraction 1.47). A general decrease of the effective Verdet constant for increasing size parameter  $x$  can be observed in both plots.



## B.6 Faraday rotation for multiple Mie scattering

The first term in Eq. (B.21) originates from the Faraday effect inside the scatterers and is the main contribution in the Mie regime of  $x \gg 1$ . Resonances will be discussed in section B.7. Using the definition of Eq. (B.17), the effective Verdet constant of Mie particles is written as

$$\frac{V_{eff}}{fV_0} = \frac{3m Q_{scatt}\sqrt{3\lambda}}{4x\varepsilon_F}. \quad (\text{B.30})$$

When the size parameter obeys  $x \gg 1$  and  $y = mx \gg 1$ , the scattering can be interpreted in terms of geometrical optics. In geometrical optics, rays incident on the sphere are considered rather than plane waves. The ray with central impact is characterized in Mie theory by  $J = 1$ . In figure B.3a, the effective Verdet constant, that contains contributions from all the rays, is plotted as a solid line, with respect to the size parameter  $x$ . The dashed line in this figure represents the separated contribution of the ray with central impact  $J = 1$  in the effective Verdet constant. The two curves merge for  $x = 0$ , the Rayleigh limit, but deviate from each other for larger size parameter. For a given value of the size parameter, it can be noted that the ray with central impact already represents a significant contribution to the effective Verdet constant. In addition to this, the effective Verdet constant is seen to decrease for increasing size parameter  $x$ . This is an important observation, because this means that Mie scatterers of large size (typically  $x > 20$ ) are less efficient than Rayleigh scatterers in suppressing the coherent backscattering cone.

## B.7 Mie resonances

Let us first recall some results for resonant Rayleigh scattering, for which the resonance behavior is analogous to the resonance of a two-level atom in atomic physics. For resonant Rayleigh scatterers the effective Verdet constant is related to the ‘‘path length’’  $L_{path}$  of the wave inside the particle. In fact, the path length, the dwell time of the light and the total electromagnetic energy stored inside the scatterer have been seen to be proportional. The path length can be defined as (see formula (2-22) P17 of Ref. [15]),

$$L_{path} = \lim_{m_i \rightarrow 0} \frac{Q_{abs}}{\omega m_i}, \quad (\text{B.31})$$

where  $Q_{abs}$  is the absorption cross-section and  $m_i$  the imaginary part of the index of refraction. The physical idea behind this definition is that the longer the path of the light is in the particle, the more the light will suffer from absorption. For resonant Rayleigh particles, the relation to the effective Verdet constant is obtained from Eqs. (B.28,B.31),

$$\frac{V_{eff}}{fV_0} = \frac{4m_r\sqrt{2}L_{path}}{3a}. \quad (\text{B.32})$$

At resonance, the path length can exceed the size of the scatterer, which means that the effective Verdet constant should be strongly enhanced by resonant scattering. Alternatively, one may relate the path length to the time spent by the wave in the medium, which means that the Faraday rotation is in some sense a *Larmor clock*, measuring this time [16].

The question is whether resonant enhancement of Faraday rotation occurs in resonant Mie scattering. For Mie resonances the increase in path length is well related to the change of the electromagnetic energy within the scatterers with respect to the surrounding. The total time-averaged electromagnetic energy inside the sphere is denoted by  $W$  and  $W_0$  represents this energy for the incident plane wave. For weak absorption,  $m_i \ll m_r$ , the electromagnetic energy  $W$  can be approximated by [17]

$$\frac{W}{W_0} \simeq \frac{3m_r Q_{abs}}{8xm_i} = \frac{3m_r L_{path}}{a}. \quad (\text{B.33})$$

where Eq. (B.31) was applied to obtain the last equality. This relation is exact for scalar waves and is a very good approximation for vector waves. It is even an excellent approximation in the vicinity of resonances where the deviations between the exact solution and its approximation are the largest. In the domain of  $J \simeq x$ , several resonances take place in the Mie coefficients  $a_J$  and  $b_J$ . These resonances are well separated and can be numbered by an additional integer  $k$  the order of the resonance [18]. Near one electric Mie resonance of a specified order, the denominators of the Mie coefficients  $a_J$  and  $c_J$ , which are identical, are close to zero. From Eqs. (B.21,B.22), one finds  $\sqrt{\lambda} \sim |c_J|^2/|a_J|$ . By Eqs. (B.30) and (B.33), this implies

$$\frac{V_{eff}}{fV_0} \sim |c_J|^2|a_J| \sim \frac{W}{W_0}|a_J| \sim \frac{W}{W_0}. \quad (\text{B.34})$$

In the last equality the role of  $|a_J|$  is dominated by  $|c_J|^2$  at resonance, since resonances in the scattering cross-section  $Q_{scatt}$  are much less significant than resonances in  $W$ . Indeed, in Fig. (B.4a), the lower curve represents  $Q_{scatt}$ , on normal scale, near one resonance of a water sphere. It is much below the curves of  $W$  or  $V_{eff}/(fV_0)$  which are even plotted on a logarithmic scale. From Eq. (B.34), the effective Verdet constant is expected to be simply proportional to the electromagnetic energy  $W$  (or equivalently to  $L_{path}$ ). This generalizes the result for Rayleigh scatterers in Eq. (B.32). The numerical verification of Eq. (B.34) can be deduced from the double logarithmic plot of  $V_{eff}/(fV_0)$  against the total electromagnetic energy  $W$  in Fig. (B.4b).

The proportionality of the Verdet constant and the total electromagnetic energy (or equivalently  $L_{path}$ ) has been derived for the particular case where the path of the light is confined along the same line (1D problem as in a Fabry-Perot configuration for instance [8]). In this case, the cumulative

character of the Faraday rotation with respect to the path length leads to an experimentally observed enhancement of the Faraday rotation [19]. Eq. (B.34) applies to any resonant impact and shows that the possible occurrence of spin flips in Mie scattering, as suggested in Ref. [7], does not affect the behavior of the effective Verdet constant near resonances and that the Faraday rotation still accumulates along the path as in the 1D case. This is consistent with the observation made in section B.6, that the ray with central impact had an important role for interpreting the Faraday rotation for multiple Mie scattering.

In conclusion, like for resonant Rayleigh particles, a strong correlation between the effective Verdet constant and the stored energy inside the sphere was found for resonant Mie particles. The general behavior and proportionality in the vicinity of a resonance is apparently universal.

## B.8 Shift of the intensity profile of the coherent backscattering cone in a magnetic field

A magnetic field can be expected to introduce some anisotropy in the light intensity profile of the cone. In this section, the form taken by this anisotropy is investigated by taking care of the selection rules imposed for the polarization in reflection of a semi-infinite system of Mie scatterers. This analysis is restricted to linear corrections in the magnetic field, so that the parameter  $\lambda$  discussed in the former section, quadratic in the field, will no longer appear.

This approach is based on an improved version of the scalar diffusion approximation. The ladder propagator at point  $\mathbf{r} = \{\mathbf{r}_\perp, z\}$  for a source at  $\mathbf{r}' = \{\mathbf{r}'_\perp, z'\}$  in a semi-infinite medium is denoted by  $\rho(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ . The  $z$ -axis is directed along the normal of the sample, and  $\mathbf{r}_\perp$  and  $\mathbf{r}'_\perp$  are vectors perpendicular to the  $z$ -axis. Because of translational invariance in the plane of the sample, the ladder propagator only depends on  $\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp$ . The two-dimensional Fourier transform of  $\rho(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  with respect to  $\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp$  is denoted by  $\tilde{\rho}(\mathbf{q}, z, z')$ . The ladder propagator  $\rho(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  obeys the following diffusion equation

$$\left(-\nabla^2 + \frac{1}{L_a^2}\right)\rho(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (\text{B.35})$$

with the radiative boundary condition [20]

$$\forall \mathbf{r}_\perp, \forall \mathbf{r}'_\perp, \forall z > 0, \quad \rho(\{\mathbf{r}_\perp, z\}, \{\mathbf{r}'_\perp, z' = -z_0\}) = 0. \quad (\text{B.36})$$

The trapping plane is located at a distance  $z_0 = 2\ell^*/3$  outside the sample, and  $L_a$  is the absorption length for the light intensity. We assume that the first and the last scattering events take place one transport mean free path  $\ell^*$  away from the boundary, in the directions specified by the incoming wavevector  $\mathbf{p}$  and the outgoing wavevector  $\mathbf{p}'$ . This allows to calculate the contribution of the ladder diagrams  $L_{ijkl}^+(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B})$ , the so-called incoherent contribution to the coherent backscattering,

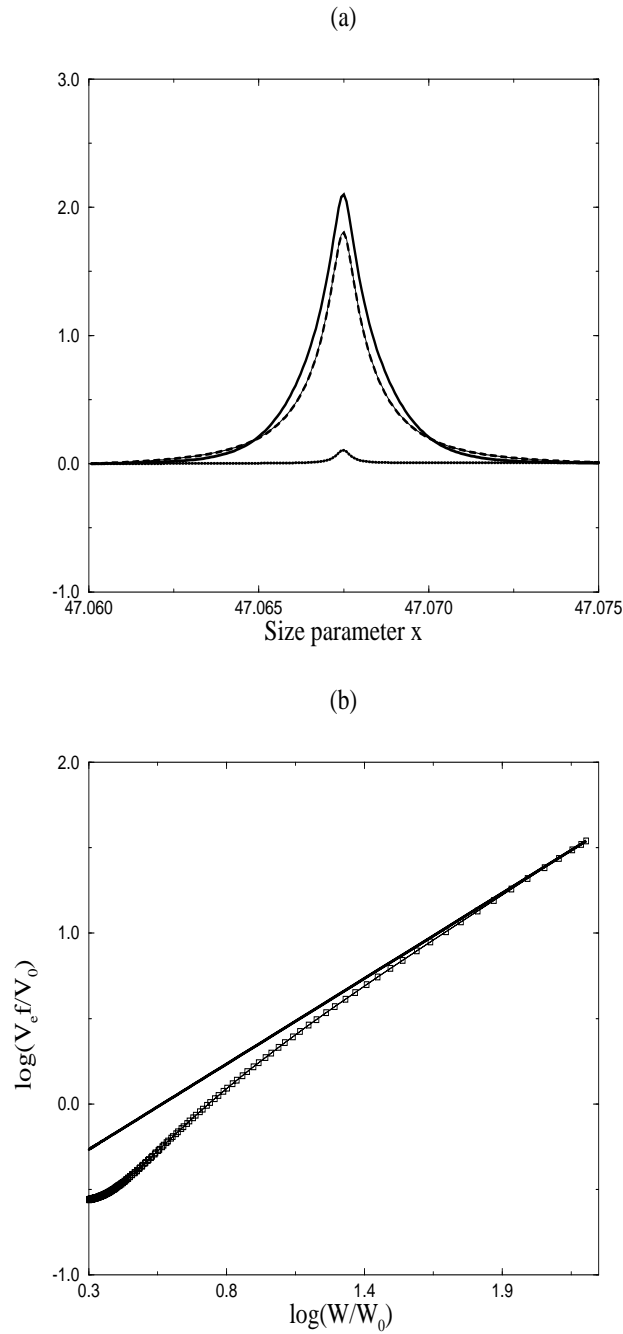


Figure B.4: Near a particular resonance curve of a water sphere of index  $m = 1.334 - 1.5 \cdot 10^{-9}i$  the following curves have been plotted: (a) Respectively from the upper part of the figure to the bottom: a plot of  $\log(V_{eff}/(fV_0))$  (solid),  $\log W$  (dashed), and the scattering cross-section  $Q_{scatt}$  (dotted) as a function of the size parameter  $x$ . (b) Close to this particular resonance,  $\log(V_{eff}/(fV_0))$  is shown against the total electromagnetic energy  $W$  (dots), to be compared with a line of slope one (solid), the prediction of Eq. (B.34).

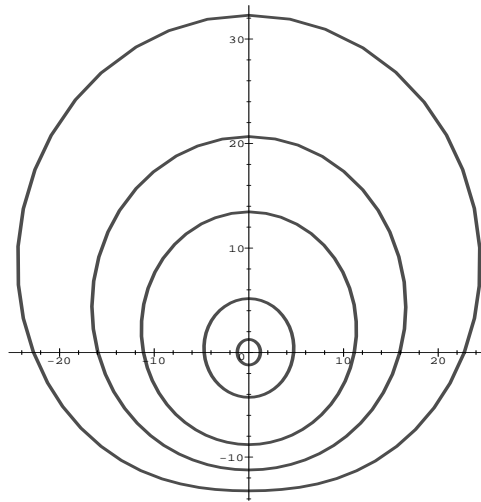


Figure B.5: Polar plot of the lines of constant enhancement factor of the coherent backscattering cone in a magnetic field, in the helicity-conserving channel, for  $b_1 = 1.8 \cdot 10^{-2}$ . The magnetic field is along the horizontal axis on this graph. The graduations of the axis represent the dimensionless parameter  $\mu = \omega \ell \theta$ . For instance, a graduation of 10 corresponds to an angle of 145mrad (for the mean free path  $\ell^* \simeq 90 \mu\text{m}$ , and the wavelength  $\lambda = 457\text{nm}$  mentioned in the text). Without magnetic field or for a magnetic field perpendicular to the slab, these lines of constant enhancement factor would have been circles.

directly from  $\tilde{\rho}(\mathbf{q} = 0, z - \ell^* \hat{p}_z, z' + \ell^* \hat{p}'_z)$ . Similarly, the coherent contribution is obtained from the most-crossed diagrams  $C_{ijkl}^+(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B})$ , which are derived from  $L_{ijkl}^-(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}, \mathbf{B})$  using Eq. (B.14). These derivations are detailed out in Appendix A. The coherent contribution in an helicity basis and at reflection ( $z = 0, z' = 0$ ) reads,

$$C_{\sigma\sigma'}^+ = \tilde{\rho}(\mathbf{p}_\perp + \mathbf{p}'_\perp, -\ell^* \hat{p}_z, \ell^* \hat{p}'_z) \times \delta_{\sigma\sigma'} \times (1 + 2b_1 \omega \ell \det(\hat{\mathbf{p}}'_\perp, \hat{\mathbf{p}}_\perp, \hat{\mathbf{B}}) - 2\sigma b_2 \omega \ell \hat{\mathbf{B}} \cdot (\hat{\mathbf{p}}_\perp + \hat{\mathbf{p}}'_\perp)). \quad (\text{B.37})$$

where the Kronecker symbol  $\delta_{\sigma\sigma'}$  guarantees conservation of helicity  $\sigma(\hat{\mathbf{p}}) = \sigma'(\hat{\mathbf{p}}')$ , and  $b_1$  and  $b_2$  are real-valued coefficients to be determined. Most experiments on coherent backscattering were done in the helicity-conserving channel, which has the advantage of having a maximal enhancement factor (since the contribution from single scattering vanishes in this case) and of having an isotropic line shape. Eq. (B.37) states that the magnetic field modifies the cone exactly in this channel, in agreement with previous work [3]. Even when a magnetic field is present, no coherent backscattering is found in the opposite-helicity channel, at least according to the present diffusion approximation.

Only the components of the magnetic field along the slab contribute in the r.h.s of Eq. (B.37). When the field is perpendicular to the slab, the decrease of the enhancement factor, described by  $\lambda$ , is the sole impact of the magnetic field and is not included in the present approximation. When the magnetic field is in the plane of the slab, two corrections show up. The first one, proportional to  $b_1$ , is magneto-transverse, since it produces a shift of the intensity profile of the cone in the plane of the slab, normal to the magnetic field. This correction is independent of the state of helicity of the light. The second correction in Eq. (B.37) proportional to  $b_2$  does depend on the helicity  $\sigma$ . It produces a shift of the intensity profile of the cone in the direction of the magnetic field in the plane of the slab, quite similar to the correction induced by the magnetic field in the group velocity [21].

The coefficient  $b_1$  can be calculated independently from  $b_2$ , in a way exactly analogous to the calculation of  $a_1$  in Ref. [11] responsible for the *Photonic Hall Effect* (PHE). The result is

$$b_1 = \frac{1}{(1 - \langle \cos \theta \rangle)^2} \frac{\int_{-1}^1 d \cos \theta \sin \theta \sum_{\sigma\sigma'} \Im m \left( T_{\sigma\sigma'}^0(\theta) \overline{T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}}, \theta)} \right)}{2 \int_{-1}^1 d \cos \theta \sum_{\sigma\sigma'} |T_{\sigma\sigma'}^0(\theta)|^2}, \quad (\text{B.38})$$

where the magneto T-matrix  $T_{\sigma\sigma'}^1(\hat{\mathbf{B}} = \hat{\mathbf{g}})(\theta)$  was introduced in Eq. (B.10). Note that the imaginary part in Eq. (B.38) discriminates  $b_1$  from the parameter  $a_1$  responsible for the PHE, in which the *real* part figures. For Rayleigh scattering, one can readily prove that the parameters  $b_1$  and  $b_2$  both vanish. The calculation of  $b_2$  for Mie scattering is very complicated and is beyond the scope of this paper.

The expected modification of the lines of equal enhancement factor due to the magnetic field is now investigated. Equation (B.37) translates into a CBS line shape

$$E(\mu, \varphi) = 1 + C(\mu)(1 + 2b_1 \mu \sin \varphi - 2b_2 \sigma \mu \cos \varphi). \quad (\text{B.39})$$

The enhancement factor, in the helicity-conserving channel, is denoted by  $E$  for a state of helicity  $\sigma$ . The dimensionless parameter  $\mu = \omega\ell\theta$  and  $C(\mu)$  the well-documented line shape of the cone without applied magnetic field were introduced [4]. The azimuthal angle between the projection of the outgoing wave vector into the plane of the slab and the magnetic field direction, which has been chosen along the  $x$ -axis, was denoted by  $\varphi$ . For simplicity, only the magneto-transverse correction proportional to  $b_1$  will be considered here, so that  $b_2 = 0$ . This case corresponds to unpolarized incident light, for which the term proportional to  $b_2$  in Eq. (B.39) vanishes. The pattern of the lines of equal enhancement factor associated with the  $b_2$ -correction alone is the same as the one of the transverse correction after a rotation of angle  $\pi/2$  about the  $x$ -axis. For a typical experiment [22] with  $\text{CeF}_3$  particles of approximate radius of  $2\mu\text{m}$  at room temperature, with a wavelength  $\lambda = 457\text{nm}$ , Eq. (B.38) leads to the estimation  $b_1 \simeq 1.8 \cdot 10^{-2}$ . The experimentally measured mean free path for a volume fraction of  $f = 0.1$  is  $\ell^* \simeq 90\mu\text{m}$ . Eq. (B.39) is valid for  $b_1\mu \ll 1$ , which means that our approach is limited to the angular domain  $|\theta| \leq 0.8\text{rad}$ . The equation for the lines of constant enhancement factor  $E_0$  in the absence of magnetic field is  $E_0 = 1 + C(\mu^0)$ , independent of the azimuthal angle  $\varphi$ . The first order correction in the magnetic field is separated by writing  $\mu = \mu^0 + \mu^1$ . Equation (B.39) gives

$$\mu^1 = -2b_1 \frac{C(\mu^0)}{C'(\mu^0)} \mu^0 \sin \varphi. \quad (\text{B.40})$$

In Fig. (B.5), the polar diagram of the lines of constant enhancement factor is shown for  $b_1 = 1.8 \cdot 10^{-2}$ . As apparent from Eqs. (B.39,B.40), the distortion of the lines should increase away from backscattering (at exact backscattering there is no modification at all to first order in the magnetic field). As a consequence, with the value of  $b_1$  given above only a modification of the line shape in the wings might be observed. Although the condition  $b_1\mu \ll 1$  limits the domain of validity of the approximation there should nevertheless be a sufficiently broad angular range, in the wings of the cone, where the magnetic corrections could be visible. In figure B.5 the condition of validity of the approximation has been satisfied.

Another condition of validity lies in the use of the diffusion approximation. This approximation predicts a  $1/\mu^2$  behavior for the line shape of the cone in the wings, which is actually a wrong result. In the wings, the contribution of lowest orders of scattering is dominant and not properly taken into account in the diffusion approximation. Using an exact theory, Gorodnichev proved that the outcome is a  $1/\mu$  dependence [23]. His result has been derived only for point-like scatterers but it should also be valid for Mie scatterers when the mean free path is much larger than the wavelength. In any case, the magnetic correction in Eq. (B.40) depends only on the logarithmic derivative of  $C(\mu^0)$ , which should change only by a factor of two if the actual law is  $1/\mu$  or  $1/\mu^2$ , the general pattern of the lines of equal enhancement factor being not modified. Therefore, the shift of the center of mass of the light intensity profile which was calculated, should be fairly robust with respect to the exact form of  $C(\mu^0)$ .

