



HAL
open science

Nouveaux développements de la technique de diffusion lumineuse : Substrats transparents, BRDF résolue spatialement, échantillons colorés

Myriam Zerrad

► **To cite this version:**

Myriam Zerrad. Nouveaux développements de la technique de diffusion lumineuse : Substrats transparents, BRDF résolue spatialement, échantillons colorés. Physique [physics]. Université Paul Cézanne - Aix-Marseille III, 2007. Français. NNT: . tel-00385428

HAL Id: tel-00385428

<https://theses.hal.science/tel-00385428>

Submitted on 19 May 2009

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

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

UNIVERSITÉ PAUL CÉZANNE - AIX MARSEILLE III

THÈSE

présentée et soutenue publiquement par

Myriam ZERRAD

le **23 mars 2007**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PAUL CÉZANNE – AIX MARSEILLE III

**Nouveaux développements de la technique de
diffusion lumineuse :
Substrats transparents, BRDF résolue spatialement,
échantillons colorés**

Spécialité : Électronique, Optronique et Systèmes
École doctorale : Physique et sciences de la matière

Composition du jury :

Rapporteurs :

Frédérique DE FORNEL
Mady ELIAS

Examineurs :

Delphine FAYE
Christophe GORECKI

Directeurs de thèse :

Carole DEUMIÉ
Michel LEQUIME

UNIVERSITÉ PAUL CÉZANNE - AIX MARSEILLE III

THÈSE

présentée et soutenue publiquement par

Myriam ZERRAD

le 23 mars 2007

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PAUL CÉZANNE – AIX MARSEILLE III

**Nouveaux développements de la technique de
diffusion lumineuse :
Substrats transparents, BRDF résolue spatialement,
échantillons colorés**

Spécialité : Électronique, Optronique et Systèmes
École doctorale : Physique et sciences de la matière

Composition du jury :

Rapporteurs :

Frédérique DE FORNEL
Mady ELIAS

Examineurs :

Delphine FAYE
Christophe GORECKI

Directeurs de thèse :

Carole DEUMIÉ
Michel LEQUIME

Remerciements

En premier lieu, je tiens à remercier tout particulièrement Mireille Commandré, responsable de l'équipe MAP² de l'Institut Fresnel de m'avoir si chaleureusement accueillie au sein de son équipe.

Je voudrais remercier Frédérique De Fornel, directrice de recherche à l'Institut Carnot de Bourgogne et Mady Elias, professeur à l'université Pierre et Marie Curie, rattachée à l'Institut des Nanosciences de Paris, d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail. Merci également à Delphine Faye, ingénieur au CNES et à Christophe Gorecki, directeur de recherche à Femto ST d'avoir participé à ce jury.

Je souhaiterais, par ces quelques lignes, exprimer toute ma gratitude à ceux qui ont encadré ce travail. Je parle bien sûr de Claude Amra, directeur de l'Institut Fresnel, Carole Deumié et Michel Lequime, professeurs à l'École Centrale de Marseille. Je tiens à les remercier pour la confiance qu'ils m'ont accordée, pour leur compétence, leur patience, ainsi que pour la disponibilité dont ils ont su faire preuve malgré leurs emplois du temps de ministre. Par ailleurs, je leur suis extrêmement reconnaissante d'avoir su me faire profiter de leur expérience et leur polymathie à de si nombreuses reprises. Pour toutes ces raisons, et bien d'autres encore, travailler avec eux a été un vrai plaisir.

Je remercie tout particulièrement celle qui a été la plus proche de moi (1,53 m en moyenne) pendant ces années, Gaëlle Georges, avec qui j'ai pu partager de nombreuses discussions, un même sens de l'humour et tant de bons moments.

J'adresse également mes remerciements à Jean-Pierre Spinelli pour le nombre incalculable de pièces toutes plus alambiquées les unes que les autres qu'il a réalisées en un temps record et à Corinne Pacifico, qui m'a toujours apporté tout son soutien empathique, avec le sourire de surcroît.

Un énorme merci à Jérémie Capoulade, David Gachet, Sébastien Michel et Benjamin Leroy pour avoir été là en toutes circonstances, pour n'avoir pas renoncé à l'idée de me rendre sociable et, bien sûr, pour avoir supporté mes bavardages incessants. Je voudrais également adresser toute ma reconnaissance à Josiane Martin et Laure Stéfanini pour leur efficacité et leur sympathie, Patrick Ferrand, Franck Billard, Laurent Arnaud et Cihan koc pour toute l'aide et les bons conseils qu'ils ont pu m'apporter au cours de ces trois années.

Merci également à l'ensemble des doctorants et permanents du laboratoire, aux nouvelles venues Nelly Bardet et Laure Siozade que j'ai déjà mis à contribution pour préparer l'oral et à l'ensemble des personnes que j'aurai pu malencontreusement, et je m'en excuse, oublier.

Mes derniers remerciements vont à l'ensemble de ma famille pour leur aide et leur soutien, avec une pensée émue pour mes grand-tantes sans qui rien n'aurait été possible et à qui je dédie cette thèse.

Sommaire

Introduction générale	1
<i>Partie A : Caractérisation de rugosités de surface par diffusion lumineuse : Cas des substrats transparents</i>	3
Sommaire	5
Introduction	9
Chapitre I : La caractérisation par diffusion lumineuse : Principes et motivations	11
I. Caractérisation de rugosités de surface par diffusion lumineuse : cas général	13
II. Projet DACO	20
Chapitre II : Les difficultés liées à la caractérisation des substrats transparents	25
I. Étape 1 : contribution de la face 0	27
II. Étape 2 : contribution de la face 1	28
III. Bilan des contributions de chaque face	29
Chapitre III : Méthode à filtrage d'étendue	31
I. Principe	33
II. Approche théorique	34
III. Application et expérience	39
Chapitre IV : Méthode Pile et Face	47
I. Principe	49
II. Facteur de pondération de chaque interface	50
III. Utilisation	64
IV. Efficacité de la méthode	65
V. Applications	72
VI. Comparaison à la méthode à filtrage d'étendue	74
Chapitre V : Comparaison avec la microscopie optique et en champ proche	75
I. Techniques de microscopie utilisées	77
II. Comparaison microscopie / diffusion lumineuse : Principe	79
III. Application	87
Conclusion	97
<i>Partie B : Conception et réalisation d'un analyseur optique de surface</i>	99
Sommaire	101
Introduction	105
Chapitre I : Principe de base ou la combinaison de l'inversion de l'axe mobile avec l'utilisation d'un imageur CCD	107
I. Inversion de l'axe mobile	109
II. Pourquoi utiliser un imageur ?	117
III. Simulations numériques	119
Chapitre II : D'un point de vue plus pratique	137
I. Choix du matériel	139
II. Premiers résultats expérimentaux	150
Chapitre III : Perspectives	163
I. Évolutions matérielles	165
II. Évolutions logicielles	168
III. Évolutions conceptuelles	169
Conclusion	171
<i>Partie C : Caractérisation par diffusion lumineuse de matériaux colorés</i>	173
Sommaire	175
Introduction	179
Chapitre I : Activité microsphères multicouches	181

I.	Rappels de quelques résultats théoriques : diffusion par des sphères multicouches _____	183
II.	Réalisation de microsphères _____	185
Chapitre II :	Quantification des effets visuels _____	189
I.	Mise au point d'un appareil de mesure plus adapté ou spectrodiffractomètre _____	191
II.	Interprétation des mesures _____	193
Chapitre III :	Applications à des programmes d'étude spécifiques _____	203
I.	Caractérisation des sphères multicouches réalisées au laboratoire _____	205
II.	Caractérisation de poudres photochromiques _____	208
Conclusion	_____	217
Conclusion générale	_____	219
Annexes	_____	223
Calcul du taux de recouvrement	_____	225
Poudres interférentielles : Première étude	_____	237
Références et bibliographie	_____	249

Introduction générale

L'étude de la diffusion électromagnétique en champ lointain fournit des techniques efficaces d'analyse sans contact des surfaces et des volumes dans les composants optiques, milieux aléatoires ou milieux complexes¹⁻¹⁴ ; elle permet également de créer et/ou de contrôler une source de lumière spécifique par structuration de la matière. L'activité diffusion lumineuse de l'équipe *MAP*² (Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance) de l'Institut Fresnel date des années 80, et a longtemps été motivée par la minimisation des pertes dans les composants multicouches interférentiels^{7,8,15}. Elle est aujourd'hui associée à de nouvelles thématiques initiées ces dernières années : couleur, cosmétique, microélectronique, cognitif, furtivité, biomédical, imagerie en milieu diffusant...

Au cours de ces années, l'équipe a développé des outils théoriques et expérimentaux conséquents. Des codes électromagnétiques approchés et rigoureux ont été écrits pour interpréter et extrapoler les résultats des mesures^{7,16-20}. Ces simulations sont réalisées dans le cas de diffusion de surfaces et volumes faiblement ou fortement diffusants, de composants multicouches, et de microsphères multicouches. Parallèlement, d'importants moyens expérimentaux ont été associés à cette thématique. En particulier, un diffusomètre angulaire multisources laser, entièrement automatisé, est l'instrument support de cette activité^{5,6}. Cet instrument est également utilisable dans une configuration spécifique pour réaliser des mesures ellipsométriques, et permettre l'analyse d'état de polarisation des ondes diffusées^{21,22}. Un microscope à force atomique et un profilomètre optique complètent ces installations, pour permettre des analyses multiéchelles des composants²³.