## B.9 Conclusion

This paper describes two modifications on the coherent backscattering cone produced by a magnetic field. The first one, the decrease of the enhancement factor, depends on the parameter  $\lambda$  quadratic in the magnetic field, and was observed experimentally. The second modification is related to the anisotropy of the light intensity and appears already in linear order of the magnetic field. Preliminary experiments seem to have reported the possibility of a shift in the intensity profile [24]. Our analysis applies to spherical scatterers of any size that are Faraday active. The decrease of the backscattering cone gets less pronounced as the size of the scatterers increases, whereas the shift in the intensity profile is only possible with finite size scatterers. As was surmised in Ref. [7], the effective Verdet constant defined from the decrease of the cone is enhanced near Mie resonances. The effective Verdet constant is found to be intimately related to the stored electromagnetic energy *i.e.* the dwell time of the light in the particle.

We acknowledge R. Lenke for making available his recent experimental work on the effect of a magnetic field on coherent backscattering light. We thank JJ. Greffet for stimulating discussions.



## B.10 Derivation of the magnetic corrections to the cone-matrix element $C_{\sigma\sigma'}^+$

In this appendix, the notations are explained and a demonstration of Eq. (B.37) is given. The transverse part of the free Green tensor is denoted

$$\mathbf{G}_0 = \frac{\Delta_{\hat{\mathbf{p}}}}{(\omega/c_0)^2 + i\varepsilon - p^2}, \quad (\text{B.41})$$

with  $(\Delta_{\hat{\mathbf{p}}})_{ij} = \delta_{ij} - \hat{p}_i\hat{p}_j$  the projector upon the space orthogonal to  $\mathbf{p}$ . Similarly, the hermitian projector on the space orthogonal to  $\mathbf{p}$  for a given state of helicity  $\sigma$  is  $P_{ij}^\sigma(\hat{\mathbf{p}}) = \frac{1}{2}((\Delta_{\hat{\mathbf{p}}})_{ij} - i\sigma\varepsilon_{ijk}\hat{p}_k)$ .

Generalizing Eq. (B.18) for finite value of  $\mathbf{q}$  (to first order in  $\mathbf{q}$  and in the magnetic field  $\mathbf{B}$ ) gives

$$\mathbf{d}(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \mathbf{I} + d_2\Phi + [\mathbf{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) - \Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})] \frac{\ell}{2i\omega}, \quad (\text{B.42})$$

where  $\mathbf{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = 2(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q})\mathbf{I} - \mathbf{p}\mathbf{q} - \mathbf{q}\mathbf{p}$  and  $\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$  are tensors of rank two, linear in  $\mathbf{q}$ , that determine the anisotropy in diffuse scattering. Without a magnetic field it is well known that  $\Gamma^0(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = 2(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q})/(1 - \langle \cos\theta \rangle)$ . When a magnetic field is present, the first order correction in the magnetic field is separated as  $\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \Gamma^0(\mathbf{p}, \mathbf{q}) + B\delta\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}})$ . Because of the symmetry relation of Eq. (B.4), one has  $\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = \Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, -\mathbf{B})^*$ . This implies that  $\delta\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}}) = -\delta\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}})^*$ , so that  $\delta\Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}})$  must be anti-hermitian. Mirror symmetry imposes in addition that  $\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B}) = \mathbf{T}_{-\mathbf{p}-\mathbf{p}'}(\mathbf{B})$  and thus  $\Gamma^-(-\mathbf{p}, -\mathbf{q}, \mathbf{B}) = \Gamma^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ . The general form of the tensor  $\delta\Gamma^+(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}})$  allowed by symmetry has already been discussed in Ref. [11] and will be only slightly different for  $\delta\Gamma^-$ :

$$\delta\Gamma_{ij}^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}}) = ib_1 \det(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}}) \delta_{ij} - i\varepsilon_{ijk} p_k \left[ ib_2(\hat{\mathbf{B}} \cdot \mathbf{q}) + ib_3(\hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{p}})(\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}) \right] + ib_4 [p_k \Phi_{ki} q_j + q_i p_k \Phi_{kj}], \quad (\text{B.43})$$

where the  $b_i$  are real-valued coefficients to be determined.

The contribution of the first and the last scattering events is obtained by multiplying the tensor for the ladder diagrams of Eq. (B.16) by free Green tensors  $\mathbf{G}_0$ . This gives the incoherent contribution to the coherent backscattering,

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_0 \mathbf{G}_0^* \cdot L^+(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) \cdot \mathbf{G}_0 \mathbf{G}_0^* &\simeq \mathbf{G}_0 \cdot d(\mathbf{p}, \mathbf{q}) \cdot \mathbf{G}_0^* \mathbf{G}_0^* \cdot d(-\mathbf{p}', -\mathbf{q}) \cdot \mathbf{G}_0, \\ &\simeq (1 - i\ell^* \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{q}) \tilde{\rho}(\mathbf{q} = 0, z, z') (1 + i\ell^* \hat{\mathbf{p}}' \cdot \mathbf{q}) \Delta_{\hat{\mathbf{p}}} \Delta_{\hat{\mathbf{p}}}', \\ &\simeq \tilde{\rho}(\mathbf{q} = 0, z - \ell^* \hat{p}_z, z' + \ell^* \hat{p}'_z) \Delta_{\hat{\mathbf{p}}} \Delta_{\hat{\mathbf{p}}}', \end{aligned}$$

in terms of the Fourier transform of the ladder propagator  $\tilde{\rho}(\mathbf{q}, z, z')$ , which is obtained from the solution of the diffusion equation (B.35). The coherent contribution depends on the most-crossed diagrams  $C_{ijkl}^+$ . The tensor  $C_{ijkl}^+$  is obtained from  $L_{ijkl}^-$  after reversing the indices  $k$  and  $l$ , according to Eq. (B.14), and after adding the contribution of the first and the last scattering event. In this calculation of the tensor  $C_{ijkl}^+$ , the reciprocity transformation (B.14) for the normal components  $z$  and  $z'$  of the tensor has been neglected. The result is finally evaluated at reflection where  $z = z' = 0$ . The components of the ingoing and outgoing wave vectors  $\mathbf{p}, \mathbf{p}'$  perpendicular to the  $z$  axis are denoted by  $\mathbf{p}_\perp, \mathbf{p}'_\perp$ . Finally the coherent contribution can be written

$$C_{ijkl}^+(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{p} + \mathbf{p}', \mathbf{B}) = \tilde{\rho}(\mathbf{p}_\perp + \mathbf{p}'_\perp, -\ell^* \hat{p}_z, \ell^* \hat{p}'_z) \times \\ \Delta_{il} \Delta_{jk} + i \left[ \Delta_{il} M_{jk}^- \left( \frac{\mathbf{p}'_\perp - \mathbf{p}_\perp}{2}, \mathbf{p}_\perp + \mathbf{p}'_\perp, -\mathbf{B} \right) + M_{il}^- \left( \frac{\mathbf{p}_\perp - \mathbf{p}'_\perp}{2}, \mathbf{p}_\perp + \mathbf{p}'_\perp, \mathbf{B} \right) \right] \quad (\text{B.44})$$

with the definition

$$M_{ij}^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}) = -\zeta \Phi_{ij} - \frac{\ell}{\omega} \Gamma_{ij}^-(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B}), \quad (\text{B.45})$$

and  $\zeta = 2(id_2 - \eta)$  is the Mie generalization of the parameter  $F$  in Eq. (73) of Ref. [4], which was shown to produce a rotation of the polarization vector in the linear polarization channels of coherent backscattering. To first order in the magnetic field, the front factor  $\tilde{\rho}(\mathbf{p}_\perp + \mathbf{p}'_\perp, -\ell^* \hat{p}_z, \ell^* \hat{p}'_z)$  of Eq. (B.44) is evaluated by replacing the parameter  $L_a$ , which was an absorption length for the evaluation of the light intensity in Eq. (B.35), by a factor depending on the backscattering angle according to:

$$\frac{1}{L_a^2} \rightarrow (\mathbf{p}_\perp + \mathbf{p}'_\perp)^2.$$

In second order in the magnetic field,  $\lambda$  would be present here as well as stated in Eq. (B.16).

The values of the coefficients  $b_i$  can only be found by solving a system of four coupled equations that one obtains when inserting Eqs. (B.42,B.43) into Eq. (B.19), and which is not reported explicitly here. The contribution of  $b_3$  always vanishes in Eq. (B.44), since it is proportional to the scalar product  $\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}$  in Eq. (B.43), which is transformed into  $(\hat{\mathbf{p}}' - \hat{\mathbf{p}}) \cdot (\hat{\mathbf{p}} + \hat{\mathbf{p}}') = 0$  in the operation involved in Eq. (B.14). For the same reason there is no contribution of  $\Gamma^0(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  in Eq. (B.44). Selection rules for the polarization are obtained in the helicity basis by considering the product

$$C_{\sigma\sigma'}^+ = \overline{P_{ik}^\sigma}(\hat{\mathbf{p}}) C_{ijkl}^+ P_{jl}^{\sigma'}(\hat{\mathbf{p}}'). \quad (\text{B.46})$$

In this calculation, the terms proportional to  $\zeta$  in Eq. (B.45) disappear, as well as the contribution from  $b_4$  which is longitudinal as can be seen from Eq. (B.43). Among the four terms of  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \hat{\mathbf{B}})^-$ , only the terms proportional to  $b_1$  and  $b_2$  survive, and Eq. (B.37) is obtained for  $C_{\sigma\sigma'}^+$ .

# Bibliography

- [1] E. Akkermans, P. E. Wolf, R. Maynard, and G. Maret. Theoretical study of coherent backscattering of light by disordered media. *J. Phys. France*, 49:77–98, 1988.
- [2] A. A. Golubentsev. Suppression of interference effects in multiple scattering of light. *JETP*, 59(1):26–32, 1984.
- [3] F. C. MacKintosh and S. John. Coherent backscattering of light in the presence of time-reversal-noninvariant and parity-nonconserving media. *Phys. Rev. B*, 37(4):1884–1897, 1988.
- [4] B. A. Van Tiggelen, R. Maynard, and T. M. Nieuwenhuizen. Theory for multiple light scattering from Rayleigh scatterers in magnetic fields. *Phys. Rev. E*, 53(3):2881–2908, 1996.
- [5] A. S. Martinez and R. Maynard. Faraday effect and multiple scattering of light. *Phys. Rev. B*, 50(6):3714–3732, 1994.
- [6] J. Q. Lu, A. A. Maradudin, and R. F. Wallis. Enhanced backscattering in a magnetic field. *Waves in Random Media*, 1:309–339, 1991.
- [7] F. A. Erbacher, R. Lenke, and G. Maret. Multiple light scattering in magneto-optically active media. *Europhys. Lett.*, 21(5):551–556, 1993. The value for the effective Verdet constant given on page 555, and should be divided by a factor  $\sqrt{2}$  due to a forgotten factor of 2 in Eq. (3).
- [8] D. Lacoste, B. A. Van Tiggelen, G. L. J. A. Rikken, and A. Sparenberg. Optics of a Faraday-active Mie sphere. *J. Opt. Soc. Am. A*, 15:1636–1642, 1998.
- [9] D. Lacoste and B. A. Van Tiggelen. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. *JQSR*, 63:305–19, 1999.
- [10] E. Akkermans, P. E. Wolf, R. Maynard, and G. Maret. Theoretical study of the coherent backscattering of light by disordered media. *J. Phys. France*, 49:77–98, 1988.
- [11] D. Lacoste and B. A. Van Tiggelen. Transport mean free path for magneto-transverse light diffusion. *Europhys. Lett.*, 45(6):721–725, 1999.

- [12] A. Sparenberg, G. L. J. A. Rikken, and B. A. Van Tiggelen. Observation of photonic magneto-resistance. *Phys. Rev. Lett.*, 79(4), 1997.
- [13] H. C. Van de Hulst. *Light Scattering by Small Particles*. Dover, New York, 1980.
- [14] T. K. Xia, P. M. Hui, and D. Stroud. Theory of Faraday rotation in granular magnetic material. *J. Appl. Phys.*, 67(6):2736–41, 1990.
- [15] A. Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media*, volume 1. Academic Press, San Diego, 1978.
- [16] R. Landauer. Barrier interaction time in tunneling. *Rev. Mod. Phys.*, 66(1):217–228, 1994.
- [17] A. Bott and W. Zdunkowski. Electromagnetic energy within dielectric spheres. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(8):1361–1365, 1987.
- [18] P. Chýlek, J. T. Kiehl, and M. K. W. Ko. Optical levitation and partial-wave resonances. *Phys. Rev. A*, 18(5):2229–33, 1978.
- [19] H. Y. Ling. Theoretical investigation of transmission through a Faraday-active Fabry-Perot etalon. *J. Opt. Soc. Am. A*, 11:754–758, 1994.
- [20] M. B. Van der Mark, M. P. Van Albada, and A. Lagendijk. Light scattering in strongly scattering media: Multiple scattering and weak localization. *Phys. Rev. B*, 37(7):3575–3592, 1988.
- [21] L. Landau, E. Lifchitz, and L. Pitayevski. *Electrodynamics of Continuous Media*. Mir, Moscow, 1967.
- [22] G. L. J. A. Rikken and B. A. Van Tiggelen. Observation of magnetically induced transverse diffusion of light. *Nature*, 381:54–55, 1996.
- [23] E. E. Gorodnichev, S. L. Dudarev, and D. B. Rogozkin. Coherent wave backscattering: Exact solution of the albedo problem. *Phys. Lett. A*, 144(1):48–54, 1990.
- [24] R. Lenke and G. Maret. Private Communication.

## Chapitre 4

# Diffusion multiple dans les milieux chiraux

### 4.1 Introduction

Dans cette section, nous cherchons à étendre l'approche précédente concernant la diffusion magnéto-transverse aux milieux chiraux, à la lumière des nombreuses similitudes entre les deux domaines apparues déjà au niveau de la diffusion simple dans la première partie. Nous ne trouvons pas d'équivalent de la diffusion magnéto-transverse ou de l'Effet Hall Photonique, pour la simple raison qu'il n'y a aucune direction privilégiée en diffusion multiple susceptible de jouer le rôle du champ magnétique. Nous ne trouvons pas non plus de correction chirale au coefficient de diffusion à l'ordre le plus bas dans le paramètre chirale  $g$ , et comme  $g \ll 1$ , les corrections à l'ordre suivant sont tout à fait négligeables. C'est pourquoi, dans la suite nous nous concentrons sur l'étude des paramètres de Stokes en régime de diffusion multiple dans un milieu constitué de diffuseurs chiraux. Le paramètre  $V$  qui représente le degré de polarisation circulaire de la lumière diffusée, pourrait ainsi être affecté par le caractère chirale des diffuseurs à l'ordre un en  $g$ . Ce problème n'a pas fait l'objet d'expériences à notre connaissance pour l'instant, contrairement au problème inverse consistant à étudier la polarisation de la lumière dans un milieu chirale contenant des diffuseurs non-chiraux.

Comme dans de nombreux autres problèmes d'électromagnétisme, il n'existe malheureusement aucune transformation qui permette de traiter le problème inverse à partir du problème direct. Dans un milieu chirale contenant des diffuseurs non chiraux, des expériences récentes ont été réalisées par Silverman *et al.* [SSBV99]. Ces expériences ont pu être interprétées théoriquement dans l'approximation de Born [LS95]. Les expériences ont montré une persistance de l'activité optique jusqu'à des concentrations suffisantes pour supprimer complètement le faisceau cohérent. Il s'agit des premières expériences sur l'activité optique en diffusion multiple. La compréhension de la polarisation dans les milieux chiraux en diffusion multiple ouvre de vastes perspectives pour les applications notamment à

l'imagerie en milieu turbide (dans les milieux biologiques en particulier). Dans un milieu comme le sang par exemple, la concentration en sucre avoisine  $1\text{gl}^{-1}$ , le libre parcours moyen est de l'ordre de  $1\text{mm}$ , beaucoup plus petit que la longueur d'absorption de l'ordre de plusieurs  $\text{cm}$ . Si on considère que ce sucre est uniquement du glucose, on s'attend à un pouvoir rotatoire de l'ordre de  $0.5^\circ\text{m}^{-1}$ , ce qui correspond à une valeur de  $g$  de l'ordre de  $7 \cdot 10^{-8}$  à la longueur d'onde de  $589\text{nm}$ . L'activité optique du sang est faible mais mesurable. Par ailleurs, il est certainement possible d'augmenter cette activité optique par un choix approprié de la longueur d'onde, le pouvoir rotatoire dépendant fortement de la longueur d'onde. Pour cette raison, nous cherchons à construire une théorie de la diffusion dans les milieux chiraux diffus pour une longueur d'onde et une taille des diffuseurs arbitraires.

## 4.2 Théorie microscopique

L'égalité de Ward (2.12) traduit la conservation de l'énergie en diffusion multiple. Elle n'est plus valable lorsque le potentiel est non-local et lorsque  $\mathbf{q} \neq 0$ , ce qui est le cas dans les milieux chiraux en général. Nous introduisons un tenseur d'ordre deux  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ , linéaire en  $\mathbf{q}$ , qui quantifie cette violation de l'égalité de Ward due au caractère non-local du potentiel:

$$\sum_{\mathbf{p}'} \mathbf{U}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{q}) \cdot \Delta \mathbf{G}_{\mathbf{q}}(\mathbf{p}') = \Delta \Sigma_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}) - \mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q}). \quad (4.1)$$

On montrera à la section suivante que la présence de  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  dans cette équation signifie que le courant associé au transport de l'énergie n'est pas égal au vecteur de Poynting  $\Re(\mathbf{E}(\mathbf{p}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{p}))$  dans un milieu chiral en diffusion multiple. Nous allons montrer dans cette section que ce tenseur  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ , est intimement lié à l'énergie électromagnétique stockée dans le milieu chiral. A la section 4.10.1 de la partie I, nous avons noté que le temps de séjour dans un milieu chiral, qui est une mesure de l'énergie électromagnétique stockée dans les diffuseurs, ne pouvait pas être défini à partir de la matrice  $\mathbf{T}$  d'un diffuseur chiral comme dans le cas magnéto-optique, car la phase de la matrice  $\mathbf{T}$  du diffuseur chiral ne s'accumule pas sur des aller-retours. Nous allons montrer ici que  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  pourrait servir à définir le temps de séjour dans un milieu chiral, par analogie avec le rôle joué par la matrice  $\mathbf{T}$  dans le cas magnéto-optique.