Toutefois, cette technique est encore perfectible.

En premier lieu, un verrou restait à lever pour la caractérisation des substrats transparents. En effet jusqu'ici, la technique de diffusion en champ lointain a toujours été limitée au cas des surfaces opaques afin d'éliminer la diffusion par la seconde face. Des techniques alternatives existent (microscopie optique, champ proche, profilomètre...), mais souffrent d'autres limitations comme le positionnement de la bande passante de mesure qui ne correspond pas à celle de l'application recherchée ou la difficulté d'en déduire des paramètres correspondant à des conditions réelles d'utilisation (surface éclairée de quelques millimètres, contre analyse très localisée en microscopie).

Dans ce contexte nous avons été partie prenante d'un contrat européen de type *CRAFT* dénommé *DACO* et ayant pour objectif la réalisation et la commercialisation de laser femtoseconde compacts. Notre contribution a concerné la caractérisation de substrats super-polis transparents dont les pertes normalisées ne devaient pas excéder quelques 10^{-6} afin de ne pas réduire le gain laser. Pour atteindre cet objectif, il nous a fallu lever le verrou de la caractérisation des substrats transparents. Cela a été réalisé grâce à 2 méthodes. La première est basée sur un principe de « filtrage d'étendue » (en collaboration avec l'équipe *RCMO*, Recherche en matériaux, technologies et composants de Couches Minces Optiques) et la seconde sur le « retournement » de l'échantillon. Ces deux techniques seront décrites et validées dans la première partie de ce manuscrit.

Dans un second temps, il faut souligner que la technique de diffusion lumineuse donne accès à des paramètres statistiques représentatifs des propriétés spatiales des composants. Toutefois ces paramètres correspondent à des valeurs moyennées sur la zone de mesure, ou surface éclairée, qui est couramment de quelques millimètres sur l'échantillon. Une analyse locale des propriétés spatiales nécessite d'une part de réduire la surface éclairée, et d'autre part de parcourir la surface de l'échantillon pour une analyse point par point, pour réaliser une cartographie. Ceci est réalisable, mais nécessite des temps d'acquisition considérables. Par ailleurs, il est difficile dans ces conditions de séparer la contribution des effets de rugosité intrinsèque (topographie continue et dérivable...), de celle des défauts localisés distribués à faible densité sur les optiques de précision. En effet, avec la qualité des outils de polissage

mis en œuvre aujourd'hui, les niveaux de diffusion couramment mesurés n'excèdent pas quelques 10^{-6} du flux incident, et relèvent plus souvent de la présence de nano-piqûres ou poussières..., que d'une topographie intrinsèque. Dans ces conditions, les rugosités affichées (une fraction d'Angström) pour les optiques de qualité ultime ne sont pas toujours réalistes, car intègrent ces 2 composantes simultanément (topographie intrinsèque et défauts localisés). Ce problème est d'autant plus critique qu'il est rare qu'un verre poli ne présente pas au moins un nano-défaut dans un champ de 1 mm^2 . Nous avons alors décidé de mettre en œuvre un outil nouveau de caractérisation localisée de la diffusion qui permettra d'accroître encore les possibilités de mesures.

Nous avons ainsi conçu un analyseur optique de surface. Ce nouvel appareil est constitué d'un système d'éclairage spécialement dédié et d'une chaîne de mesure dont l'élément principal est une caméra *CCD*. Il permet une analyse de toute la surface éclairée, avec une résolution variable, et en obtenant pour chaque point de la surface l'indicatrice de diffusion. On pourra alors faire des analyses locales de la rugosité, et réaliser des mesures d'échantillons même en présence de contaminants, en distinguant la diffusion par la rugosité de celle par les contaminants. La deuxième partie de cette thèse présentera la conception et la réalisation de ce nouvel outil de caractérisation.