En utilisant les formes prises par le vertex  $\mathbf{U}$  et par la self-énergie  $\Sigma$  dans l'approximation de Boltzmann, on déduit de l'Eq. (4.1)

$$\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = n \frac{\partial}{\partial \mathbf{q}} \left( \frac{1}{2i} (\mathbf{T}_{\mathbf{p}^+\mathbf{p}^+} - \mathbf{T}_{\mathbf{p}^-\mathbf{p}^-}) - \sum_{\mathbf{p}'} \mathbf{T}_{\mathbf{p}^+\mathbf{p}'} \mathbf{T}_{\mathbf{p}'\mathbf{p}^-}^* \cdot \Delta \mathbf{G}_{\mathbf{q}}(\mathbf{p}') \right)_{\mathbf{q}=0}. \quad (4.2)$$

Pour calculer les dérivées de la matrice  $\mathbf{T}$  du diffuseur chiral par rapport à  $\mathbf{q}$  qui interviennent dans l'équation ci-dessus, on commence par calculer la dérivée du potentiel du diffuseur chiral par rapport

à  $\mathbf{q}$ . On rappelle la forme du potentiel du diffuseur chiral obtenu à l'équation (I.4.18)

$$\mathbf{V}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, \omega) = V_0 \Theta(\mathbf{r}) \mathbf{I} - \omega^2 g' [\Theta(\mathbf{r}) \Phi_{\mathbf{p}} + \Phi_{\mathbf{p}} \Theta(\mathbf{r})], \quad (4.3)$$

où  $V_0$  désigne la constante  $V_0 = \omega^2 (1 - \varepsilon\mu)$ . On désigne toujours les différents ordre en  $g$  par un indice supérieur  $\mathbf{V} = \mathbf{V}^0 + \mathbf{V}^1$ . On obtient facilement

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{q}} (\mathbf{V}_{\mathbf{p}+\mathbf{p}'}) = -g' i\varepsilon \frac{\mathbf{V}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}}{V_0}. \quad (4.4)$$

La dérivée de la matrice  $\mathbf{T}$  par rapport à  $\mathbf{q}$  peut s'écrire comme la somme de deux termes: le premier provient de la dérivée par rapport à  $\mathbf{q}$  des tenseurs de Green-Dyson présents dans la matrice  $\mathbf{T}$ , c'est  $\frac{\partial}{\partial \mathbf{q}} (\mathbf{V}_{\mathbf{p}+\mathbf{p}'})_{\mathbf{V}, \mathbf{q}=0}$ . Le second terme provient des dérivés par rapport à  $\mathbf{q}$  du potentiel présent dans la matrice  $\mathbf{T}$ . En utilisant (4.4), on peut écrire ce terme comme une dérivée de la matrice  $\mathbf{T}$  par rapport au potentiel, ce qui permet de relier ce terme à la matrice  $\mathbf{T}$  du cas magnéto-optique par rapport au champ magnétique  $\mathbf{B}$ , pour un paramètre  $\varepsilon_F = g'/V_0$ . Cela donne finalement

$$\frac{\partial}{\partial \hat{\mathbf{q}}} (\mathbf{T}_{\mathbf{p}+\mathbf{p}'}(g))_{\mathbf{q}=0} = \frac{\partial}{\partial \hat{\mathbf{q}}} (\mathbf{T}_{\mathbf{p}+\mathbf{p}'}(g))_{\mathbf{V}, \mathbf{q}=0} + \lim_{\mathbf{B} \rightarrow 0} \frac{\partial}{\partial \mathbf{B}} (\mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\mathbf{B}))_{\mathbf{q}=0}. \quad (4.5)$$

Par construction de  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ , le premier terme du membre de droite de cette équation doit disparaître lorsqu'on reporte l'Eq. (4.5) dans l'Eq. (4.2), car si le potentiel est local, il n'y a pas de correction  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  à l'identité de Ward. Par conséquent, seul compte le second terme du membre de droite de l'équation (4.4), c'est à dire la dérivée par rapport au champ magnétique  $\mathbf{B}$  de la matrice  $\mathbf{T}$  du cas magnéto-optique. En utilisant les expressions données à la section 4.2 de la partie I pour cette matrice  $\mathbf{T}$ , on aboutit finalement à la forme suivante pour  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$

$$W(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = -\frac{2g'\omega}{V_0} \langle \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- | \Theta i\varepsilon \cdot \mathbf{q} | \Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- \rangle. \quad (4.6)$$

où  $\mathbf{q}$  représente ici un vecteur quelconque. Le calcul de  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  est très analogue à celui de la matrice  $\mathbf{T}$  pour le cas magnéto-optique, l'opérateur  $i\varepsilon \cdot \mathbf{q}$  étant l'analogue du tenseur  $\Phi = i\varepsilon \cdot \mathbf{B}$  au remplacement de  $\mathbf{q}$  par  $\mathbf{B}$ . La différence principale entre ces deux quantités est liée à la présence de deux fonctions *identiques*  $|\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- \rangle$  dans  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$ , ce qui laisse prévoir un lien avec l'énergie électromagnétique  $W_{Bott}$  dont la définition contient également deux fonctions *identiques*  $|\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^+ \rangle$ . En développant dans l'Eq. (4.7), les fonctions propres  $|\Psi_{\sigma, \mathbf{k}}^- \rangle$  sur la base des harmoniques sphériques vectorielles comme on l'a fait pour la matrice  $\mathbf{T}$  du cas magnéto-optique à la première partie, on obtient

$$W(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = i\varepsilon \cdot \mathbf{q} \frac{2g'}{V_0} \sum_J (2J+1) (\mathcal{C}'_J + \mathcal{D}'_J) = i\varepsilon \cdot \mathbf{q} W_0, \quad (4.7)$$

où les coefficients sont identiques aux coefficients  $\mathcal{C}_J$  et  $\mathcal{D}_J$  définis à l'appendice A au remplacement



de  $c_J$  par  $|c_J|$ . Dans l'appendice, une expression analogue a été obtenue pour la matrice  $T$  du cas magnéto-optique vers l'avant  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ , à la différence près qu'ici la constante  $W_0$  est réelle. L'expression de la partie électrique de l'énergie électromagnétique stockée dans une sphère diélectrique fournie par Bott *et al.* à la Ref. [BZ87] peut s'écrire en fonction de ces mêmes coefficients  $\mathcal{C}_J$  et  $\mathcal{D}_J$  sous la forme,

$$W_{Bott}^E = \frac{3m^4}{4y} \sum_J (2J + 1) (\mathcal{C}'_J + \mathcal{D}'_J).$$

Si on désigne par  $W(\mathbf{k}, \mathbf{q}, J)$  la part de  $W(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  correspondant à l'onde partielle  $J$ , et  $W_{Bott}^E(J)$  la part correspondante dans  $W_{Bott}^E$ , on a donc la relation suivante

$$W(\mathbf{k}, \mathbf{q}, J) \propto i\varepsilon \cdot \mathbf{q} \frac{W_{Bott}^E(J)}{J(J+1)} \quad (4.8)$$

La présence du facteur  $J(J+1)$  est une conséquence du théorème de Wigner-Eckhart. La matrice  $T$  du cas magnéto-optique a été construite à partir de l'opérateur vectoriel  $\mathbf{S}$ . De la même façon,  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  est construit à partir du tenseur  $i\varepsilon \cdot \mathbf{q}$ , qui correspond à l'opérateur vectoriel de spin  $\mathbf{S}$ . Au contraire, l'énergie électromagnétique est construite à partir d'un l'opérateur scalaire, qui est en fait l'opérateur identité. Le facteur  $J(J+1)$  résulte du théorème de projection pour les opérateurs vectoriels.

Le tenseur  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  est donc bien liée à l'énergie électromagnétique stockée dans le milieu chiral. On peut définir un temps de séjour comme on l'a fait à la section I.4.9 par

$$\tau = \frac{W_{Bott}^E}{2\omega}$$

ou bien à partir de la phase de  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  comme on l'a fait à la section I.4.10.1 pour la matrice  $T$  du cas magnéto-optique. La phase de  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  s'accumule sur les aller-retours de la lumière dans le milieu comme celle de la matrice  $T$  dans le cas magnéto-optique. En particulier pour  $J = 1$  on retrouve le comportement caractéristique en fonction d'Airy pour l'intensité dans le Fabry-Perot, ce qui signifie que la phase de  $\mathbf{W}(\mathbf{k}, \mathbf{q})$  s'accumule en fonction du trajet.

### 4.3 Transport de l'énergie

Une question importante est de savoir si la correction  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  modifie l'expression du vecteur de Poynting ou encore le coefficient de diffusion en diffusion multiple. Ces deux quantités étant liées à la trace du tenseur  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ , la réponse s'obtient en déterminant explicitement ce tenseur. A partir des relations (1.14),(1.15) et (2.13), il est clair que la relation constitutive pour le tenseur  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  est modifiée de la façon suivante

$$\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = \mathcal{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) + \mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) + n \sum_{\mathbf{p}'} \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{p}') \cdot \Gamma(\mathbf{p}', \mathbf{q}) \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{p}') \cdot \mathbf{T}_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}^*. \quad (4.9)$$

Les relations de symétrie de la matrice  $\mathbf{T}$  dans un milieu chirale données aux Eqs. (4.19) se traduisent par des relations de symétrie pour le tenseur  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ . On sépare comme précédemment la correction à l'ordre 1 en  $g$  sous la forme  $\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = \Gamma_0(\mathbf{p}, \mathbf{q}) + \delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ . La relation de parité "brisée", propre aux milieux chiraux, conduit à la relation de symétrie  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = \delta\Gamma(-\mathbf{p}, \mathbf{q}, \mathbf{B})$ . Comme il n'y a qu'une seule représentation de dimension 1 pour  $\delta\Gamma(\mathbf{q}) \in 3 \otimes 3 \otimes 3$ , il n'y a qu'un seul tenseur solution. Dans la base circulaire, ce tenseur a la forme

$$\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})_{\sigma\sigma'} = -K \mathbf{p} \cdot \mathbf{q} \sigma(\hat{\mathbf{p}}) \delta_{\sigma\sigma'}, \quad (4.10)$$

où  $K$  est une constante réelle à déterminer. La correction chirale  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  a donc la même forme que celle obtenue pour  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = i\varepsilon \cdot \mathbf{q} W_0$  à l'équation (4.7) dans une base circulaire pour la polarisation.

D'après la relation (4.9), on voit que le tenseur  $\mathcal{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  est remplacé dans un milieu chirale par le tenseur par  $\mathcal{L}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) + \mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ . Le courant associé au transport de l'énergie s'obtient en généralisant la relation 2.10, ce qui donne

$$J_n(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = \frac{1}{2\omega} \sum_{\mathbf{p}} (2p_n \delta_{ik} - p_k \delta_{in} - p_i \delta_{nk} + i\varepsilon_{ikn} W_0) \langle E_k(\mathbf{p}^+) E_i^*(\mathbf{p}^-) \rangle. \quad (4.11)$$

Le terme supplémentaire  $i\varepsilon_{ikn} W_0$  signifie que la direction du flux d'énergie n'est pas donnée par le vecteur de Poynting  $\Pi(\mathbf{p}) = \Re e(\mathbf{E}(\mathbf{p}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{p}))$ . Le courant de densité d'énergie contient en plus du vecteur de Poynting  $\Pi(\mathbf{p})$ , un terme qui dépend du caractère dispersif du milieu et qui rend compte de cette différence (voir en particulier P513 de la Ref. [LLP67]). Cette conclusion généralise aux milieux chiraux inhomogènes en diffusion multiple les résultats de la section 2.4 de la partie I obtenus pour les milieux chiraux homogènes.

Le coefficient de diffusion dans un milieu chirale s'obtient soit par application de la relation de Kubo (2.15), soit en développant l'Eq. (4.11) à l'ordre un en  $\mathbf{q}$  et en utilisant la loi de Fick. Dans le premier cas, la correction chirale au coefficient de diffusion dépend de la trace de  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ , dans le second cas elle dépend de la trace de  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$ . Comme les traces de  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  et de  $\mathbf{W}(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  sont nulles, il n'y a pas de correction chirale pour le coefficient de diffusion à l'ordre 1 en  $g$ .

En développant chaque terme dans l'Eq. (4.9) à l'ordre 1 en  $g$ , on obtient l'expression de la constante  $K$  de l'Eq. (4.10)

$$K = \frac{W_0 (1 - \langle \cos \theta \rangle) - \langle \cos \theta \rangle_r + 2\xi \langle \cos \theta \rangle_p}{(1 - \langle \cos \theta \rangle) (1 - \langle \cos \theta \rangle_p)}. \quad (4.12)$$

On reconnaît dans cette équation, le terme responsable de la violation de l'égalité de Ward  $W_0$ , le facteur d'asymétrie  $\langle \cos \theta \rangle$ , qui rend compte de la différence entre le libre parcours moyen de

transport  $\ell^*$  et le libre parcours moyen de diffusion  $\ell$ . Les facteurs  $\langle \cos \theta \rangle_p$  et  $\langle \cos \theta \rangle_r$  jouent un rôle analogue à  $\langle \cos \theta \rangle$  pour la polarisation. On écrit la matrice  $T$  du diffuseur chiral donné à l'Eq. (4.23) de la partie I, sous la forme  $T^1(g) = R(\theta)\sigma\delta_{\sigma\sigma'}2\pi/\omega$  dans la base circulaire. Avec cette définition,

$$\xi = -\omega\ell\Im m(\varepsilon'_a),$$

représente la rotation de la polarisation sur une longueur de l'ordre du libre parcours moyen de diffusion  $\ell$ .  $\xi$  dépend de la partie antisymétrique de l'indice du milieu effectif  $\varepsilon'_a$ , défini comme pour le cas magnéto-optique à partir de la matrice  $T$  vers l'avant par  $\varepsilon'_a = 2\pi n R(\theta = 0)/\omega^3$ . Notons que  $\langle \cos \theta \rangle_p$  intervient également au chapitre suivant portant sur la rétrodiffusion cohérente sous champ magnétique sous la forme d'une longueur caractéristique de dépolarisation. Les facteurs  $\langle \cos \theta \rangle_p$  et  $\langle \cos \theta \rangle_r$  traduisent l'anisotropie de la diffusion par les diffuseurs, et sont définis par

$$\begin{aligned} \langle \cos \theta \rangle_p &= \frac{1}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 2\Re(S_1 \overline{S_2}) \mu d\mu + \mathcal{O}(g^0), \\ \langle \cos \theta \rangle_r &= \frac{4}{x^2 Q_{scatt}} \int_{-1}^1 2\Re(iR(S_1 + S_2)) \mu d\mu + \mathcal{O}(g^1), \end{aligned} \quad (4.13)$$

où  $\mu = \cos \theta$ .

## 4.4 Paramètres de Stokes

Nous considérons ici plus généralement les paramètres de Stokes qui décrivent la polarisation d'un milieu chiral en diffusion multiple. La lumière polarisée la plus générale étant elliptique, ces paramètres décrivent l'orientation et la forme de cette ellipse par rapport à un système d'axes lié à la lumière incidente. Dans un milieu chiral en diffusion multiple, il ne reste qu'un seul paramètre de Stokes indépendant du système d'axes autre que l'intensité  $I$ , c'est le paramètre  $V$ , qui décrit l'ellipticité de l'ellipse ou le degré de polarisation circulaire de la lumière diffusée. On montre ici que les autres paramètres de Stokes  $U$  et  $Q$  sont nuls à l'ordre d'approximation considéré. Le paramètre  $V$  est obtenu pour la transmission de la lumière à travers une tranche d'un milieu diffus et chiral d'épaisseur  $L$  éclairée uniformément. Là encore, on utilise l'approximation de diffusion, dans laquelle on considère que l'intensité diffusée est une fonction lentement variable à des échelles de l'ordre du libre parcours moyen.

A la section 1.4.1, nous avons donné l'expression du propagateur  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  décrivant l'intensité diffusée en diffusion multiple à travers une tranche au point  $\mathbf{r}'$  pour une source en  $\mathbf{r}$ . Considérons un éclairage uniforme dans le plan  $z = 0$ , ce qui est illustré à la figure 4.1 (la dépendance angulaire de la fonction d'éclairement peut être quelconque pourvu qu'elle ait la symétrie autour de l'axe  $z$ ). A cause de cette symétrie du problème autour de l'axe  $z$ , la luminance définie à la section 1.2 et notée

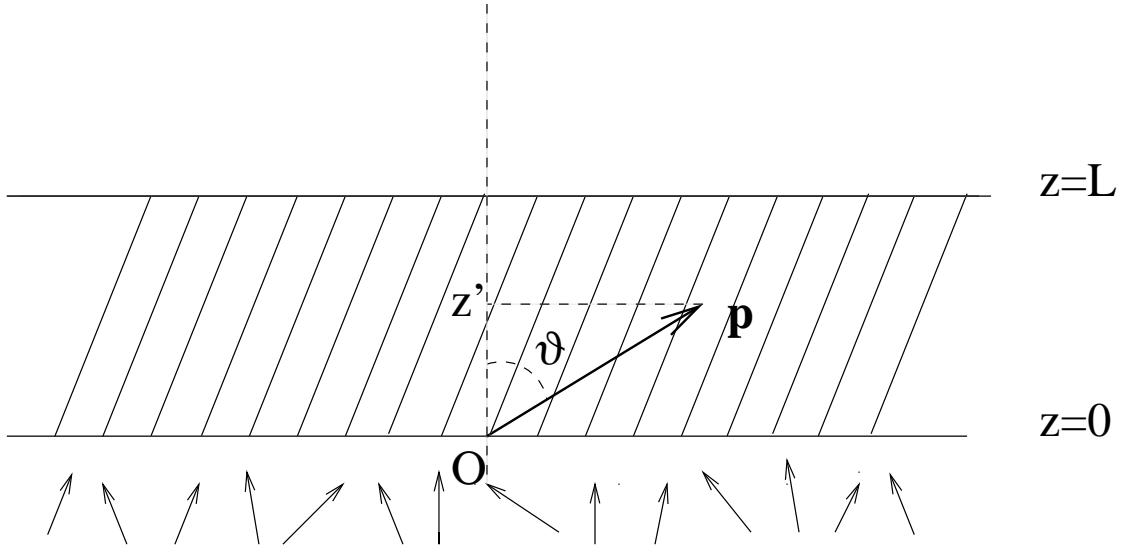


FIG. 4.1 - Schéma représentant la diffusion de la lumière par une tranche d'un matériau chiral diffusant compris entre les plans  $z = 0$  et  $z = L$ . La source placée en  $z = 0$  fournit un éclairage uniforme. On s'intéresse à la quantité de lumière diffusée  $\mathcal{I}(z', \vartheta)$  au point de coordonnées  $(z', \vartheta)$ .

ici  $\mathcal{I}(z', \vartheta)$  ne dépend que des coordonnées  $(z', \vartheta)$ , où  $\vartheta$  est l'angle que fait le vecteur d'onde  $\mathbf{p}$  avec l'axe  $z$ . D'après la relation (1.11), la luminance contient une partie isotrope et un flux qui vaut ici  $\partial_{z'} \tilde{P}(\mathbf{q} = 0, 0, z')$ . C'est le flux calculé dans un repère local lié au vecteur d'onde  $\mathbf{p}$ . Dans le repère lié à la tranche, ce flux est en fait  $\cos \vartheta \partial_{z'} \tilde{P}(\mathbf{q} = 0, 0, z')$ . Par conséquent, l'expression de la luminance est

$$\mathcal{I}(z', \vartheta) = (1 - \ell^* \cos \vartheta \partial_{z'}) \tilde{P}(\mathbf{q} = 0, 0, z') = \frac{2}{L + 4\ell^*/3} \left[ L - z' + \frac{2}{3} \ell^* \left( 1 + \frac{3}{2} \cos \vartheta \right) \right]. \quad (4.14)$$

Cette luminance ne contient pas de correction chirale, car celles-ci, si elles existaient feraient intervenir la trace de  $\delta\Gamma(\mathbf{p}, \mathbf{q})$  qui est nulle. Le facteur de transmission correspondant à cette luminance vaut simplement

$$\mathcal{I}(L, \vartheta) = \frac{4\ell^*}{3(L + 4\ell^*/3)} \left( 1 + \frac{3}{2} \cos \vartheta \right),$$

ce qui est une dépendance bien connue du facteur de transmission à travers une tranche en diffusion multiple (voir par exemple P183 de la Ref. [MF53]). Si on note  $E_{\pm}$ , les composantes circulaires du champ électrique, on peut écrire ces paramètres de Stokes en transmission

$$V^1(\hat{\mathbf{p}}) = \int (|E_+|^2 - |E_-|^2) p^2 dp$$

$$I^0(\hat{\mathbf{p}}) = \int (|E_+|^2 + |E_-|^2) p^2 dp, \quad (4.15)$$

où l'indice 1,0 signifie l'ordre 1 ou 0 en  $g$ . En utilisant l'expression des fonctions de corrélations du champ  $\langle E_n(\mathbf{p}^+) E_m^*(\mathbf{p}^-) \rangle$  obtenues à la section précédente, on obtient finalement

$$\frac{V^1}{I^0}(L, \vartheta) = \omega \ell K' \frac{\partial_z \mathcal{I}(L, \vartheta)}{\mathcal{I}(L, \vartheta)} = \omega \ell K' \frac{6 \cos \vartheta}{1 + 3 \cos \vartheta/2}. \quad (4.16)$$

avec

$$K' = \frac{1}{2} \left( \frac{K}{2} + \frac{\xi}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \right).$$

On remarque que  $V$  est indépendant de la position dans la tranche  $z$  et ne dépend que de l'angle  $\vartheta$ . Cela est une conséquence du fait que le courant  $\partial_z \mathcal{I}(z, \vartheta)$  de lumière diffusé déduit de l'Eq. (4.14) est indépendant de  $z$ , il en est donc de même du paramètre de Stokes  $V$ , qui est proportionnel à ce courant. Même si le résultat final est indépendant de la longueur de la tranche  $L$ , il est clair que cette section ne s'applique qu'au régime de diffusion multiple où  $L \gg \ell^*$ . La relation (4.16) donne l'expression du paramètre de Stokes  $V$  en diffusion multiple pour un milieu constitué de diffuseurs de Mie chiraux à l'ordre le plus bas dans le paramètre chiral  $g$ . Dans la limite où les diffuseurs sont des diffuseurs Rayleigh,  $K' = \xi/2$ , le paramètre de Stokes  $V$  en régime diffus est alors seulement déterminé par l'indice chiral du milieu effectif, qui détermine la rotation de la polarisation sur une longueur égale au libre parcours moyen  $\ell$ . Cette rotation de la polarisation mesure dans ce régime le temps moyen que met la lumière pour aller d'un diffuseur au suivant. Au contraire, lorsque le paramètre de taille des diffuseurs augmente, cette rotation de la polarisation mesure plutôt un temps, lié au temps de séjour dans les diffuseurs (d'où la présence du paramètre  $W_0$  dans la constante  $K$ ). Finalement, le paramètre  $V$  est amplifié par les facteurs d'anisotropie  $\langle \cos \theta \rangle$  et  $\langle \cos \theta \rangle_p$  et les résonances internes dans le diffuseur contenus dans  $K'$ .