Enfin pour terminer, s'il est vrai qu'historiquement l'activité « Diffusion Lumineuse » du laboratoire s'est essentiellement consacrée à la caractérisation de matériaux faiblement diffusants, elle s'est depuis peu intéressée à la réalisation et à l'étude de matériaux fortement hétérogènes et plus particulièrement aux matériaux à effets visuels. La participation de l'activité « Diffusion Lumineuse » au GDR « Couleur et matériaux à effets visuels » lui a permis d'initier des contacts avec des sociétés de cosmétique, ce qui nous a sensibilisé aux problèmes de caractérisation des poudres optiques, mais aussi à leur synthèse et leur fabrication. Après avoir appliqué toute son expertise dans le domaine de la diffusion pour la détermination des paramètres optiques de poudres, l'équipe s'est intéressé à l'étude et la réalisation de poudres à gabarit optique pré-déterminé (fond de teint, protection solaire...) et devant fonctionner sans absorption. C'est pourquoi des poudres constituées de microsphères recouvertes de façon concentrique par des empilements de couches minces ont été considérées. La synthèse des composants a pu s'appuyer sur des codes basés sur la théorie de Mie qui ont eux aussi demandé des efforts notables de modélisation, et qui fonctionnent maintenant pour des systèmes multicouches transparents ou métalliques. Ce travail a été réalisé durant la thèse de P. Voarino²⁴. Le problème de la réalisation de ces composants a été abordé. Il a fallu innover en mettant en mouvement les microsphères afin de garantir un dépôt concentrique uniforme sous vide. Ce mouvement et la géométrie du bâti associée nous a conduits à sélectionner la technologie de pulvérisation sous vide.

Le but de ces travaux étant de créer des poudres présentant des effets colorés, nous avons naturellement été confrontés à la problématique de la caractérisation des variations de couleur. Pour cela, nous avons développé un spectro-diffusomètre en lumière blanche, qui donne accès simultanément à la mesure angulaire et spectrale de la diffusion pour une analyse rapide et donc systématique de la couleur angulaire. Ces travaux seront détaillés dans la troisième partie de ce manuscrit.

Partie A :
Caractérisation de
rugosités de surface
par diffusion
lumineuse : Cas des
substrats
transparents

Sommaire

Introduction	9
Chapitre I : La caractérisation par diffusion lumineuse : Principes et motivations	11
I. Caractérisation de rugosités de surface par diffusion lumineuse : cas général	13
1. Principe	13
2. Outil de mesure	15
a. Les sources lumineuses	16
b. Le porte échantillon.....	17
c. Le dispositif de détection.....	17
d. Dispositifs réduisant la lumière parasite	18
e. Étalonnage	18
f. Mesure à vide.....	19
g. Diffusion globale.....	20
II. Projet DACO	20
1. Présentation du projet	20
2. Rôle de l'Institut Fresnel.....	22
Chapitre II : Les difficultés liées à la caractérisation des substrats transparents	25
I. Étape 1 : contribution de la face 0	27
II. Étape 2 : contribution de la face 1	28
III. Bilan des contributions de chaque face.....	29
Chapitre III : Méthode à filtrage d'étendue.....	31
I. Principe.....	33
II. Approche théorique	34
1. Définition du domaine de validité.....	34
2. Taux de recouvrement.....	37
III. Application et expérience	39
1. Échantillon opaque.....	39
2. Échantillon transparent	40
Chapitre IV : Méthode Pile et Face.....	47
I. Principe.....	49
II. Facteur de pondération de chaque interface.....	50
1. Définition	51
2. Calcul analytique	51
a. Réflexions multiples	54
b. Méthode des admittances	56
c. Comparaison.....	58
d. Autre méthode.....	59
e. Conséquences	61
3. Exemples numériques	62
III. Utilisation	64
IV. Efficacité de la méthode.....	65
V. Applications.....	72
VI. Comparaison à la méthode à filtrage d'étendue	74
Chapitre V : Comparaison avec la microscopie optique et en champ proche.....	75
I. Techniques de microscopie utilisées.....	77
1. Profilomètre optique Talysurf.....	77
2. Microscopie à force atomique.....	78
II. Comparaison microscopie / diffusion lumineuse : Principe	79
1. Analyse quantitative d'images de surfaces obtenues par microscopie.....	79
2. Correspondance avec la diffusion lumineuse.....	84
III. Application	87
1. Talysurf.....	87
a. $L = 360 \mu\text{m}$, $N = 1024$ points.....	87
b. $L = 900 \mu\text{m}$, $N = 1024$ points	89
c. Comparaison avec la diffusion lumineuse.....	91
2. Mesures AFM	92
Conclusion.....	97

<i>Annexes</i>	223
Calcul du taux de recouvrement.....	225
<i>Références et bibliographie</i>	249

Introduction

Dans cette partie, nous présenterons les principes de bases de la caractérisation de rugosités de surface par diffusion lumineuse. Cette technique ayant déjà fait ses preuves dans le cas des composants opaques, nous verrons pourquoi elle ne s'applique pas à la caractérisation de substrats transparents et dans quelles conditions nous avons été mis face à ce problème.

Nous présenterons ensuite les deux méthodes mises en œuvre pour permettre la caractérisation par diffusion lumineuse des substrats transparents épais, la première reposant sur un principe de « filtrage d'étendue » et la deuxième sur le « retournement » de l'échantillon.

Pour finir, nous confronterons ces deux méthodes et nous les comparerons aux résultats obtenus grâce aux techniques de microscopie optique et en champ proche.

Chapitre I :
La caractérisation par
diffusion lumineuse :
Principes et motivations

I. Caractérisation de rugosités de surface par diffusion lumineuse : cas général

1. Principe

Dans le cas où les rugosités sont faibles devant la longueur d'onde de la lumière incidente, une relation simple issue de la théorie électromagnétique du premier ordre ^{7,8} permet de déterminer les propriétés de la surface à partir d'une mesure angulaire de la lumière diffusée par cette même surface :

$$I(\theta, \phi) = C^\pm(\theta, \phi) \gamma(\theta, \phi) \quad (1)$$

où θ est l'angle mesuré à partir de la normale à l'échantillon et ϕ l'angle polaire, comme indiqué en figure 1.

Dans cette expression, $I(\theta, \phi)$ désigne l'intensité diffusée dans une direction (θ, ϕ) de l'espace (Figure 1), ou le flux diffusé par unité d'angle solide, normé au flux incident. On utilise aussi souvent la notion de *Bidirectional Reflectance Distribution Function* (BRDF), que l'on définit à l'aide de la relation:

$$I(\theta, \phi) = \text{BRDF}(\theta, \phi) \cdot \cos \theta \quad (2)$$

et qui a donc les dimensions de l'inverse d'un angle solide (*stéradian*⁻¹).

Dans la nomenclature américaine, l'indicatrice de diffusion $I(\theta, \phi)$ est souvent appelée Angle-Resolved-Scattering (ARS).

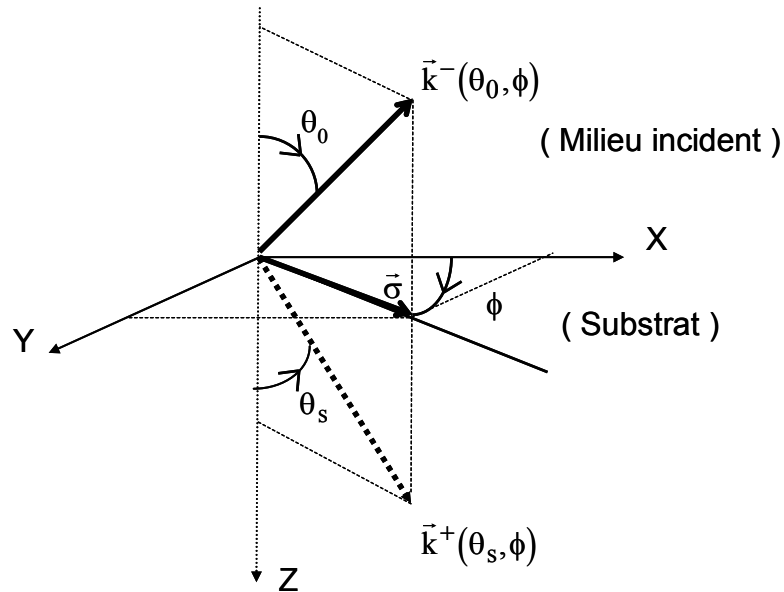


Figure 1 : Définition des angles de diffusion θ et ϕ .

En Figure 1 les vecteurs d'onde de la lumière diffusée en réflexion et en transmission sont respectivement notés \vec{k}^- et \vec{k}^+ , et leur projection tangentielle sur le plan Oxy est la pulsation spatiale $\vec{\sigma} = 2\pi\nu$, avec ν la fréquence spatiale. On a donc :

$$\vec{\sigma} = \frac{2\pi n_0}{\lambda} \sin \theta \begin{Bmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{Bmatrix} = 2\pi\nu \quad (3)$$

$$\vec{k}^- = \frac{2\pi n_0}{\lambda} \begin{Bmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ -\cos \theta \end{Bmatrix} \quad (4)$$

et

$$\vec{k}^+ = \frac{2\pi n_s}{\lambda} \begin{Bmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \end{Bmatrix} \quad (5)$$

où n_0 est l'indice du milieu incident et λ , la longueur d'onde d'éclairage.