**Troisième partie**

**Effet Hall Photonique dans les  
ferrofluides**

# Chapitre 1

## Introduction

Les ferrofluides sont des suspensions colloïdales de particules magnétiques (en général ferromagnétiques ou ferrimagnétiques) dispersées dans un liquide porteur. A la suite des premières expériences de Carey et Thomas (1974), de nombreux groupes de recherche ont mis en évidence les effets magnéto-optiques dans ces systèmes [DL80, YREG87]. On dispose à présent de mesures pour les quatre principaux effets magnéto-optiques: la rotation Faraday (biréfringence circulaire), l'ellipticité Faraday (dichroïsme circulaire), la biréfringence linéaire (l'effet Cotton-Mouton), et le dichroïsme linéaire. En dépit d'efforts de recherche soutenus, l'origine et le mécanisme physique de chacun de ces effets magnéto-optiques ne sont pas parfaitement bien compris. Deux types de théories sont le plus souvent avancées: selon la première, les effets magnéto-optiques observés sont une conséquence de l'orientation induite par le champ magnétique des particules individuelles [JP89]. Une autre approche consiste à expliquer les effets magnéto-optiques à partir d'une anisotropie dans la configuration spatiale des particules (le plus souvent sous forme de chaînes ou de bâtonnets plus ou moins longs, susceptibles de s'orienter dans la direction du champ appliqué) [PDLL93]. Les prédictions de l'un des premiers modèles théoriques sur la formation des chaînes, dû à De Gennes et Pincus [dGP70], n'ont pas été à ce jour vérifiées expérimentalement de façon détaillée. En revanche, plusieurs groupes ont observé par des méthodes optiques [JN99] ou par diffusion des rayons X [dSN93], la formation de bâtonnets et leur alignement dans le sens du champ, notamment dans les ferrofluides en solution aqueuse.

Les expériences portant sur l'Effet Hall Photonique (EHP) décrites dans la deuxième partie, ont été réalisées avec des suspensions de particules paramagnétiques ou diamagnétiques, de taille plus grande que la longueur d'onde, c'est à dire dans le régime de Mie. Ces expériences ont montré que l'amplitude de l'EHP était proportionnelle à la constante de Verdet des diffuseurs de l'Effet Faraday classique, lorsque cette constante de Verdet est uniquement réelle (c'est à dire en l'absence de dichroïsme circulaire magnétique). Nous décrivons dans cette partie, une étude de l'Effet Hall Photonique dans les ferrofluides. Les ferrofluides sont de bons candidats pour ces expériences, car ils présentent une rotation Faraday et un dichroïsme circulaire magnétique géants, en particulier à bas champs où ces effets

sont linéaires dans le champ appliqué. La différence atteint plusieurs ordres de grandeur par rapport aux valeurs mesurées dans les composés diélectriques dans les mêmes conditions. Comme on pouvait s'y attendre cela se traduit par des valeurs d'EHP très élevées. Dans les ferrofluides, on a facilement  $\eta \simeq 10^{-3}\text{T}^{-1}$  à comparer aux valeurs typiques dans les milieux diélectriques de  $10^{-6}\text{T}^{-1}$ . Cela permet de réaliser des mesures beaucoup plus facilement, avec une précision bien meilleure et à température ambiante, contrairement aux expériences avec les composés paramagnétiques qui nécessitaient des basses températures pour avoir une constante de Verdet élevée.

En outre, comme les particules sont plus petites que la longueur d'onde, la diffusion correspond au régime de diffusion Rayleigh, qui n'avait pas pu être atteint expérimentalement jusqu'alors dans les expériences sur l'EHP. Un autre avantage important de ces systèmes tient à leur distribution de taille des particules, qui est beaucoup mieux connue que dans les expériences précédentes. Pour toutes ces raisons, l'étude de l'EHP dans les ferrofluides présente un grand intérêt pour mieux comprendre les caractéristiques générales de l'EHP dans un contexte différent expérimentalement.

J'ai réalisé au LCMi à Grenoble les premières expériences visant à montrer la faisabilité d'expériences sur l'Effet Hall Photonique dans les ferrofluides. Les échantillons liquides ont été fournis par S. Neveu du Laboratoire de Physico-chimie Inorganique de Jussieu. Une fois ces expériences réalisées, j'ai souhaité reprendre mon travail théorique. C'est pourquoi j'ai proposé à F. Donatini du LRCCI (Laboratoire sur les Capteurs à Colloïdes et l'Instrumentation) que ces expériences intéressaient, de poursuivre ces recherches à St-Etienne. Au LRCCI, les effets magnéto-optiques des ferrofluides sont étudiés depuis de nombreuses années dans le domaine optique [DNM96] et hyper-fréquence [CVN98], de sorte que ce laboratoire avait le savoir-faire et les moyens expérimentaux pour réaliser les recherches sur l'EHP dans les ferrofluides. Les résultats obtenus par F. Donatini ont dépassé toutes mes espérances, c'est pourquoi je citerai dans cette partie un certain nombre de ses résultats expérimentaux. F. Donatini a réalisé des expériences portant sur des aspects dynamiques de l'EHP dus à la rotation des particules sous champ magnétique, un effet qui était absent dans les expériences précédentes. Il a également mené une étude précise sur la dépendance de l'EHP en fonction de la polarisation de la lumière incidente, qui est un test important du modèle proposé ici pour expliquer l'EHP dans les ferrofluides. Ces expériences sur la polarisation ont montré des comportements très différents suivant que le système est un liquide magnétique ou un gel réalisé à partir d'un tel liquide. Les gels ont été fournis par le groupe de H. Roux, C. Bovier et J. Serrughetti du Département de physique des Matériaux de l'Université Claude Bernard à Villeurbanne. L'utilisation des matrices sol-gels pour l'étude des effets magnéto-optiques est apparue récemment comme un moyen heuristique intéressant à la fois sur le plan fondamental pour mieux comprendre les mécanismes en jeu dans les effets magnéto-optiques mais aussi pour les applications [BNF<sup>+</sup>99, uV91]. D'autre part, des recherches sont actuellement menées dans d'autres systèmes dérivés des ferrofluides, que sont les ferrolyotropes constitués de lamelles de ferrofluide séparées par des couches de surfactant. Le travail remarquable de Spoliansky *et al.* [Spo99] a montré tout l'intérêt d'une étude précise des effets magnéto-optiques pour caractériser les transitions



de phase provoquées par un champ magnétique dans ces systèmes .

Dans la section suivante, quelques aspects généraux concernant les effets magnéto-optiques des matériaux ferromagnétiques massifs sont présentés, ce qui est un préalable au chapitre suivant entièrement consacré aux propriétés des ferrofluides. Le chapitre encore après aborde l'Effet Hall Photonique dans les ferrofluides.

## 1.1 Magnéto-optique des ferromagnétiques

Dans des composés ferromagnétiques comme Fe, Co ou Ni, les propriétés magnéto-optiques et ferromagnétiques sont intimement liées. C'est pourquoi, au dessus de la température de Curie, qui marque la disparition du comportement ferromagnétique, les propriétés magnéto-optiques "géantes" mentionnées plus haut disparaissent également. Des expériences ont montré que les effets magnéto-optiques dans les matériaux ferromagnétiques sont proportionnels à la magnétisation totale de l'échantillon et non au champ magnétique "externe" appliqué comme c'est le cas pour des échantillons qui ne sont pas ferromagnétiques. A cette magnétisation "géante" correspond un champ magnétique "interne" de plusieurs dizaines de Teslas, responsable de l'Effet Hall Ferromagnétique statique (c'est à dire à l'Effet Hall électronique classique associé à une conductivité électrique magnéto-transverse à  $\omega = 0$  dans un matériau ferromagnétique). L'existence du champ magnétique interne a également été mis en évidence dans des expériences de RMN dans ces composés [TP72]. Le champ magnétique appliqué est donc complètement négligeable par rapport à ce champ "interne".

Hulme fut le premier à entrevoir que les propriétés magnéto-optiques et ferromagnétiques ont une origine commune dans ces composés [Hul32]: le couplage spin-orbite. A l'aide d'un traitement quantique du couplage spin-orbite, Argyres détermine pour la première fois en 1955 les tenseurs de polarisabilité et de conductivité, pour la rotation Faraday ou l'effet Kerr de matériaux ferromagnétiques [Arg55]. Le tenseur diélectrique obtenu par Argyres pour un matériau ferromagnétique mono-domaine et possédant une magnétisation  $\mathbf{M}$  a la forme classique pour le tenseur diélectrique d'un milieu magnéto-optique:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \mathbf{I} + \varepsilon_F \Phi, \quad (1.1)$$

où le tenseur  $\Phi$  désigne le tenseur  $\Phi_{ij} = i\varepsilon_{ijk} \hat{M}_k$ ,  $\varepsilon_0 = n_0^2 = (n'_0 - in''_0)^2$  la constante diélectrique complexe du matériau non-magnétisé et  $\varepsilon_F$  est un paramètre sans dimension proportionnel à la magnétisation  $M$ . Lorsque le champ appliqué est suffisamment faible, l'aimantation est proportionnelle au champ appliqué, et la rotation Faraday peut être décrite par une constante de Verdet comme dans les matériaux paramagnétiques. On pourra trouver dans le récent ouvrage de Zvezdin, entièrement consacré aux effets magnéto-optiques, une discussion générale des fondements microscopiques des effets magnéto-optiques. Cet ouvrage aborde également le couplage spin-orbite dans les ferromagnétiques ou ferrimagnétiques [ZK97].

La forme (1.1) pour le tenseur de permittivité dans les ferromagnétiques a également été obtenue par Krinchik, qui a interprété d'autres mesures d'effets magnéto-optiques sur la base d'un modèle classique pour le mouvement des porteurs de charge dans un champ magnétique, égal au champ magnétique "interne" [Kri64]. Ce modèle classique, qui est essentiellement le modèle développé à la section 2.1.1 de la première partie, suffit dans la majorité des cas à rendre compte de la dépendance de la rotation Faraday en fonction de la fréquence de la lumière observée expérimentalement. De plus, ce modèle permet de relier l'Effet Faraday dans le domaine optique et l'Effet Hall Ferromagnétique mesuré et défini à fréquence nulle. De ce point de vue, l'Effet Faraday est une manifestation "haute fréquence" de l'Effet Hall électronique "classique".

## Chapitre 2

# Magnéto-optique des ferrofluides

### 2.1 Propriétés physiques

On trouvera un exposé très complet sur les propriétés physiques des ferrofluides dans l'un des ouvrages publié par Rosensweig [Ros97]. La stabilité des suspensions de ferrofluides est menacée par différents facteurs: la gravité qui conduit à une sédimentation, les interactions attractives entre dipôles magnétiques, la présence d'un éventuel gradient dans le champ magnétique appliqué, et surtout les interactions de Van der Waals qui tendent à agglomérer les particules. En pratique, la stabilisation de la suspension est réalisée en greffant des substituants chargés ou des polymères sur les particules, de façon à accroître la répulsion entre particules soit d'origine ionique (pour les ferrofluides aqueux), soit stérique (pour les ferrofluides en suspension dans un solvant organique). A cause des divers processus susceptibles de déstabiliser la suspension, il y a une limite pratique pour la taille des particules stables en suspension de l'ordre de quelques nanomètres de rayon.

Le liquide magnétique étudié dans cette partie a été synthétisé par S. Neveu, c'est une suspension de particules de ferrite de Cobalt  $\text{Fe}_2\text{CoO}_4$  dispersées dans une solution aqueuse ionique de citrate. Ces ferrofluides ont été préparés par une technique de coprécipitation mise au point par Massart (1981), du laboratoire de Physico-chimie Inorganique de Jussieu. Dans ces suspensions, chaque particule est un monodomaine magnétique, de moment magnétique

$$\mu = 4M_s\mu_0\pi a^3/3 \approx 4 \cdot 10^4 \mu_B, \quad (2.1)$$

où  $M_s \simeq 422 \text{ kAm}^{-1}$  est la magnétisation à saturation du matériau brut, et  $\mu_B$  le magnéton de Bohr. Avec ce moment magnétique moyen et en utilisant la distance moyenne entre particules  $r$ , l'énergie d'interaction entre dipôles peut être estimée par  $E_d = (\mu_0/4\pi)\mu^2/r^3$ . Pour nos échantillons les plus concentrés où la fraction volumique atteint  $f = 1\%$ , les interactions magnétiques sont toujours négligeables à température ambiante car  $E_d/k_B T \simeq 0.17$ .

Les particules de ferrofluides se comportent comme les molécules d'un gaz paramagnétique. En l'absence de champ magnétique externe, les moments  $\mu$  sont dirigés dans des directions aléatoires et le fluide n'a pas de magnétisation moyenne. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, il y a une tendance à l'alignement des moments magnétiques des particules, qui est partiellement contrariée par l'agitation thermique. La théorie de Langevin décrit parfaitement ce type de comportement qu'on qualifie de "superparamagnétique", lorsque les interactions magnétiques sont négligeables [Ros97]. Contrairement aux cas des ferromagnétiques massifs, un liquide superparamagnétique est dépourvu d'hystérésis. La moyenne statistique des moments  $\mu$  est dirigée selon la direction du champ appliqué et son amplitude vaut,

$$\bar{\mu} = \mu L(u), \quad (2.2)$$

où  $u = \mu H/kT$  est le paramètre associé au champ appliqué  $H$  et  $L(u)$  la fonction de Langevin. On rappelle que  $L(u) = \coth u - 1/u$ , et en particulier  $L(u) \simeq u/3$  pour  $u \ll 1$ . La magnétisation totale  $M$  du ferrofluide est la somme de tous les moments magnétiques moyens des particules  $M = n\bar{\mu}/\mu_0 = fM_s L(u)$ , où  $n$  désigne le nombre de particules par unité de volume. Les comparaisons quantitatives avec les expériences ont montré qu'une fonction de polydispersité caractérisant la taille des particules devait être ajoutée à l'expression (2.2). Les tailles des particules suivent avec une bonne approximation une loi log-normale caractérisée par un rayon moyen  $a$  et un écart type  $\sigma$ . En pratique, cet écart type va de  $\sigma = 0.1$  pour les échantillons les plus monodisperses à  $\sigma = 0.5$  pour les plus polydisperses.

La relaxation de la magnétisation du ferrofluide lorsque le champ magnétique change peut se produire par deux mécanismes: soit par rotation de la particule dans le liquide, soit par rotation du moment magnétique à l'intérieur de la particule. Le premier mécanisme est caractérisé par le temps de relaxation de Brown [Ros97]

$$\tau_B = \frac{3V'\eta_0}{kT}, \quad (2.3)$$

où  $V'$  est le volume hydrodynamique de la particule, et  $\eta_0$  la viscosité du liquide porteur. Le second mécanisme est la relaxation de Néel qui consiste en l'orientation du moment magnétique suivant une direction de facile aimantation de la particule. Cette relaxation est caractérisée par le temps

$$\tau_N = \frac{1}{f_0} \exp\left(\frac{KV}{k_B T}\right),$$

où  $K$  est la constante d'anisotropie,  $V$  le volume de la particule, et  $f_0$  une fréquence caractéristique de l'ordre de  $10^9$  Hz. Pour les ferrofluides à base de Cobalt étudiés ici et soumis à un champ magnétique variable de fréquence  $\omega_H$ , on a  $\tau_B \ll \omega_H^{-1} \ll \tau_N$ . Par conséquent, la relaxation de Néel est négligeable pour les échantillons considérés, et le comportement dynamique du fluide ne dépend que de la relaxation de Brown. Les moments des particules de ferrite de Cobalt restent toujours figés, comme l'a confirmé une étude de la biréfringence linéaire dans ces composés [NPTBP93].

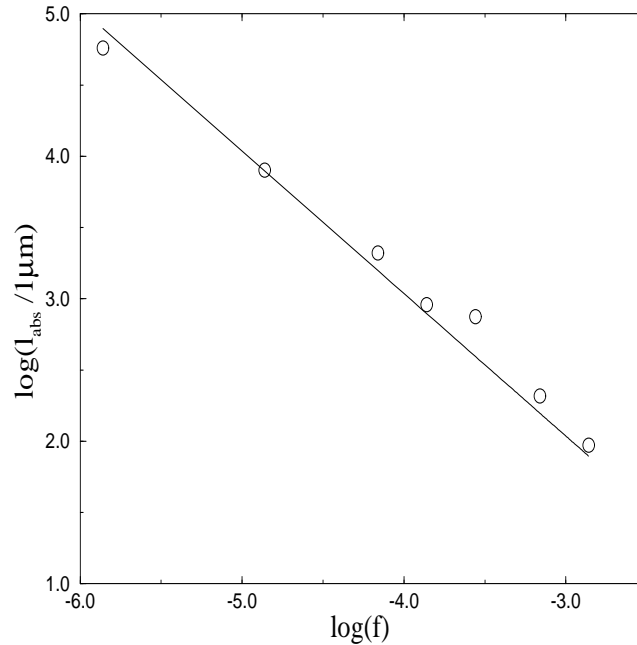


FIG. 2.1 - Logarithme de la longueur d'absorption  $\ell_{abs}/1\mu\text{m}$  en fonction du logarithme de la fraction volumique  $f$  à la longueur d'onde  $\lambda_0 = 477\text{nm}$ , pour différentes solutions de ferrofluide de Cobalt  $\text{Fe}_2\text{CoO}_4$  en solution aqueuse. Les points représentent des mesures et la droite est la prédiction de la loi de Beer-Lambert (la pente est obtenue à partir de la théorie de diffusion Rayleigh pour une distribution monodisperse de particules de rayon  $a = 6\text{nm}$  en utilisant l'indice de réfraction du matériau brut à cette longueur d'onde  $2.6 - 0.7i$ .)

## 2.2 Propriétés optiques

### 2.2.1 Diffusion simple

Nous passons à présent à la caractérisation des propriétés optiques d'un échantillon de ferrite de Cobalt. La constante diélectrique relative  $\kappa_0$  en l'absence de champ magnétique s'obtient à partir de la valeur de l'indice de réfraction du matériau brut, qui est d'après les Refs. [KMS<sup>+</sup>79, MP82], à  $\lambda_0 = 477\text{nm}$ ,  $2.6 - 0.7i$ . Le rayon moyen des particules est estimé à  $a = 6\text{nm}$ . Avec une très bonne approximation, la diffusion par ces particules correspond à la diffusion Rayleigh. En effet, le paramètre de taille moyen, défini comme le rapport de la taille de la particules à la longueur d'onde dans le milieu  $x = 2\pi a n_{water}/\lambda_0 \simeq 0.1$  est petit devant 1 (l'autre paramètre de taille  $y = \sqrt{\kappa_0'} x n_{water} \simeq 0.2$  doit également être petit devant 1). La longueur caractéristique d'absorption de la lumière  $\ell_{abs}$  s'obtient par application de l'Eq. (3.19) de la partie I dans le cadre général de la théorie de Mie appliquée au régime de Rayleigh. Pour ces suspensions de particules Rayleigh absorbantes, l'extinction (*i.e* le manque de

transmission) est dominée par l'absorption à cause des dépendances des sections efficaces d'absorption et de diffusion en fonction de  $x$  [BH83]. En effet pour  $x \ll 1$ , et lorsque la partie imaginaire de l'indice du diffuseur est plus petite que la partie réelle (ce qui est le cas avec ces ferrofluides), on a les relations approchées

$$Q_{abs} = 4x \Im m\left(\frac{\kappa_0 - 1}{\kappa_0 + 2}\right) \gg Q_{scatt} = \frac{8x^4}{3} \left|\frac{\kappa_0 - 1}{\kappa_0 + 2}\right|^2.$$

La partie imaginaire de l'indice peut donc être déterminée à partir de spectres d'absorption si on connaît la partie réelle de l'indice. La figure (2.1) représente la longueur d'absorption en fonction de la fraction volumique en échelle logarithmique. Les mesures ont été réalisées à l'aide d'un spectromètre, la taille de la cuve utilisée pour l'échantillon a été changée à chaque mesure de façon à ce que l'absorbance, qui est le logarithme de la transmission, soit de l'ordre de l'unité. La longueur d'absorption est obtenue à partir de la mesure d'absorbance à une longueur d'onde donnée. L'accord avec le comportement linéaire prévu par la loi de Beer-Lambert (la pente de la droite en trait plein de la figure est déduite de la théorie de la diffusion Rayleigh avec les paramètres cités plus haut) montre que nos estimations concernant l'indice et la taille des particules (en supposant la suspension monodisperse) sont correctes. L'extension au cas des suspensions polydisperses ne pose pas de difficulté de principe une fois déterminée la fonction de distribution de taille des particules, mais n'a pas été nécessaire pour cette estimation.