Le terme optique $C^\pm(\theta, \Phi)$ donné en relation (1) est un facteur optique prenant en compte l'indice des matériaux, la polarisation, la longueur d'onde d'illumination et les angles d'incidence et de reprise. Pour une incidence normale et un faisceau non polarisé, les facteurs C^+ et C^- sont définis en réflexion et transmission comme suit:

$$C^-(\theta, \phi) = C^-(\theta) = \frac{1}{2} \left(\frac{2\pi n_0}{\lambda} \right)^2 \left[\cos^2 \theta_0 |q_s|^2 + |q_p|^2 \right] \quad (6)$$

$$C^+(\theta, \phi) = C^+(\theta) = \frac{1}{2} \left(\frac{n_s^3}{n_0} \right) \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 \left[\cos^2 \theta_s |q_s|^2 + |q_p|^2 \right] \quad (7)$$

Avec:

$$\begin{aligned} q_s(\theta) &= j \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \cdot 2n_0 (n_0 - n_s) (n_0 \cos \theta_0 + n_s \cos \theta_s)^{-1} \\ q_p(\theta) &= j \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \cdot 2n_0 (n_0 - n_s) (n_0 / \cos \theta_0 + n_s / \cos \theta_s)^{-1} \end{aligned} \quad (8)$$

En outre, le spectre de rugosité introduit en relation (1) est défini par :

$$\gamma(\vec{\sigma}) = \frac{4\pi^2}{S} \left| \hat{h}(\vec{\sigma}) \right|^2 \quad (9)$$

où \hat{h} est la transformée de Fourier du profil $h(\vec{r})=h(x,y)$ de la surface, S est la surface éclairée sur l'échantillon. Ce spectre contient toute l'information accessible en champ lointain sur la topographie de la surface.

A partir de l'équation (1), on peut déduire aisément d'une mesure d'indicatrice de diffusion, le spectre de rugosité de la surface mesurée. Ceci étant fait, on peut alors calculer la rugosité δ ou hauteur quadratique moyenne, aussi appelée rugosité *rms* (*root mean square*) qui est définie par :

$$\delta^2 = \frac{1}{S} \int_S h^2(\vec{r}) d\vec{r} = \int_{\vec{\sigma}} \gamma(\vec{\sigma}) d\vec{\sigma} \quad (10)$$

avec $d\vec{r} = dx dy$ et $d\vec{\sigma} = d\sigma_x d\sigma_y$.

2. Outil de mesure

Le laboratoire a développé un diffusomètre^{5,6} (cf. Figure 2) avec lequel nous pouvons réaliser des mesures de diffusion angulaire, la dynamique de mesure étant de l'ordre de 10^7 dans le visible, relativement à un échantillon lambertien. Cet appareil en constante évolution permet, à l'aide de 8 axes motorisés, l'enregistrement automatique dans tout l'espace de l'indicatrice de diffusion, pour des longueurs d'onde discrètes situées entre l'ultra violet (325 nm) et l'infra rouge moyen (10,6 μm).

Dans le cadre du projet européen DACO que nous détaillerons plus tard (cf partie Partie A :Chapitre I :II), nous avons installé ce dispositif dans une salle blanche de classe 100 000. Ceci permet d'éliminer toute lumière parasite due à la présence d'éventuelles poussières en suspension dans l'air. L'échantillon est éclairé par un faisceau laser, sous incidence normale ou oblique. Le diamètre de la zone éclairée au niveau de l'échantillon est de l'ordre de 3 mm ; cette surface ne doit pas être trop faible si l'on veut extraire des informations précises concernant la distribution statistique des défauts au niveau de l'échantillon.