### 2.2.2 Propriétés de transport

Une valeur typique de la longueur d'absorption du faisceau cohérent  $\ell_{abs}$  et du libre parcours moyen de transport  $\ell^*$  dans un échantillon de fraction volumique  $f = 0.14\%$ , à la longueur d'onde  $\lambda_0 = 477\text{nm}$ , est  $\ell_{abs} = 80\mu\text{m}$  (mesuré) et  $\ell^* = 6\text{cm}$  (estimé théoriquement). Pour ces échantillons constitués de particules petites devant la longueur d'onde, le libre parcours moyen de transport  $\ell^*$  est pratiquement confondu avec le libre parcours moyen élastique  $\ell$ . Pour déterminer si l'on est ou non dans le régime de diffusion multiple en présence d'absorption, il faut toujours comparer le libre parcours moyen élastique avec la taille de l'échantillon comme en l'absence d'absorption. Pour tous les échantillons réalisés et discutés ici, dont la fraction volumique est inférieure à  $f = 0.1\%$ , on a bien  $\ell \gg L$ , ce qui correspond au régime où la diffusion multiple n'intervient pas. La comparaison de la longueur d'absorption en diffusion multiple  $L_a$  avec la taille de l'échantillon nous donne un autre renseignement: la validité d'une description au moyen de l'équation de diffusion classique en présence d'absorption. Avec les valeurs des divers libres parcours moyens donnés plus haut, on obtient  $L_a \simeq 2\text{mm}$  à comparer avec la taille de l'échantillon (qui est environ  $L = 0.5\text{mm}$  pour les expériences menées au LCMI). La proximité de ces deux valeurs signifie que la diffusion de la lumière n'est probablement pas correctement décrite par une équation de diffusion pour un milieu isotrope. Or c'est précisément une anisotropie dans la diffusion

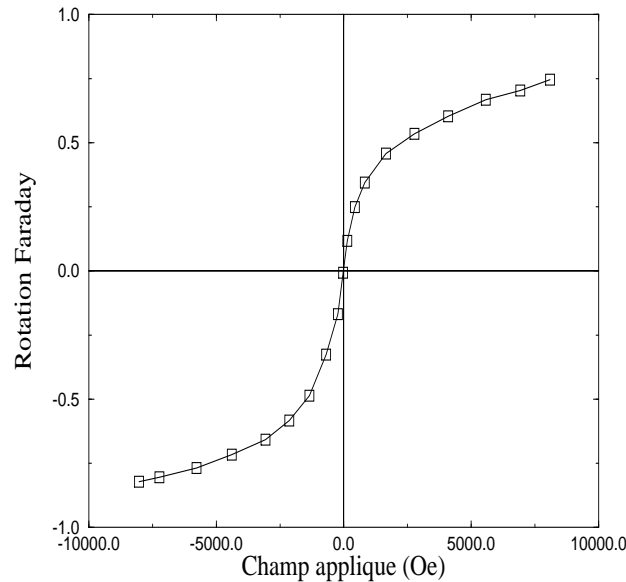


FIG. 2.2 - *Rotation et ellipticité Faraday normalisées d'un sol-gel de ferrite de Cobalt. Les deux courbes normalisées sont identiques pour les deux effets, ce qui prouve l'origine commune de ces deux effets. La rotation et l'ellipticité Faraday sont proportionnelles à la même fonction de Langevin, comme la magnétisation totale de ces échantillons. Au champ maximum de 8224 Oe, la rotation Faraday vaut  $0.7^\circ$  et l'ellipticité  $1.91^\circ$  dans une cuve d'environ 2mm de long. Cette courbe est bien décrite par le modèle de Langevin discuté à la section 2.1. Cette expérience a été réalisée à une longueur d'onde  $\lambda_0 = 633\text{nm}$ , il s'agit d'une mesure statique sous champ magnétique. Cette courbe a été fournie par F. Donatini.*

qui est mise en évidence dans les expériences portant sur l'effet Hall Photonique. En conclusion de cette étude des propriétés optiques, cette caractérisation expérimentale de l'échantillon montre le rôle prépondérant joué par l'absorption pour interpréter la diffusion dans ces échantillons. Dans la gamme de concentration étudiée, au dessous de 0.1% à cette longueur d'onde, la diffusion multiple n'intervient pas dans ces échantillons. Seule intervient essentiellement la diffusion simple. A des échelles petites par rapport à la longueur  $\ell_{abs}$ , des interférences sont possibles en diffusion simple, ce qui est le régime considéré dans la suite.

### 2.3 Propriétés magnéto-optiques

En l'absence de champ appliqué, un ferrofluide se comporte comme un liquide isotrope, il n'y a pas de biréfringence ou de dichroïsme circulaire ou linéaire. L'application d'un champ magnétique provoque l'apparition d'une anisotropie optique. Dans les ferrofluides comme dans tous les matériaux

magnéto-optiques, on distingue deux configurations pour l'étude des effets magnéto-optiques.

Dans la configuration longitudinale ou Faraday, le vecteur d'onde du faisceau incident est parallèle au champ appliqué. Dans cette géométrie, les modes propres de la lumière sont des ondes polarisées circulairement. Ces ondes se propagent à des vitesses différentes et subissent des absorptions différentes, il en résulte la biréfringence et le dichroïsme magnétiques circulaires, qui sont reliés de façon simple à la rotation et à l'ellipticité Faraday. La rotation et l'ellipticité Faraday sont des fonctions impaires du champ appliqué et sont linéaires en fonction du champ appliqué à bas champ, comme on peut le voir sur la figure 2.2. Sur cette figure, une seule courbe a été représentée car la rotation et l'ellipticité sont proportionnelles à la même fonction de Langevin. En effet, dans les ferrofluides, les effets magnéto-optiques sont liés à l'orientation des moments magnétiques des particules. Pour la rotation ou l'ellipticité Faraday, qui sont des effets linéaires dans ces moments, nous verrons plus loin que cette procédure conduit nécessairement à la même expression que pour la magnétisation totale de l'échantillon de l'Eq. (2.2) du modèle de Langevin. Pour tester ceci expérimentalement, la magnétisation de l'échantillon, la rotation et l'ellipticité Faraday ont été mesurés au LRCCI en fonction du champ appliqué avec des échantillons de  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Ces trois courbes obtenues sont absolument superposables jusqu'à des fractions volumiques de plusieurs pourcents (au delà des différences apparaissent entre les courbes qui sont dues aux interactions magnétiques) [JDM<sup>+</sup>99]. Cette expérience confirme que la rotation et l'ellipticité Faraday dans les ferrofluides sont dues à la même physique et sont produits par l'orientation des moments des particules dans la direction du champ magnétique appliqué.

Dans la configuration transverse ou configuration de Voigt, le vecteur d'onde de la lumière est perpendiculaire au champ appliqué, les modes propres de la lumière sont des ondes polarisées linéairement. De la même façon que dans le cas longitudinal, on met en évidence alors une biréfringence et un dichroïsme magnétiques linéaires. Ceux-ci sont des fonctions paires du champ appliqué. A bas champ (au dessous de 50Oe environ pour les ferrites de Cobalt), ces effets sont quadratiques, à plus haut champ ils deviennent linéaires, mais ce sont toujours des fonctions paires du champ appliqué [Dav96]. La biréfringence et le dichroïsme linéaires peuvent également se traiter au moyen du formalisme de Langevin [HDB<sup>+</sup>98]. Expérimentalement l'étude des effets linéaires a montré une grande sensibilité à la présence éventuelle d'agrégats dans la suspension [SP93], d'où l'idée que la répartition spatiale des particules pouvait jouer un rôle pour ces effets. Pour mettre en évidence le rôle de cette répartition spatiale, une solution est de geler les particules dans la suspension. Dans des gels de ferrofluides, Barri *et al.* ont montré que la biréfringence linéaire est directement reliée aux propriétés élastiques du milieu [BG83]. Récemment, une étude de l'ensemble des effets magnéto-optiques a été menée dans des composés sol-gels, dans lesquels les particules sont vraisemblablement emprisonnées dans des cavités de petite taille, ce qui les empêche de se réorganiser spatialement [Don99]. Ces expériences réalisées avec des échantillons gelés sous champ ou en l'absence de champ, montrent clairement que la réorganisation spatiale des particules est nécessaire pour obtenir les effets magnéto-optiques linéaires, qu'on peut supprimer en gelant les particules. Au contraire les effets circulaires induits sont présents dans



les gels comme dans les liquides et sont pratiquement égaux dans ces deux systèmes.

Comme on souhaite réaliser des expériences sur des suspensions à la fois homogènes et isotropes en terme de répartition spatiale des particules, la plupart des expériences décrites dans cette partie concernent des gels de ferrofluides. Dans les gels qu'on sait produire actuellement (sol-gels ou gels de gélatine), les degrés de libertés de translation des particules sont en principe supprimés, alors que les degrés de libertés de rotation des particules sont toujours présents, c'est pourquoi ces suspensions ont toujours des effets magnéto-optiques circulaires importants. On ne s'intéresse qu'aux gels préparés à partir du liquide, dont la structure est isotrope en l'absence de champ. A la différence des liquides, la répartition spatiale des particules reste isotrope même lorsqu'on applique un champ magnétique.

## Chapitre 3

# Effet Hall Photonique dans les ferrofluides

### 3.1 Modèle pour l'EHP dans des gels de ferrofluides

Nous présentons ici un modèle simple pour décrire l'Effet Hall Photonique (EHP) dans un gel de ferrofluide dilué dans le régime de diffusion simple. Ce modèle s'applique aux gels réalisés en l'absence de champ, dans lesquels la répartition spatiale des particules est isotrope. En effet, pour appliquer ce modèle, il ne suffit pas que le milieu soit homogène ce qui est bien sûr nécessaire. Dans un milieu homogène, il n'y a pas de particules agrégées, ce qui est en général le cas dans les ferrofluides stables qu'on sait fabriquer. Il faut surtout que la répartition spatiale des particules en présence d'un champ magnétique soit indépendante de la direction considérée, ce qui n'est réalisé en pratique qu'avec des gels. La méthode utilisée pour traiter de l'EHP dans ces milieux consiste à calculer une matrice  $T$  pour un ensemble de particules, en moyennant les matrices  $T$  individuelles par rapport aux orientations des moments portés par chaque particule. Une fois cette matrice  $T$  obtenue, on calcule les effets possibles d'interférences entre les champs diffusés par les différentes particules. L'EHP résulte en principe de ces effets d'interférences lorsqu'on prend en compte la diffusion qui est induite par le champ magnétique à l'ordre un dans le champ.

On suppose que le moment magnétique  $\mu$  de chaque particule est fixe par rapport aux axes de facile aimantation de la particule. Comme ces particules sont plus petites que la longueur d'onde, la matrice  $T$  (ou de façon équivalente la polarisabilité) d'un diffuseur ponctuel peut s'écrire très généralement sous la forme

$$\mathbf{t}' = \begin{pmatrix} t'_0 & it'_1 & 0 \\ -it'_1 & t'_0 & 0 \\ 0 & 0 & t'_0 + t'_2 \end{pmatrix}. \quad (3.1)$$

L'expression (3.1) est valable dans le référentiel propre de la particule, correspondant au système de coordonnées  $(x', y', z')$ , avec  $\mu$  dirigé selon l'axe  $z'$ . Les coefficients complexes  $t'_0$  et  $t'_1$  de cette matrice ont déjà été introduits avec le modèle du diffuseur ponctuel sous champ magnétique à la section 3.3.1 de la partie I. En particulier, les expressions explicites de ces coefficients ont été données, lorsque l'indice relatif de la particule est de la forme  $\kappa = \kappa_0 \mathbf{I} + \kappa_F \Phi$  (à l'ordre un en champ magnétique). Le terme supplémentaire  $t'_2$  traduit la biréfringence linéaire d'origine magnétique ou bien la biréfringence intrinsèque de la particule. Dans le cas des matériaux paramagnétiques ou diamagnétiques, cette biréfringence linéaire magnétique n'avait pas été prise en compte car c'est un effet quadratique dans le champ appliqué, qui est éliminé par le dispositif expérimental de l'EHP sensible seulement aux seuls effets linéaires. Dans les ferrofluides, il n'est pas a priori clair qu'on peut négliger la biréfringence linéaire, car elle devient rapidement linéaire en fonction du champ appliqué au dessus d'un champ relativement faible, en plus elle est généralement du même ordre ou plus grande que la rotation Faraday. On note  $\hat{\mathbf{M}}$  la direction du champ appliqué, qui est aussi celle de la magnétisation globale de l'échantillon. On appelle référentiel du laboratoire, le référentiel lié à la direction de  $\hat{\mathbf{M}}$  et à la direction de la lumière incidente qui est selon  $\hat{\mathbf{k}}$ . On choisit comme repère de ce référentiel  $(\hat{\mathbf{M}}, \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{M}}, \hat{\mathbf{k}})$ .

La procédure permettant de réaliser la moyenne statistique sur les orientations des moments magnétiques  $\mu$  de la matrice  $\mathbf{T}$  est détaillée dans la Ref. [JP89], pour la matrice  $\mathbf{T}$  vers l'avant. Nous la généralisons ici au cas de la matrice  $\mathbf{T}$  pour une direction quelconque. Cette procédure consiste à appliquer une rotation  $\mathbf{R}(\psi, \zeta)$  à la matrice  $\mathbf{t}'$  de façon à exprimer cette matrice dans le référentiel du laboratoire

$$\mathbf{t}(\psi, \zeta) = \mathbf{R}(\psi, \zeta) \cdot \mathbf{t}' \cdot \mathbf{R}(\psi, \zeta)^{-1}.$$

La moyenne statistique recherchée  $\langle \mathbf{t} \rangle$  s'obtient par intégration sur les angles  $(\psi, \zeta)$  avec un poids de type Boltzmann, associé à l'énergie d'orientation

$$U = -\mu \mathbf{z}' \cdot \mathbf{H},$$

pour un champ appliqué  $\mathbf{H}$ . La moyenne fait intervenir explicitement la fonction de Langevin  $L(u)$ , introduite précédemment. En faisant la moyenne thermodynamique de cette façon là, les effets de couplages entre moments magnétiques ont été négligés.

Dans le référentiel du laboratoire le vecteur d'onde de la lumière diffusée  $\hat{\mathbf{k}}'$  est repéré par un angle de diffusion  $\theta$  dans le plan de diffusion et par un angle azimuthal  $\varphi$  par rapport à  $\hat{\mathbf{M}}$  (voir schéma 3.3). On utilise la base de Van De Hulst pour la polarisation, constituée d'un vecteur dans le plan de diffusion et d'un vecteur perpendiculaire à ce plan [dH80a]. Dans cette base, la polarisation de la lumière incidente se décompose sur les vecteurs  $\hat{\mathbf{h}}_1 = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{h}}_2$  et  $\hat{\mathbf{h}}_2 = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}' / |\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}'|$ , et la polarisation de la lumière émergente sur les vecteurs  $\hat{\mathbf{h}}'_1 = \hat{\mathbf{k}}' \times \hat{\mathbf{h}}_2$  et  $\hat{\mathbf{h}}'_2 = \hat{\mathbf{h}}_2$ . Dans cette nouvelle base, la matrice

T prend la forme suivante

$$t_{ij} = \hat{\mathbf{h}}_i \cdot \langle \mathbf{t} \rangle \cdot \hat{\mathbf{h}}'_j = \begin{pmatrix} t'_0 + t'_2 L(u)/u \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' + it'_1 L(u) \hat{\mathbf{M}} \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}') & -it'_1 L(u) \hat{\mathbf{M}} \cdot \hat{\mathbf{k}} \\ it'_1 \hat{\mathbf{M}} \cdot \hat{\mathbf{k}}' L(u) & t'_0 + t'_2 L(u)/u \end{pmatrix}. \quad (3.2)$$

Lorsqu'on considère le cas particulier de la matrice vers l'avant, c'est à dire pour  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ , on montre à partir de (3.2) que la rotation Faraday du fluide est bien déterminée par la fonction de Langevin  $L(u)$ , et la biréfringence linéaire par la deuxième fonction de Langevin  $L(u)/u$  [JP89]. Du moins c'est le cas en l'absence d'interactions magnétiques. Pour alléger les notations, on définit  $t_0 = t'_0$ ,  $t_1 = t'_1 L(u)$  et  $t_2 = t'_2 L(u)/u$ .

La matrice T de l'Eq. (3.2) ne décrit encore qu'un ensemble de particules indépendantes, ce qui est insuffisant pour décrire l'EHP qui est causé par des effets d'interférences. Sans prendre en compte ces interférences, l'EHP d'un diffuseur décrit par la matrice (3.2) est nul, comme l'EHP est nul pour un diffuseur Rayleigh non-ferromagnétique. La matrice T d'un ensemble de particules placées en  $\mathbf{r}_i$  de moment  $\mu_i$  vaut de façon très générale

$$\mathbf{T} = \sum_i \mathbf{t}(\mu_i) |\mathbf{r}_i\rangle \langle \mathbf{r}_i|. \quad (3.3)$$

A ce stade, on a besoin de faire une approximation pour calculer la lumière diffusée. A cause de l'absorption importante des ferrofluides notée plus haut, on néglige tout effet d'interférences hors d'un milieu de taille au plus égal à la longueur d'absorption  $\ell_{abs}$ . Dans un milieu de cette taille, supposé de forme sphérique pour simplifier, les interférences peuvent être traitées exactement en diffusion simple (car  $\ell^* \gg \ell_{abs}$ ). Dans la base de Van De Hulst, la matrice T de l'ensemble prend alors la forme suivante

$$T_{ij} = \hat{\mathbf{h}}_i \cdot \mathbf{T}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \cdot \hat{\mathbf{h}}'_j \approx n \int_0^{\ell_{abs}} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}_i} t_{ij} d^3 \mathbf{r}_i = f \left( \frac{\ell_{abs}}{a} \right)^3 G(v) t_{ij}, \quad (3.4)$$

où  $G(v) = 3(\sin v - v \cos v)/v^3$  est la fonction de phase de Rayleigh-Gans scattering (appelée aussi facteur de forme en diffusion des rayons X). On a  $v = 2k\ell_{abs} \sin(\theta/2)$ , où  $k$  est le vecteur d'onde de la lumière dans le milieu. La relation (3.4) exprime un résultat bien connu en optique: la proportionnalité de la matrice T d'un diffuseur Rayleigh-Gans et de la matrice T d'un diffuseur Rayleigh [dH80a]. La forme de la matrice T d'un diffuseur Rayleigh sous champ magnétique dans la base de Van De Hulst a été établie à l'appendice A de la première partie. On en déduit la section efficace de diffusion à l'ordre un dans le champ magnétique appliqué, après la moyenne sur les polarisations incidentes et émergentes,

$$\left\langle \frac{d\sigma}{d\Omega} \right\rangle = \frac{1}{2} f^2 \left( \frac{\ell_{abs}}{a} \right)^6 G(v)^2 \left[ \left\{ |t_0|^2 + \Re(t_0^* t_2) \right\} \frac{1 + (\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}')^2}{2} + \Im(t_0 t_1^*) (\hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{k}}') \hat{\mathbf{k}} \cdot (\hat{\mathbf{k}}' \times \hat{\mathbf{M}}) \right]. \quad (3.5)$$

C'est le deuxième terme de cette expression, linéaire dans le champ appliqué, qui génère l'Effet Hall Photonique  $\eta$  défini à l'équation (2.18) de la partie II. Pour l'obtenir, il faut encore intégrer la correction magnétique dans la section efficace par rapport à la direction  $\hat{\mathbf{k}}'$  en ajoutant un facteur de projection magnéto-transverse  $\hat{\mathbf{M}} \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}')$ , qui projette  $\hat{\mathbf{k}}'$  sur la direction magnéto-transverse  $\hat{\mathbf{M}} \times \hat{\mathbf{k}}$ . Ce facteur de projection permet de définir le courant de lumière diffusée, qui est bien collecté sur le détecteur. La normale au détecteur est selon la direction magnéto-transverse. L'intégrale sur la direction  $\hat{\mathbf{k}}'$  du terme proportionnel à  $\Re(t_0^* t_2)$  dans l'Eq. (3.5) s'annule. Par conséquent, même dans le cas où la biréfringence ou le dichroïsme linéaire magnétique contenus dans le coefficient  $t_2$  sont proportionnels à  $|\mathbf{M}|$ , ceux-ci ne contribuent pas à l'EHP. Cela tient à des raisons de symétrie, la biréfringence ou le dichroïsme linéaires sont des fonctions paires de  $\mathbf{M}$  quelle que soit la valeur du champ contrairement à la rotation Faraday impaire en  $\mathbf{M}$ . Dans cette géométrie, l'EHP n'est donc en principe sensible qu'aux effets magnéto-optiques impairs par rapport au champ appliqué.

Finalement on aboutit pour l'EHP normalisé à

$$\eta = \pi \eta_1 \frac{\int_0^\pi d\theta \sin^3 \theta \cos \theta G[v(\theta)]^2}{\int_0^\pi d\theta \sin^2 \theta (1 + \cos \theta)^2 G[v(\theta)]^2}, \quad (3.6)$$

avec

$$\eta_1 = \frac{\Im m(t_0 t_1^*)}{|t_0|^2} = L(u) \frac{\Im m(t'_0 t_1'^*)}{|t'_0|^2} \quad (3.7)$$

Après avoir évalué les intégrales de l'Eq. (3.6) dans la limite  $k\ell_{abs} \gg 1$ , on obtient

$$\eta = \frac{3\eta_1}{2} \frac{\ln(k\ell_{abs})}{k\ell_{abs}}. \quad (3.8)$$

On peut noter que dans la limite  $x \rightarrow 0$  pour le paramètre de taille des particules, les paramètres  $\eta_1$  et  $\eta$  sont indépendants de la taille des particules, ce qui est une bonne nouvelle pour notre estimation, les effets de taille étant le plus souvent difficiles à prendre en compte.

Comme la longueur d'absorption  $\ell_{abs}$  est inversement proportionnelle à la fraction volumique en diffuseurs, le résultat (3.8) se traduit par une dépendance linéaire de  $\eta$  par rapport à la fraction volumique  $f$  (à une correction logarithmique près). On peut interpréter qualitativement ce résultat de la façon suivante: La différence d'intensité  $\Delta I(\mathbf{B})$  figurant au numérateur de  $\eta$  doit suivre un comportement quadratique en  $f^2$  (l'intensité diffusée  $I_0$  au dénominateur de  $\eta$  étant proportionnelle à  $f$ ). Un comportement quadratique en  $f^2$  pour  $\Delta I(\mathbf{B})$  signifie que l'effet Hall Photonique met en jeu au moins deux particules, car la probabilité pour un photon d'être diffusée est proportionnelle à  $f$ . Ce résultat confirme les premières prédictions théoriques montrant qu'un seul diffuseur Rayleigh ne peut générer de l'EHP mais que deux diffuseurs, ou qu'un diffuseur de taille finie le peuvent (voir appendice A). Si l'effet ne mettait pas en jeu plus d'une diffusion, on s'attendrait à avoir un comportement de  $\eta$  constant en fonction de la fraction volumique observé dans le régime de Mie.

### 3.2 Dépendance en fonction du champ et de la concentration

La première vérification expérimentale a porté sur la dépendance de l'EHP en fonction du champ appliqué. Le montage expérimental est identique à celui décrit dans la partie II. Comme on peut le constater sur la figure 3.1, l'EHP est bien un effet linéaire en fonction du champ magnétique à des champs suffisamment bas. Avec les composés paramagnétiques utilisés jusqu'alors, la relation entre l'EHP et le champ était toujours strictement linéaire jusqu'aux champs maximums accessibles expérimentalement (de l'ordre du tesla) [RT96]. Dans les ferrofluides, un écart à la linéarité apparaît généralement au delà de quelques centaines de gauss. En fait, si on mesure l'EHP en fonction du champ magnétique à plus haut champ, on obtient un comportement similaire à celui de la rotation Faraday à la figure 2.2. La saturation observée en fonction du champ est une nouvelle indication du rôle joué par l'orientation des moments magnétiques dans l'EHP. Dans la suite, toutes les expériences ont été réalisées dans le domaine où l'effet est linéaire dans le champ appliqué.

La dépendance de l'EHP avec la fraction volumique  $f$ , la figure Fig. (3.2) montre une dépendance linéaire. Par ailleurs, l'approximation utilisée à l'équation (3.8) est bien vérifiée car on a au moins  $k\ell_{abs} \simeq 1.6 \cdot 10^3$  pour l'échantillon le plus concentré de fraction volumique  $f = 0.14\%$ . Le logarithme présent dans l'expression (3.8) joue assez peu dans cette évaluation.

Dans cette expérience, le gel a été préparé avec environ 1% de gélatine en volume. Par la suite, des expériences menées au LRCCI ont comparé la rotation Faraday dans le liquide et dans ce gel. La différence est négligeable, ce qui montre que le rôle du gel est seulement de limiter les effets d'agrégation et d'alignement, mais n'affecte pas la rotation Faraday qui est à la base de l'effet Hall Photonique. A partir des mesures expérimentales de rotation Faraday et d'ellipticité dans cet échantillon, on peut estimer un paramètre  $\varepsilon_F$  pour la partie magnétique de la constante diélectrique de la suspension:  $d\varepsilon_F/dB \simeq (-0.5 + 1.5i) \cdot 10^{-4} T^{-1}$ . Avec cette valeur, on peut estimer le paramètre  $\kappa_F$ , qui en est l'équivalent pour une particule unique, d'indice relatif  $\kappa = \kappa_0 \mathbf{I} + \kappa_F \Phi$ . On obtient  $\eta_1$  par application de

$$\eta_1 = \frac{\Im m(t_0 t_1^*)}{|t_0|^2} == -3 \Im m \left[ \frac{\kappa_F}{(\kappa_0 - 1)(\kappa_0 + 2)} \right],$$

déduite des relations (3.17) de la partie I. On obtient environ  $d^2\eta/dBdf \simeq 1.2 \cdot 10^{-3} T^{-1}$ , ce qui est un bon accord avec la valeur mesurée tirée de la pente de la droite de la figure (3.2)  $d^2\eta/dBdf \simeq 3 \cdot 10^{-3} T^{-1}$ , compte tenu de la simplicité du modèle. La dispersion des points expérimentaux visible sur cette figure est due essentiellement à l'évaporation de l'eau hors du gel pendant la durée de l'expérience. Pour éviter ce genre de désagrément, les expériences suivantes ont été réalisées avec des sol-gels, qui sont des gels secs dans lesquels l'évaporation est négligeable. La même expérience répétée dans les ferrofluides liquides fournit également une dépendance linéaire de l'EHP, même si la théorie ne permet pas à cette heure de modéliser les ferrofluides liquides.

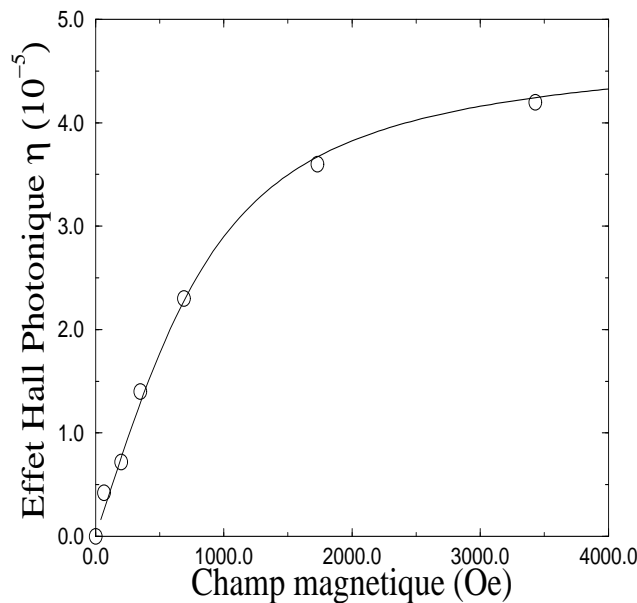
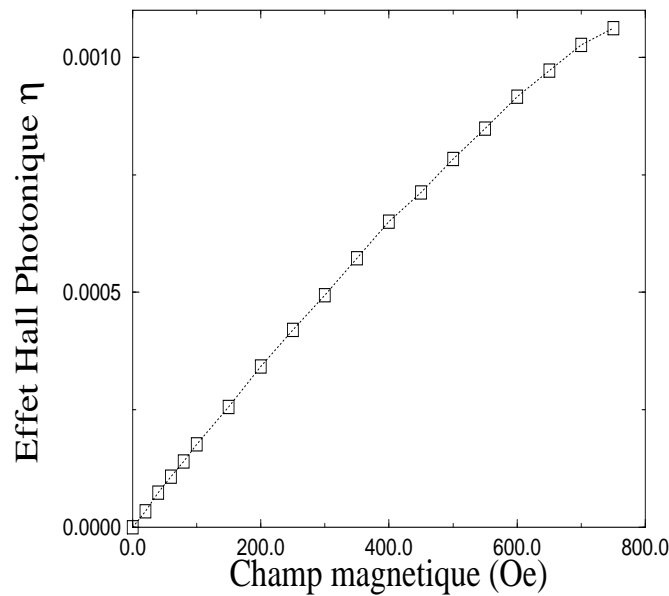


FIG. 3.1 - (a) Les carrés représentent des mesures de l'EHP  $\eta$  à bas champ, en fonction du champ magnétique appliqué. La courbe en pointillé relie simplement les points expérimentaux. On remarque que la courbe de l'EHP est linéaire pour des champs appliqués au dessous d'une centaine d'Oe environ. Cette expérience a été réalisée par F. Donatini avec le même échantillon et dans les mêmes conditions qu'à la figure (2.2). (b) Même expérience réalisée lors de mon séjour au LCMI à Grenoble avec un échantillon du même type. J'ai pu atteindre des champs magnétiques plus forts qu'à la figure (a), ce qui permet de rendre la saturation de l'EHP plus évidente. Les cercles représentent les points expérimentaux et la droite est un ajustement utilisant la loi de Langevin

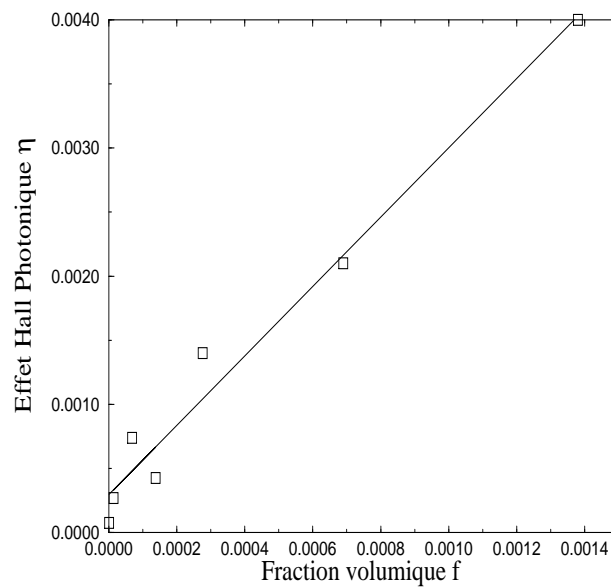


FIG. 3.2 - Les points expérimentaux représentent des mesures d'Effet Hall Photonique  $\eta$  en fonction de la fraction volumique  $f$  en diffuseurs. Les échantillons sont des gels de ferrofluide de Cobalt préparés avec 1% de gélatine en volume à partir du liquide en l'absence de champ magnétique. Une régression linéaire fournit une pente par unité de champ magnétique pour ces points expérimentaux d'environ  $d^2\eta/dBdf = 3.10^{-3}T^{-1}$ . J'ai réalisé cette expérience lors de mon séjour au LCMI.



### 3.3 Polarisation de l'Effet Hall Photonique

La dépendance de l'EHP en fonction de la concentration est un test important du modèle. Cependant, de nombreuses propriétés physiques, optiques et magnéto-optiques en dépendent, ce qui rend souvent difficile l'interprétation de la dépendance de l'EHP en fonction de la concentration. Au contraire, l'étude de la polarisation est affranchie de ces difficultés. La polarisation est une quantité qui est intrinsèquement indépendante de nombreux aspects expérimentaux difficilement contrôlables, notamment de la répartition spatiale des particules. Dans les expériences précédentes sur l'EHP, la lumière incidente était dépolarisée et la lumière émergente était moyennée sur la polarisation. Dans cette section, un modèle est proposé pour expliquer la dépendance de l'EHP en fonction de la polarisation incidente, modèle qui est comparé à des expériences réalisées par F. Donatini au LRCCI. La polarisation de la lumière diffusée est toujours moyennée lors de la détection, les détecteurs utilisés étant insensibles à la polarisation, ce qui a été vérifié expérimentalement.

#### 3.3.1 Modèle pour la polarisation

Nous considérons successivement les cas où la lumière incidente de vecteur d'onde normé  $\hat{\mathbf{k}}$  est polarisée linéairement puis circulairement. La polarisation incidente s'exprime dans le référentiel du laboratoire lié à la direction du champ appliqué et à la direction de la lumière incidente ( $\hat{\mathbf{x}} = \hat{\mathbf{M}}, \hat{\mathbf{y}} = \hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{M}}, \hat{\mathbf{z}} = \hat{\mathbf{k}}$ ). Une représentation de la géométrie est donnée à la figure 3.3. Dans ce référentiel du laboratoire, on exprime le vecteur champ électrique de la lumière incidente  $\mathbf{E}_{inc}$ , le vecteur d'onde de la lumière incidente  $\mathbf{k}$ , et celui de la lumière diffusée  $\mathbf{k}'$  de la façon suivante

$$\mathbf{E}_{inc} = \begin{pmatrix} \cos \beta \\ \sin \beta \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad \hat{\mathbf{k}}' = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \varphi \\ \sin \theta \sin \varphi \\ \cos \theta \end{pmatrix}.$$

Lorsque  $\beta = 0$ , le champ électrique de l'onde incidente est donc parallèle au champ magnétique appliqué. Pour pouvoir utiliser la forme de l'Eq. (3.4) pour la matrice T, un changement de base doit être effectué, la matrice T étant exprimée dans la base de Van De Hulst pour la polarisation que nous avons introduite à la section précédente. Dans la nouvelle base, le champ électrique incident s'écrit  $\mathbf{E}_{inc} = -\cos(\beta - \varphi)\hat{\mathbf{h}}_1 + \sin(\beta - \varphi)\hat{\mathbf{h}}_2$ . Contrairement au cas de l'EHP dépolarisé, tous les termes magnétiques présents dans la matrice T interviennent à présent et pas seulement le terme Hall en  $\hat{\mathbf{M}} \cdot (\hat{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{k}}')$  de l'Eq. (3.4). Lorsqu'on ne retient que les termes d'ordre un en  $\mathbf{M}$ , et après la moyenne sur la polarisation de la lumière émergente, on peut exprimer le numérateur  $\Delta I(\mathbf{M})$  et le dénominateur  $I_0$  de l'EHP sous la forme suivante

$$\Delta I(\mathbf{B}) = C \int_0^\pi d\varphi \left( \cos(\beta - \varphi)^2 \sin^2 \varphi + \frac{1}{4} \sin 2(\beta - \varphi) \sin 2\varphi \right) = C \frac{\pi}{2} \sin^2 \beta,$$

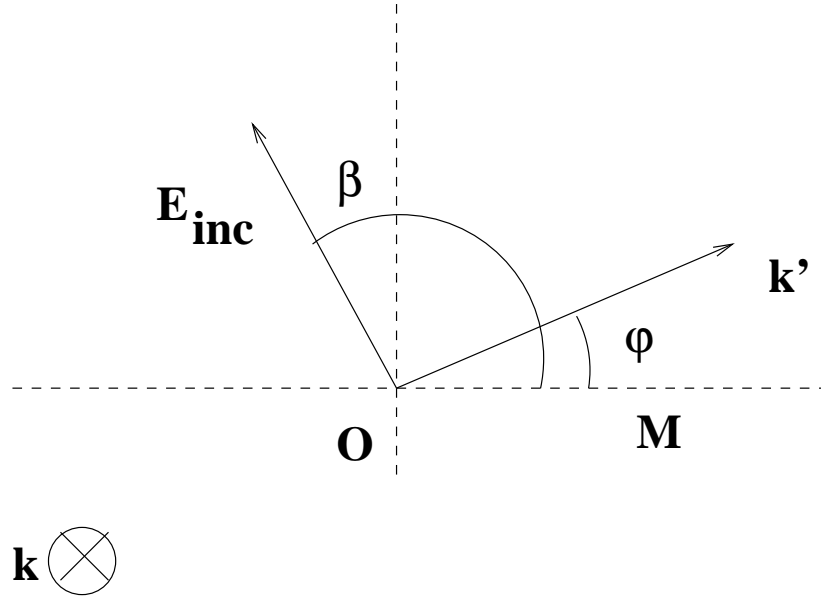


FIG. 3.3 - Schéma de la géométrie dans le référentiel du laboratoire. Le vecteur  $\mathbf{M}$  définit l'axe  $x$ , la direction magnéto-transverse l'axe  $y$ , et le vecteur de l'onde incidente  $\mathbf{k}$  l'axe  $z$ .  $\mathbf{E}_{inc}$  désigne le vecteur champ électrique de l'onde incidente.

$$I_0 = \int_0^\pi d\varphi \left( A \cos(\beta - \varphi)^2 \sin \varphi + B \sin(\beta - \varphi)^2 \sin \varphi \right) = \frac{2}{3} \left( A(2 - \cos \beta^2) + B(1 + \cos \beta^2) \right).$$

où les constantes de proportionnalité  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont des intégrales sur l'angle de diffusion  $\theta$  uniquement, qui dépendent des détails du modèle considéré pour la diffusion. Dans le cadre du modèle précédent où on limite la diffusion à une sphère de rayon  $\ell_{abs}$ , on peut calculer exactement ces coefficients dans la limite  $k\ell_{abs} \gg 1$ . On obtient  $A = B$ , ce qui signifie que le dénominateur  $I_0$  de l'EHP ne dépend pas de l'angle repérant la polarisation linéaire incidente  $\beta$ , et donc

$$\eta(\beta) = 2\eta_{depol} \sin \beta^2, \quad (3.9)$$

où  $\eta_{depol}$  désigne la valeur de l'EHP obtenue à l'Eq. (3.8) pour de la lumière incidente dépolarisée. La moyenne sur l'angle  $\beta$  de  $\eta(\beta)$  redonne la valeur  $\eta_{depol}$ .

La dépendance de l'EHP en fonction de l'état de polarisation circulaire se traite de la même façon, un état de polarisation circulaire correspondant dans le référentiel du laboratoire à

$$\mathbf{E}_{inc} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \\ 0 \end{pmatrix}.$$

On obtient que l'EHP est indépendant de l'état de polarisation circulaire droit ou gauche de la lumière

$$\eta^{\pm} = \eta_{depol}. \quad (3.10)$$

Cette valeur correspond à ce qu'on obtient dans le cas de la polarisation linéaire à l'angle  $\beta = \pi/4$ , ou lorsqu'on considère de la lumière incidente dépolarisée.

### 3.3.2 Discussion des résultats expérimentaux

Dans cette section sont discutées les expériences portant sur la dépendance de l'EHP en fonction de la polarisation de l'onde incidente dans différentes conditions expérimentales. Dans le cas des gels ces expériences sont comparées au modèle de la section précédente. L'expérience montre que la dépendance de l'EHP en fonction de l'angle  $\beta$  pour de la lumière incidente polarisée linéairement n'est effectivement due qu'au numérateur de  $\eta$ , c'est à dire au signal différence  $\Delta I$  et non au dénominateur  $I_0$ . Cela est conforme à ce que donne notre modèle simple. La figure Fig. (3.4a) représente la courbe expérimentale pour l'EHP normalisée par le maximum de la courbe en fonction de l'angle  $\beta$ , avec la prédiction déduite de l'équation Eq. (3.9). L'échantillon est un sol-gel de ferrofluide soumis à un champ magnétique de 250Oe de fréquence 560Hz. L'annulation de l'EHP pour  $\beta = 0$ , correspond à la configuration où le vecteur champ électrique de la lumière incidente est parallèle au champ magnétique  $\mathbf{B}$ . Cette règle de sélection pour la polarisation est donc bien confirmée expérimentalement. Dans cet échantillon, l'expérience a pu être reproduite à des champs et à des fréquences plus faibles sans que soit affectée significativement la forme de la dépendance en fonction de la polarisation. Si le comportement général est correctement rendu par le modèle, il demeure visiblement un écart entre la courbe expérimentale et la prédiction théorique, correspondant à une correction en  $\cos \beta^2 \sin^2 \beta$ . L'expérience réalisée avec de la lumière polarisée circulairement confirme la prédiction de l'équation Eq. (3.10). En effet, l'expérience fournit un écart entre  $\eta^+$  et  $\eta^-$  qui n'est pas significatif. La valeur de  $\eta^+$  correspond bien à ce que donne l'expérience précédente avec de la lumière dépolarisée à l'angle  $\beta = \pi/4$ .