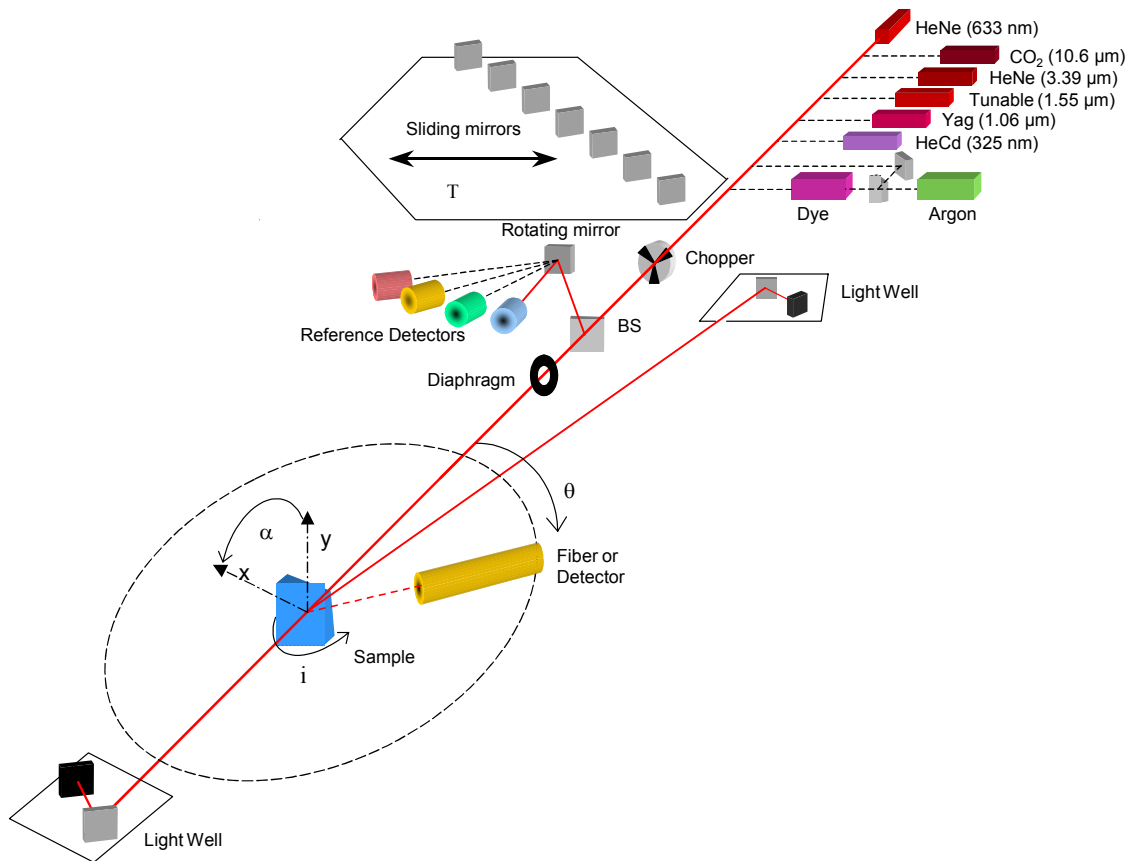


Figure 2 : Schéma de principe du diffusomètre

Présentons maintenant plus en détails les différents éléments de cet appareillage de mesure, ainsi que sa procédure d'étalonnage.

a. Les sources lumineuses

Plusieurs lasers sont disponibles, selon la fenêtre fréquentielle optique requise :

- Un laser *HeCd*, qui émet à $0,325 \mu\text{m}$ avec une puissance de 7 mW non polarisée.
- un laser à Argon, qui délivre une puissance toutes raies de 5 W avec une polarisation verticale. Il possède 8 raies discrètes entre $0,458 \mu\text{m}$ et $0,5145 \mu\text{m}$.
- un laser à colorant (Rhodamine 6G ou Styril 9), qui émet dans deux zones de longueurs d'onde comprises d'une part entre $0,57 \mu\text{m}$ et $0,64 \mu\text{m}$, et d'autre part entre $0,8 \mu\text{m}$ et $0,9 \mu\text{m}$. Ce laser est pompé par le laser Argon. La puissance de sortie varie de 50 mW à 1,3 W, selon la longueur d'onde sélectionnée. La lumière émise est polarisée verticalement.
- un laser *HeNe* qui émet à $0,6328 \mu\text{m}$ avec une puissance de 4 mW. La lumière émise n'est pas polarisée.
- un autre laser *HeNe* qui émet à $3,39 \mu\text{m}$ avec une puissance de 8 mW. La polarisation est verticale.
- un laser *YAG* qui émet à $1,064 \mu\text{m}$ avec une puissance maximale de 40 mW. La lumière émise n'est pas polarisée. Ce *YAG* est pompé par diode laser.

- un laser CO_2 qui émet à $10,6 \mu\text{m}$ avec une puissance de 10 W. La polarisation est verticale.

Chacune de ces sources est sélectionnée au moyen d'une série de miroirs fixés sur une platine de translation (cf. Figure 2).

b. Le porte échantillon

Comme indiqué sur la Figure 3, l'échantillon est fixé dans un plan vertical sur deux platines de translation (mouvements x et y).

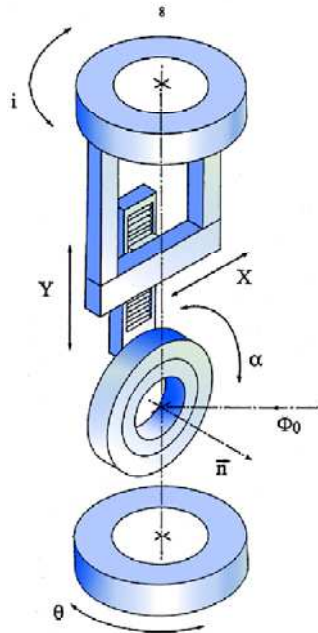


Figure 3 : Rotation (α) et translations (X, Y) de l'échantillon

Les axes des platines en θ (pour la rotation du détecteur) et en i (pour le réglage de l'incidence) sont confondus.