La figure (3.4b) représente une courbe expérimentale de l'EHP normalisée par le maximum en fonction de l'angle  $\beta$  repérant l'état de polarisation linéaire dans un système différent constitué d'un ferrofluide liquide et non d'un sol-gel. On remarque que le comportement est complètement différent, avec notamment une zone dans laquelle la polarisation cause un changement de signe de l'EHP. La dépendance observée expérimentalement est très proche d'une loi en  $-\cos(2\beta)$ , mais il n'y a pas d'explication théorique. On ne s'attend pas à ce que le modèle théorique simple présenté ci-dessus soit valable aussi dans un liquide magnétique. En effet, comme mentionné dans la section 2.3, des mesures d'effets magnéto-optiques réalisées dans les gels et dans les liquides ont révélées des comportements tout à fait différents suivant qu'on considère les effets magnéto-optiques circulaires ou linéaires. Dans les sol-gels, les degrés de liberté de translation des particules sont bloqués alors que dans le liquide les particules se réorganisent spatialement dans le sens du champ appliqué. Cette réorganisation spatiale

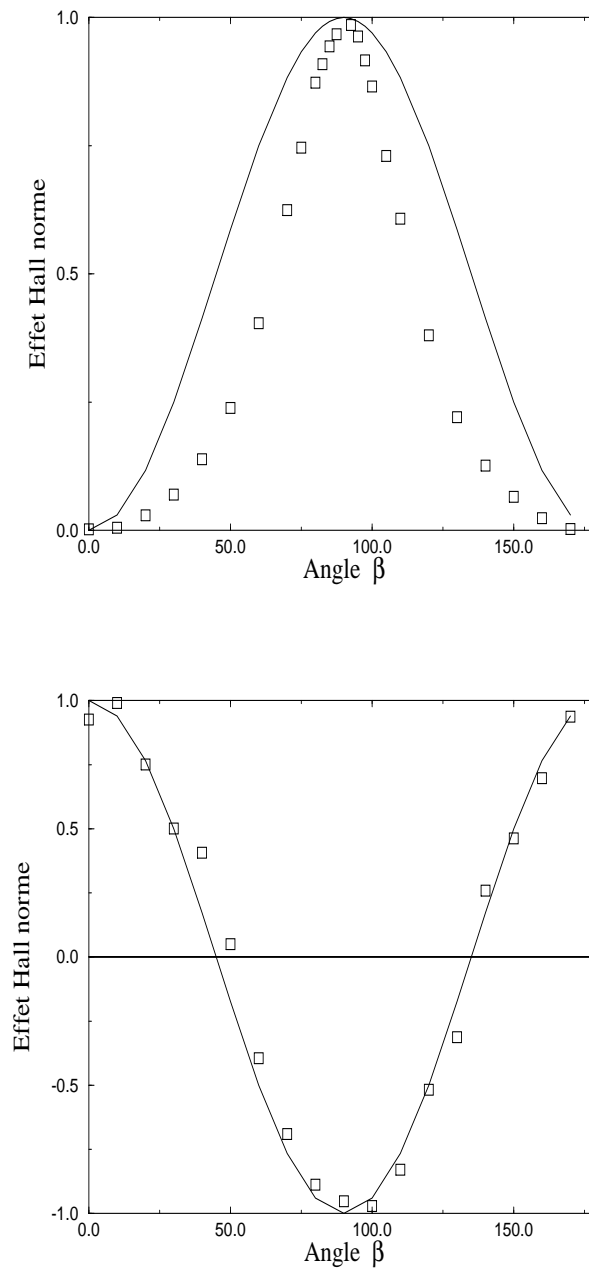


FIG. 3.4 - (a) Dépendance de l'EHP normalisé pour un sol-gel de ferrofluide en fonction de l'angle  $\beta$  repérant la polarisation linéaire de la lumière incidente. Les points sont expérimentaux, et la courbe est la prédiction de l'Eq. (3.9). Cette expérience a été réalisée avec un champ de 250 Oe de fréquence de 560 Hz avec le même échantillon qu'à la figure 2.2b. (b) Dépendance de l'EHP normalisé pour un ferrofluide liquide en fonction de l'angle  $\beta$ . La courbe en trait plein correspond à une loi en  $-\cos(2\beta)$ . Cette dernière expérience a été réalisée à une fréquence de 20 Hz, avec un champ de 40 Oe, et un échantillon de 0.025% de ferrofluide de Cobalt en solution aqueuse. Ces courbes ont été fournies par F. Donatini.

change la dépendance de la diffusion par les particules en fonction l'état de polarisation de la lumière incidente.

L'ensemble de ces expériences suggère que la diffusion dans les ferrofluides liquides n'est pas due à des particules individuelles, mais plutôt à des ensembles de particules réorganisées à des échelles de l'ordre ou plus grande que la longueur d'onde. La structure spatiale précise de cette réorganisation nous est encore complètement inconnue, même si des progrès sont réalisés dans ce domaine notamment grâce à la diffusion des rayons X et des neutrons dans ces milieux. La dépendance de l'EHP en fonction de  $\beta$  a également été mesurée par G. Rikken au LCMI avec les diffuseurs de Mie paramagnétiques de  $\text{CeF}_3$  étudiés à la partie II, emprisonnés dans une matrice solide et dans le régime de diffusion simple. Les expériences sont très récentes et l'interprétation des résultats en est encore à un stade préliminaire. Ces expériences, qui contiennent visiblement beaucoup d'information, devraient permettre de mieux caractériser à la fois l'EHP et les diffuseurs responsables de l'effet.

L'expérience "symétrique" de cette expérience, consistant à envoyer de la lumière incidente dépolarisée et à mesurer l'état de polarisation de la lumière diffusée est une expérience également intéressante qui n'a pas été encore réalisée car elle est moins facile à concevoir expérimentalement. Cette expérience permettrait de savoir si l'Effet Hall Photonique est capable de polariser de la lumière incidente dépolarisée.

### 3.4 Aspects dynamiques de l'EHP

Dans cette dernière section consacrée à l'effet Hall Photonique dans les ferrofluides, nous discutons un aspect "dynamique", qui est intimement lié à la rotation des particules induites par le champ magnétique dans les échantillons de ferrofluides (liquides). A la section 2.1, nous avons noté que les moments magnétiques des particules relaxent essentiellement par le mécanisme de Brown pour les échantillons de ferrofluide de Cobalt. Comme l'effet Faraday dans les ferrofluides est produit uniquement par l'orientation de ces moments magnétiques dans le champ, l'effet Faraday devrait aussi relaxer en fonction notamment de la fréquence du champ magnétique appliqué. La relaxation de Néel, si elle était présente, n'affecterait de toutes façons pas la rotation Faraday pour laquelle seule la rotation globale des particules importe. L'étude de la rotation Faraday en régime de fréquence variable en fonction de la fréquence du champ magnétique appliqué montre en effet une relaxation [PDN99]. Le temps de relaxation caractéristique, s'obtient expérimentalement soit en mesurant directement la rotation Faraday en fonction de la fréquence du champ magnétique, soit en étudiant le régime transitoire qu'on observe lorsqu'on coupe le champ. Les deux méthodes fournissent à peu près les mêmes temps de relaxation. D'après la relation (2.3), on remarque que ce temps de relaxation est directement lié à la viscosité de la suspension. Bacri *et al.* à Paris et B. Payet à St-Etienne ont montré que la mesure de ces temps de relaxation permet de déterminer la viscosité du liquide porteur de la suspension. Sur ce principe, un viscosimètre a été conçu pour certaines applications, obtenant une précision de quelques pourcents et fonctionnant sur plusieurs décades de viscosité.

La susceptibilité des ferrofluides est bien décrite par la théorie de Debye, développée originellement pour les diélectriques mais qui s'applique aussi aux liquides magnétiques. Cette théorie repose sur les hypothèses suivantes:

1. Tous les moments magnétiques des particules monodomaines sont fixes par rapport aux particules
2. Toutes les particules ont la même dimension et les mêmes moments magnétiques
3. Il n'y a pas d'interaction entre les particules.

Dans le cadre du modèle de Debye, la susceptibilité magnétique vaut

$$\chi(\omega_H) = \frac{\chi_0}{1 + i\omega_H\tau} = |\chi(\omega_H\tau)|e^{i\varphi(\omega_H\tau)}, \quad (3.11)$$

où  $\omega_H$  désigne la fréquence du champ magnétique et  $\tau$  le temps de relaxation du liquide, c'est à dire pour les échantillons considérés le temps de relaxation de Brown de l'Eq. (2.3). La proportionnalité entre la susceptibilité magnétique (3.11) et la rotation Faraday (mesurée à la fois en *amplitude et phase*) a été démontrée expérimentalement à la Ref. [PDN99]. C'est pourquoi, on s'attend à ce que l'EHP soit également proportionnel à cette susceptibilité magnétique complexe. Dans ce contexte, il

est important de ne pas confondre la phase  $\varphi(\omega_H\tau)$  qui intervient dans l'Eq. (3.11) avec la phase du champ diffusé, qu'on écrit aussi souvent comme une grandeur complexe. La phase  $\varphi(\omega_H\tau)$  est définie par rapport au champ magnétique et varie à la fréquence du champ magnétique  $\omega_H$ , alors que la phase du champ diffusé varie à des fréquences optiques notées  $\omega$ .

En ce qui concerne l'applicabilité du modèle de Debye à l'EHP, un premier test simple consiste à montrer que l'EHP ne dépend que du produit  $\omega_H\tau$ . Pour le vérifier, F. Donatini a réalisé une série d'expériences avec des échantillons de viscosité variable en diluant successivement avec de l'eau une solution de ferrofluide de Cobalt en solution au départ dans le glycérol. Trois échantillons de fraction volumique 0.025% en ferrofluide ont été étudiés: la solution originale à 100% de glycérol de viscosité 1093Pa.s, une solution à 90% de glycérol de viscosité 384Pa.s, et une solution à 75% de glycérol de viscosité 60Pa.s à 25°. L'expérience a été réalisée avec un champ de 100Oe. Sur la figure 3.5 sont représentés l'intensité et la phase (par rapport au champ magnétique) de l'EHP en fonction du produit  $\omega_H\tau$ . On constate que les trois courbes se superposent, ce qui prouve que l'EHP ne dépend que du produit  $\omega_H\tau$ . Cette expérience confirme que la relaxation de Brown intervient dans l'EHP dans les ferrofluides. La tendance à la saturation de l'EHP en fonction du champ magnétique appliqué était la preuve que l'orientation des moments magnétiques par le champ dans les ferrofluides est à l'origine de l'EHP dans ces composés. Cette expérience confirme, que le mécanisme à la base de l'EHP dans les ferrofluides est bien la même orientation des moments, qui est également responsable de la rotation Faraday. Par ailleurs, le comportement observé expérimentalement pour l'EHP en fonction de la fréquence à viscosité fixée à la figure 3.5 est bien celui prévu par le modèle de Debye de l'Eq. (3.11). Dans les ferrofluides, l'EHP est donc bien proportionnel à la susceptibilité magnétique  $\chi(\omega_H)$ .

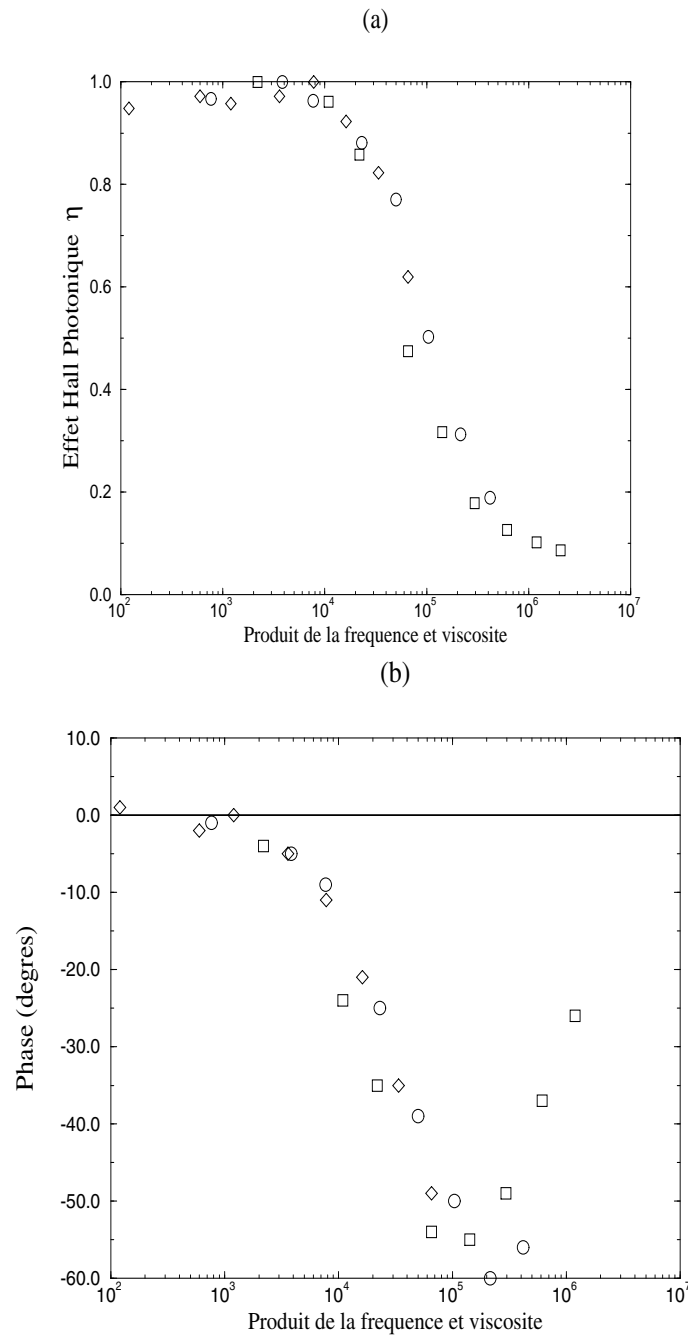


FIG. 3.5 - Effet Hall Photonique en intensité (a) et phase (b) normalisé en fonction du produit de la fréquence du champ magnétique par la viscosité de la suspension pour des échantillons de viscosité différentes: la solution originale à 100% de glycérol (losanges), une solution à 90% de glycérol (croix), et une solution à 75% de glycérol (carrés). L'expérience a été réalisée par F. Donatini avec un champ de 100 Oe et des échantillons de fraction volumique 0.025%.



## Conclusion

Dans cette thèse, nous avons analysé comment une source d'anisotropie dans un milieu diffusant magnéto-optique ou chiral, modifie les caractéristiques de la lumière diffusée. Dans la première partie, nous nous sommes attaché à construire une théorie de la diffusion simple dans des milieux constitués de diffuseurs optiquement anisotropes. Nous avons utilisé une représentation de la diffusion au moyen de la matrice  $T$ , qui met l'accent sur les liens entre les symétries des diffuseurs et les symétries dans la lumière diffusée. Au moyen d'une approche perturbative, la théorie générale de Mie pour la diffusion par une sphère diélectrique a été étendue au cas où la sphère possède des propriétés magnéto-optiques ou chirales. Certains régimes particuliers de la théorie générale de Mie, comme la diffusion Rayleigh et l'optique géométrique ont été discutés.

La seconde partie de cette thèse a permis d'appliquer à la diffusion multiple les résultats de la première partie concernant la diffusion simple. Un modèle quantitatif pour l'Effet Hall Photonique, l'analogue pour l'optique de l'Effet Hall classique, a été développé. Les prédictions du modèle ont pu être validées expérimentalement. Si l'origine de l'Effet Hall Photonique est bien liée à la rotation Faraday, qui concerne la polarisation de la lumière, il s'avère qu'un traitement scalaire dans le cadre d'une théorie de transport, est suffisant pour rendre compte de l'essentiel des caractéristiques de cet effet. La solution de Mie sous champ magnétique pour la diffusion simple a également permis une autre application. Celle-ci concerne la rétrodiffusion cohérente, dont les caractéristiques principales sont affectées par un champ magnétique. La forme du cône de rétrodiffusion cohérente a été discutée à l'ordre un dans le champ magnétique appliqué et dans l'approximation de diffusion.

Enfin dans la dernière partie de cette thèse, un modèle a été proposé pour expliquer l'Effet Hall Photonique dans les ferrofluides. L'essentiel des expériences a été réalisé dans le cadre d'une collaboration avec le LRCCI à St-Etienne. Ces expériences ont permis d'améliorer notre compréhension de l'Effet Hall Photonique. Des résultats intéressants et prometteurs ont pu être obtenus dans le cas où la polarisation de la lumière incidente est changée dans les gels de ferrofluides. Outre les perspectives ouvertes par les expériences dans les ferrofluides, l'étude de la diffusion de la lumière dans les milieux chiraux semble très prometteuse. Des mesures de polarisation dans les milieux chiraux pourraient conduire par exemple à des applications dans le domaine de l'imagerie et dans celui de l'analyse physico-chimique des tissus biologiques.

# Bibliographie

- [AGRS83] A. N. Ageev, V. N. Gridnev, O. G. Rutkin, and G. A. Smolenskii. Permeability at optical frequencies. *Sov. Phys. Solid-State*, 25(2):270–1, 1983.
- [AK73] Ya. L. A'lpert and R. N. Kaufman. Turning region of the Poynting vector of a wave incident on an inhomogeneous plasma towards the direction of an external magnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 37(4):651–654, 1973.
- [And58] P. W. Anderson. Absence of diffusion in certain random lattices. *Phys. Rev.*, 109(5):1492–1505, 1958.
- [Arg55] P. N. Argyres. Theory of the Faraday and Kerr effects in ferromagnetics. *Phys. Rev.*, 97:334–345, 1955.
- [ATLT91] M. P. Van Albada, B. A. Van Tiggelen, A. Lagendijk, and A. Tip. Speed of propagation of classical waves in strongly scattering media. *Phys. Rev. Lett.*, 66(24):3132–3135, 1991.
- [AWMM88] E. Akkermans, P. E. Wolf, R. Maynard, and G. Maret. Theoretical study of coherent backscattering of light by disordered media. *J. Phys. France*, 49:77–98, 1988.
- [AY75] S. Asano and G. Yamamoto. Light scattering by a spheroidal particle. *Appl. Opt.*, 14(1):29–49, 1975.
- [B83] M. Büttiker. Larmor precession and the traversal time for tunneling. *Phys. Rev. B*, 27:6178, 1983.
- [BC66] H. C. Bryant and J. Cox. Mie theory and the Glory. *J. Opt. Soc. Am.*, 56(11):1529–32, 1966.
- [BF94] R. Berkovits and S. Feng. Correlations in coherent multiple scattering. *Physics Report*, 238(3):135–172, 1994.
- [BG83] J. C-. Bacri and D. Gorse. Critical behaviour of the elastic constant and the friction coefficient in the gel phase of gelatin. *J. Phys.*, 44:985–991, 1983.

- [BH83] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley, New York, 1983.
- [BJ74] H. C. Bryant and N. Jarmie. The glory. *Sci. Amer.*, 231:60–71, 1974.
- [BL82] M. Büttiker and R. Landauer. Traversal time for tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 49:1739, 1982.
- [BN98] R. Balian and J-J. Niez. Effects of finite screening length on the absorption of electromagnetic waves. *Euro. Phys. J. B*, 2(4):413–49, 1998.
- [BNF<sup>+</sup>99] F. Bentivegna, M. Nyvlt, J. Ferré, J.P. Jamet, A. Brun, Š. Višňovský, and R. Urban. Magnetically textured  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles in a silica gel matrix: Optical and magneto-optical properties. *J. Appl. Phys.*, 85(4):2270–8, 1999.
- [Boh74] C. F. Bohren. Light scattering by an optically active sphere. *Chem. Phys. Lett.*, 29(3):458–462, 1974.
- [Boh75] C. F. Bohren. Scattering of electromagnetic waves by an optically active spherical shell. *J. Chem. Phys.*, 62(4):1566–71, 1975.
- [BPP97] R. Burridge, G. Papanicolaou, and L. Pasteur. *Waves in random and other complex media*. Springer Verlag, Berlin, 1997. Voir l'article Reciprocity and coherent backscattering of light par B. A. Van Tiggelen and R. Maynard.
- [Bru54] Bruhat. *Optique*. Masson, Paris, 1954.
- [BV84] L. D. Barron and J. Urbancich. Magneto-chiral birefringence. *Molec. Phys.*, 51(3):715–730, 1984.
- [BW80] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon, Oxford, 1980.
- [BZ79] N. B. Baranova and B. Y. Zeldovich. Theory of a new linear magnetorefractive effect in liquids. *Molec. Phys.*, 38:1085–1098, 1979.
- [BZ87] A. Bott and W. Zdunkowski. Electromagnetic energy within dielectric spheres. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(8):1361–1365, 1987.
- [Cha60] S. Chandrasekhar. *Radiative transfer*. Dover, New York, 1960.
- [CNVG98] R. Carminati, M. Nieto-Vesperinas, and J.J Greffet. Reciprocity of evanescent electromagnetic waves. *J. Opt. Soc. Am. A*, 15(3):706–12, 1998.
- [Cra76] J. Crank. *The Mathematics of Diffusion*. Clarendon Press, Oxford, 1976.

- [CTDL77] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique*. Hermann, Paris, 1977.
- [CVN98] S. Clerjon, D. Vincent, and G. Noyel. Complex microwave susceptibility of a ferrofluid with mag-hematite particles: nonreciprocal phenomena in magnetic liquids. *IEEE Trans. on Magn.*, 34(3):719–23, 1998.
- [D98] G. Düchs. The Inverted Photonic Effect. Diplomarbeit LCMI, 1998.
- [Dav96] P. Daveze. *PhD thesis: Contribution à l'étude de propriétés magnéto-optiques des liquides magnétiques. Applications opto-électroniques*. PhD thesis, Université Jean Monnet à St-Etienne, 1996.
- [DF78] J. R. Dixon and J. K. Furdyna. Gyrotropic sphere: selected examples of resonance spectra. *Phys. Rev. B.*, 18:6770–6788, 1978.
- [dGP70] P. G. de Gennes and P. A. Pincus. Pair Correlations in a ferromagnetic colloid. *Phys. Kondens. Materie*, 11:188–198, 1970.
- [dH80a] H. C. Van de Hulst. *Light Scattering by Small Particles*. Dover, New York, 1980.
- [dH80b] H. C. Van de Hulst. *Multiple Light Scattering*, volume 2. Academic Press, New York, 1980.
- [DL80] H. W. Davies and J. P. Llewellyn. Magneto-optical effects in ferrofluids. *J. Phys. D., Appl. Phys.*, 13:2327–2336, 1980.
- [dMAL88] M. B. Van der Mark, M. P. Van Albada, and A. Lagendijk. Light scattering in strongly scattering media: Multiple scattering and weak localization. *Phys. Rev. B*, 37(7):3575–3592, 1988.
- [DNM96] F. Donatini, S. Neveu, and J. Monin. Measurements of longitudinal magneto-optic effects in ferrofluids: a dynamic method. *J. Magn. Magn. Mat.*, 162:69–74, 1996.
- [Don99] F. Donatini. Private communication. 1999.
- [dSN93] M. F. da Silva and A. M. Figueiredo Neto. Optical and x-ray-scattering studies of ionic ferrofluids of  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$ ,  $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ , and  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ . *Phys. Rev. E*, 48(6):4483–91, 1993.
- [Edm60] A. R. Edmonds. *Angular momentum in Quantum Mechanics*. Princeton University Press, Princeton, 1960.
- [ELM93] F. A. Erbacher, R. Lenke, and G. Maret. Multiple light scattering in magneto-optically active media. *Europhys. Lett.*, 21(5):551–556, 1993. The value for the effective Verdet

constant given on page 555, and should be divided by a factor  $\sqrt{2}$  due to a forgotten factor of 2 in Eq. (3).

- [EWT60] N. G. Einspruch, E. J. Witterholt, and R. Truell. Scattering of a plane transverse wave by a spherical obstacle in an elastic medium. *J. of Applied Phys.*, 31(5):806–18, 1960.
- [Far95] G. Fardella. *PhD thesis: Modélisation de l'émission thermique de rayonnement infrarouge par les milieux inhomogènes*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 1995.
- [FNHRD98] M. E. J. Friese, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg, and H. Rubinsztein-Dunlop. Optical torque controlled by elliptical polarization. *Opt. Lett.*, 23(1):1–3, 1998.
- [Fri68] U. Frish. *Probabilistic Methods in Applied Mathematics*, volume 1. A. T. Bharucha-Reid, New York, 1968.
- [FW78] G. W. Ford and S. A. Werner. Scattering and absorption of electromagnetic waves by a gyrotropic sphere. *Phys. Rev. B.*, 18:6752–6769, 1978.
- [Gol84] A. A. Golubentsev. Suppression of interference effects in multiple scattering of light. *JETP*, 59(1):26–32, 1984.
- [GORC95] V. Gasparian, M. Ortuno, J. Ruiz, and E. Cuevas. Faraday rotation and complex-valued traversal time for classical light waves. *Phys. Rev. Lett.*, 75(12):2312–15, 1995.
- [GP93] P. G. De Gennes and J. Prost. *The Physics of Liquid Crystals*. Oxford Science Publication, New York, 1993.
- [GR80] I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik. *Table of integrals, series and products*. Academic Press, 1980.
- [Gra95] YA. I. Granovsky. Mie theory as seen today. *Report on Mathematical Physics*, 36(1):21–30, 1995.
- [Gre80] R. Greenler. *Rainbows, halos and glories*. Cambridge University Press, 1980.
- [Gro98] POAN Research Group. *New aspects of electromagnetic and acoustic wave diffusion*. Springer, Berlin, 1998.
- [GSST99] A. Z. Genack, P. Sebbah, M. Stoytchev, and B. A. Van Tiggelen. Statistics of wave dynamics in random media. *Phys. Rev. Lett.*, 82(4):715–8, 1999.
- [HDB<sup>+</sup>98] E. Hasmonay, E. Dubois, J-C. Bacri, R. Perzynsky, Y. L. Raikher, and V. I. Stepanov. Static magneto-optical birefringence of size-sorted  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles. *Euro. Phys. J. B*, 5(4):859–67, 1998.

- [HKL97] A. B. Harris, R. D. Kamien, and T. C. Lubensky. On the microscopic origin of the cholesteric pitch. *Phys. Rev. Lett.*, 78:2867, 1997.
- [HKL99] A. B. Harris, R. D. Kamien, and T. C. Lubensky. Molecular chirality and chiral parameters. *to appear Rev. Mod. Phys.*, october 1999.
- [HT74] J. E. Hansen and L. D. Travis. Light scattering in planetary atmospheres. *Space Science Review*, 16:527–609, 1974.
- [Hul32] H. R. Hulme. *Proc. Roy. Soc.*, A135:237, 1932.
- [IHL99] A. S. Issaenko, A. B. Harris, and T. C. Lubensky. Quantum theory of chiral interactions in cholesteric liquid crystals. *Phys. Rev. E*, 60(1):578–97, 1999.
- [Ish78] A. Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media*, volume 1. Academic Press, San Diego, 1978.
- [Jac75] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, New York, 1975.
- [JDM<sup>+</sup>99] D. Jamon, F. Donatini, J. Monin, M. Rasa, V. Socoliuc, O. Filip, D. Bica, and V. Sofonea. Concentration dependence of magnetisation and magneto-optical effects in a ferrofluid with double layer stabilized particles. *J. Magn. Magn. Mat.*, 201:174–7, 1999.
- [JN99] B. Jeyadevan and I. Nakatani. Characterization of field-induced needle-like structures in ionic and water-based magnetic fluids. *J. Magn. Magn. Mat.*, 201:62–65, 1999.
- [JP89] J. J. M. Janssen and J. A. A. J. Perenboom. Magneto-optical phenomena in magnetic fluids: the influence of orientation of anisotropic scatterers. *J. Magn. Magn. Mat.*, 81:14–24, 1989.
- [KB81] V. N. Kuz'min and V. A. Babenko. Light scattering by a weakly anisotropic spherical particle. *Opt. Spectrosc.*, 50:269–273, 1981.
- [KB82] V. N. Kuz'min and V. A. Babenko. Laws of the behavior of the angular characteristics of light scattering by crystalline particles in the weak-anisotropy approximation. *Journal-of-Applied-Spectroscopy*, 36:238–241, 1982. Translated from: *Zhurnal-Prikladnoi-Spektroskopii.*, 1982, **36**, No.2, 305-309.
- [Ker69] M. Kerker. *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation*. Academic Press, New York, 1969.
- [KM62] Y. Kagan and L. Maksimov. Transport phenomena in a paramagnetic gas. *Sov. Phys. JETP*, 14(3):604–10, 1962.

- [KMS<sup>+</sup>79] G. S. Krinchik, K. M. Mukimov, Sh. M. Sharipov, A. P. Khrebtov, and E. M. Speranskaya. The permittivity tensor and increase in the transmittance of the spinel ferrites upon their conversion into single-sublattice structures. *Sov. Phys. JETP*, 49(6):1074–1079, 1979.
- [Kri64] G. S. Krinchik. Ferromagnetic Hall Effect at optical frequencies and inner effective magnetic field of ferromagnetic metals. *J. Appl. Phys.*, 35(3):1089–1092, 1964.
- [Kuz81] V. N. Kuz'min. Spectral transmission of a system of anisotropic quartz particles. *J. Appl. Spectrosc.*, 35(6):1340–3, 1981. Translated from: *Zhurnal-Prikladnoi-Spektroskopii.*, 1981, **35**, No.6, 1024-28.
- [Lan94] R. Landauer. Barrier interaction time in tunneling. *Rev. Mod. Phys.*, 66(1):217–228, 1994.
- [Lev69] R. D. Levine. *Quantum Mechanics of Molecular Rate Processes*. Clarendon, Oxford, 1969. voir P101.
- [Lin94] H. Y. Ling. Theoretical investigation of transmission through a Faraday-active Fabry-Perot etalon. *J. Opt. Soc. Am. A*, 11:754–758, 1994.
- [LL67] L. Landau and E. Lifchitz. *Quantum Mechanics*. Mir, Moscow, 1967.
- [LL96] D. Livdan and A. A. Lisyansky. Transport properties of waves in absorbing random media with microstructure. *Phys. Rev. B*, 53(22):14843–8, 1996.
- [LLP67] L. Landau, E. Lifchitz, and L. Pitayevski. *Electrodynamics of Continuous Media*. Mir, Moscow, 1967.
- [LMW91] J. Q. Lu, A. A. Maradudin, and R. F. Wallis. Enhanced backscattering in a magnetic field. *Waves in Random Media*, 1:309–339, 1991.
- [Lou70] R. Loudon. The propagation of electromagnetic energy through an absorbing dielectric. *J. Phys. A*, 3:233–45, 1970.
- [LS95] I. V. Lindell and M. P. Silverman. Plane-wave scattering from a nonchiral object in a chiral environment. *Report 211*, 1995.
- [LSPR95] I. Lindell, A. H. Sihvola, P. P. Puska, and L. H. Ruotanen. Conditions for the parameter dyadics of lossless bi-anisotropic media. *Micro. Optical. Tech. Lett.*, 8(5):268–72, 1995.
- [LT96] A. Lagendijk and B. A. Van Tiggelen. *Resonant multiple scattering of light*, *Phys. Rep.*, volume 270. Elsevier, Amsterdam, 1996.

- [Mac91] D. W. Mackowski. Analysis of radiative scattering for multiple sphere configurations. *Proc. Roy. Soc. Lond. A*, 433(1889):599–614, 1991.
- [Mah90] G. D. Mahan. *Many-Particle Physics*. Plenum Press, New York, 1990.
- [Mar93] R. J. Martin. Mie scattering formulae for non-spherical particles. *J. of Modern Optics*, 40(12):2467–94, 1993.
- [MBS92] J. G. Muga, S. Brouard, and R. Sala. Equivalence between tunnelling times based on (a) absorption probabilities, (b) the Larmor clock, and (c) scattering projectors. *J. Phys.: Condens. Matter*, 4:L579–L584, 1992.
- [MC84] P. L. Marston and J. H. Crichton. Radiation torque on a sphere caused by a circularly-polarized electromagnetic wave. *Phys. Rev. A*, 30(5):2508–16, 1984.
- [MF53] P. M. Morse and H. Feshbach. *Methods of theoretical Physics*. Mac Graw Hill, New York, 1953.
- [MHB84] E. Mazur, H. J. M. Hijnen, and J. J. M. Beenakker. Experiments on the influence of a magnetic field on diffusion in N<sub>2</sub>-noble gas mixtures. *Physica*, 123A:412–427, 1984.
- [Mie08] G. Mie. Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen. *Annalen der Physik*, 25(3):377–445, 1908.
- [MJ88] F. C. MacKintosh and S. John. Coherent backscattering of light in the presence of time-reversal-noninvariant and parity-nonconserving media. *Phys. Rev. B*, 37(4):1884–1897, 1988.
- [MLM99] U. Mack, R. Lenke, and G. Maret. Comparison between the Glory and the backscattering of light in random media. *submitted to Applied Optics*, 1999.
- [MM94] A. S. Martinez and R. Maynard. Faraday effect and multiple scattering of light. *Phys. Rev. B*, 50(6):3714–3732, 1994.
- [MO81] F. A. Modine and V. M. Orera. Magneto-optical properties of mettalic colloids in insulators. *Phys. Rev. B*, 24(3):1159–1163, 1981.
- [MP82] J. W. D. Martens and W. L. Peeters. An ellipsometric and magneto-optical study of cobalt ferrite single crystals. *Solid State Comm.*, 41(9):667–669, 1982.
- [Nap98] A. Napierala. Investigations of the Photonic Hall Effect. Diplomarbeit LCMI, 1998.
- [New82] R. G. Newton. *Scattering Theory of Waves and Particles*. Springer Verlag, New York, 1982.



- [NLT92] T. M. Nieuwenhuizen, A. Lagendijk, and B. A. Van Tiggelen. Resonant point scatterers in multiple scattering of classical waves. *Phys. Lett. A*, 169:191–4, 1992.
- [NPTBP93] S. Neveu-Prin., F. A. Tourinho, J.-C. Bacri, and R. Perzynski. Magnetic birefringence of Cobalt ferrite ferrofluids. *Colloids Surface A: Physicochem. Eng. Aspect*, 80:1–10, 1993.
- [Nus77] H. M. Nussenzweig. Theory of the glory. *Phys. Rev. Lett.*, 38(22):1279–82, 1977.
- [Nus79] H. M. Nussenzweig. Complex angular momentum theory of the rainbow and the glory. *J. Opt. Soc. Am.*, 69(8):1068–79, 1979.
- [OR96] C. Oldano and M. Rajteri. Optical activity of small-pitch helical-shaped dielectric media. *Phys. Rev. B*, 54(15):273–276, 1996.
- [PDLL93] Y. T. Pan, C. W. Du, X. D. Liu, and Z. G. Li. Wavelength dependence of the Faraday effect and magnetobirefringence in ferrofluid thin films. *J. Appl. Phys.*, 73(10):6139–41, 1993.
- [PDN99] B. Payet, F. Donatini, and G. Noyel. Longitudinal magneto-optical study of Brown relaxation in ferrofluids and transient methods. Applications. *J. Magn. Magn. Mat.*, 201:207–210, 1999.
- [PGG98] H. Polaert, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Forces and torques exerted on a multilayered spherical particle by a focused Gaussian beam. *Opt. Comm.*, 155:169–179, 1998.
- [PL96] V. S. Podolsky and A. A. Lisyansky. Transfer matrix of a spherical scatterer. *Phys. Rev. B*, 54(17):12125–8, 1996.
- [PM98] N. B. Piller and O. J. F. Martin. Extension of the generalized multipole technique to three-dimensional anisotropic scatterers. *Opt. Lett.*, 23(8):579–81, 1998.
- [PST97] Y-P. Pellegrini, D. B. Stout, and P. Thibaudeau. Off-shell mean-field electromagnetic T-matrix of finite-size spheres and fussy scatterers. *J. Phys.: Condens. Mat.*, 9:177–191, 1997.
- [PTS97] Y-P. Pellegrini, P. Thibaudeau, and D. B. Stout. Momentum-dependent electromagnetic T-matrix and dynamic effective properties of random media. *Physica A*, 241:72–77, 1997.
- [RD73] J. Roth and M. J. Dignam. Scattering and extinction cross sections for a spherical particle coated with an oriented molecular layer. *J. of Opt. Soc. of Am.*, 63(3):308–11, 1973.
- [Ros97] R. E. Rosensweig. *Ferrohydrodynamics*. Dover, New York, 1997.

- [RR97] G. L. J. A. Rikken and E. Raupach. Observation of magneto-chiral dichroism. *Nature*, 390:493–494, 1997.
- [RR98] G. L. J. A. Rikken and E. Raupach. Pure and cascaded magneto-chiral anisotropy in optical absorption. *Phys. Rev. E*, 58(4):5081–4, 1998.
- [RRH64] R. Rosenberg, C.B. Rubinstein, and D.R. Herriott. Resonant optical faraday rotator. *Appl. Opt.*, 3(9):1079–1083, 1964.
- [RSS89] H. J. Ross, B. S. Sherborne, and G. E. Stedman. Selection rules for optical activity and linear birefringence bilinear in electric and magnetic fields. *Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.*, 22:459–73, 1989.
- [RT96] G. L. J. A. Rikken and B. A. Van Tiggelen. Observation of magnetically induced transverse diffusion of light. *Nature*, 381:54–55, 1996.
- [RT97] G. L. J. A. Rikken and B. A. Van Tiggelen. Direction of optical energy flow in a transverse magnetic field. *Phys. Rev. Lett.*, 78:847–51, 1997.
- [Rup98] R. Ruppin. Electromagnetic energy in dispersive spheres. *J. of Opt. Soc. of Am. A*, 15(2):524–7, 1998.
- [Sak89] J. J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*, volume 1. Adison-Wesley, New York, 1989.
- [She90] Ping Sheng. *Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media*, volume 8. World Scientific, Singapore, 1990.
- [SL96] H. Stark and T. C. Lubensky. Multiple Light Scattering in Nematic Liquid Crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 77(11):2229–32, 1996.
- [SL97] H. Stark and T. C. Lubensky. Multiple Light Scattering in anisotropic random media. *Phys. Rev. E*, 55(1):514–33, 1997.
- [SM98] F. Scheffold and G. Maret. Universal Conductance Fluctuations of Light. *Phys. Rev. Lett.*, 81(26):5800–3, 1998.
- [SP93] L. Sakhnini and J. Popplewell. The magneto-optical birefringence and initial susceptibility of very dilute magnetic fluids. *J. Magn. Magn. Mat.*, 122:146–9, 1993.
- [Spo99] D. Spoliansky. *PhD thesis: Propriétés optiques et magnétiques des ferrolyotropes*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 1999.
- [SRT97] A. Sparenberg, G. L. J. A. Rikken, and B. A. Van Tiggelen. Observation of photonic magneto-resistance. *Phys. Rev. Lett.*, 79(4), 1997.

- [SSBV99] M. P. Silverman, W. Strange, J. Badoz, and I. A. Vitkin. Enhanced optical rotation and diminished depolarisation in diffusive scattering from a chiral liquid. *to appear in Optics Comm.*, 1999.
- [SSS99] F. M. Schulz, K. Stamnes, and J. J. Stamnes. Point group symmetries in electromagnetic scattering. *J. Opt. Soc. Am. A*, 16(4):853–65, 1999.
- [SW92] R. Schlessler and A. Weis. Light-beam deflection by Cesium vapor in a transverse-magnetic field. *Opt. Lett.*, 17(14):1015–1017, 1992.
- [tHNP98] G. W. 't Hooft, G. Nienhuis, and J. C. J. Paasschens. Comment on direction of optical energy flow in a transverse magnetic field. *Phys. Rev. Lett.*, 80(5):1114–1115, 1998.
- [Tig95] B. A. Van Tiggelen. Transverse Diffusion of light in Faraday-active media. *Phys. Rev. Lett.*, 75(3):422–24, 1995.
- [Tig98] B. A. Van Tiggelen. Optics of Diffuse Light in Nematic Liquid Crystals. *Mol. Cryst. Liq.*, 321:197–212, 1998.
- [TK94] B. A. Van Tiggelen and E. Kogan. Analogies between light and electrons: Density of states and Friedel's identity. *Phys. Rev. A*, 49(2):708–713, 1994.
- [TMH96] B. A. Van Tiggelen, R. Maynard, and A. Heiderich. Anisotropic Light Diffusion in Oriented Nematic Liquid Crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 77(4):639–42, 1996.
- [TMN96] B. A. Van Tiggelen, R. Maynard, and T. M. Nieuwenhuizen. Theory for multiple light scattering from Rayleigh scatterers in magnetic fields. *Phys. Rev. E*, 53(3):2881–2908, 1996.
- [TP72] E. A. Turov and M. P. Petrov. *Nuclear Magnetic Resonance in Ferro and Antiferromagnets*. Halsted, New York, 1972.
- [TTL93] B. A. Van Tiggelen, A. Tip, and A. Lagendijk. Dwell times for light and electrons. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 26:1731–48, 1993.
- [uV91] Š. Višňovský. Optics of magnetic multilayers. *Czech. J. Phys.*, 41(2):663–27, 1991.
- [VF93] N. V. Voshchinnikov and V. G. Farafonov. Optical properties of spheroidal particles. *Astrophysics and Space Science*, 204:19–86, 1993.
- [Wei94] W. S. Weiglhofer. On a medium constraint arising directly from Maxwell's equations. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 27:871–74, 1994.

- [Wie99] S. Wiebel. Investigations of magneto-optical scattering processes in absorbing media. Diplomarbeit LCMI, 1999.
- [Wig46] E. Wigner. Resonance reactions. *Phys. Rev.*, 70:606, 1946.
- [XHS90] T. K. Xia, P. M. Hui, and D. Stroud. Theory of Faraday rotation in granular magnetic material. *J. Appl. Phys.*, 67(6):2736–41, 1990.
- [YREG87] N. Yusuf, A. Roussan, and H. M. El-Ghanem. Determination of Faraday rotation in a ferrofluid. *J. Magn. Magn. Mat.*, 65:282–4, 1987.
- [YT56] C. F. Ying and R. Truell. Scattering of a plane longitudinal wave by a spherical obstacle in an isotropically elastic solid. *J. of Applied Phys.*, 27(9):1086–97, 1956.
- [ZK97] A. Zvezdin and V. Kotov. *Modern Magneto-optics and magneto-optical materials*. IOP Publishing, London, 1997.