Ils coupent l'axe horizontal de la platine en α (pour la rotation de l'échantillon) qui, en incidence normale ($i = 0$), se superpose à la direction de propagation du faisceau incident

Ces translations permettent d'étudier l'uniformité de la rugosité sur toute la surface de l'échantillon. Celui-ci est également fixé sur une platine de rotation qui lui permet de tourner autour de sa normale (mouvement α). Cette rotation permet d'accéder à l'anisotropie de la rugosité et, dans le cas d'un éclairage sous incidence normale, à la dépendance polaire de la diffusion dans tout l'espace.

c. Le dispositif de détection

Deux voies de mesure sont utilisées dans le dispositif, à savoir une voie de référence et la voie de mesure de l'intensité diffusée proprement dite. Afin de limiter l'effet des rayonnements parasites, un modulateur mécanique est placé sur le faisceau incident. Les mesures se font donc par l'intermédiaire de détecteurs synchrones. Excepté pour les mesures à $10,6 \mu\text{m}$, tous les faisceaux sont modulés mécaniquement à la fréquence de 274 Hz. Pour l'infra rouge moyen, la modulation se fait à haute fréquence afin de réduire la contribution des flux parasites liés à l'émissivité thermique ambiante à 300 K.

La voie de référence provient du prélèvement d'une faible partie du faisceau modulé incident au moyen d'une lame séparatrice. Ce faisceau prélevé est dirigé (Figure 2) sur un photodétecteur. La lame séparatrice est choisie prismatique afin d'éliminer toute interférence par réflexions multiples au niveau des faisceaux transmis et réfléchi. Cette voie de référence permet de s'affranchir des fluctuations de la source, le signal utile corrigé étant alors le rapport entre la tension de la voie de mesure et la tension de la voie de référence.

Pour les mesures dans le visible jusqu'au proche infrarouge, la lumière diffusée par l'échantillon est collectée par une fibre optique montée sur un bras mobile de longueur 1 mètre (mouvement en θ). Cette fibre est reliée à un détecteur ; ceci constitue la voie de mesure. Pour les mesures dans l'infrarouge moyen, le détecteur est fixé directement sur le bras mobile.

Le détecteur utilisé pour mesurer chacun des signaux précédents dépend de la longueur d'onde employée. Nous avons le choix entre :

- un photomultiplicateur ou une photodiode au silicium pour les longueurs d'onde situées dans le visible (le choix s'effectue en fonction du niveau de diffusion à mesurer),
- une photodiode au germanium pour les longueurs d'onde situées dans le proche infrarouge,
- des détecteurs InSb et HgCdTe pour les longueurs d'onde situées dans l'infra rouge moyen, respectivement à 3,39 μm et 10,6 μm .

d. Dispositifs réduisant la lumière parasite

Afin que les mesures de très faibles flux ne soient pas perturbées par les rayonnements parasites, des puits à lumière sont disposés sur les faisceaux spéculaires transmis et réfléchi afin de les absorber.

e. Étalonnage

Pour que l'appareil délivre une valeur absolue de l'intensité diffusée par un échantillon, il faut l'étalonner, c'est-à-dire déterminer la constante C_e qui permet de relier le signal mesuré $V(\theta, \Phi)$ à la caractéristique choisie pour quantifier la diffusion, à savoir l'intensité $I(\theta, \Phi)$.

Lors d'une opération de caractérisation d'un échantillon, nous enregistrons à tout instant le rapport des tensions délivrées dans chaque direction (θ, α) par les détecteurs de mesure et de référence, c'est-à-dire le rapport η défini par :

$$\eta(\theta, \alpha) = V(\theta, \alpha) / V_{\text{ref}}(\theta, \alpha) \quad (11)$$

L'intensité diffusée est alors donnée par :

$$I(\theta, \alpha) = C_e \cdot \eta(\theta, \alpha) \quad (12)$$

La constante d'étalonnage C_e est déterminée à l'aide d'un échantillon étalon de type lambertien dont la diffusion totale D_e est connue, par mesure de l'intensité diffusée dans un plan et application de la relation :

$$C_e = \frac{D_e}{\iint_{\theta, \phi} \eta_e(\theta, \alpha) \sin \theta d\theta d\phi} \quad (13)$$

où η_e désigne les valeurs prises par le rapport mesure/référence dans le cas de cet étalon.

La valeur de la diffusion totale de cet échantillon a été déterminée par le *U.S National Institute of Standards and Technology*.

Elle est supérieure à 95% dans un domaine de longueurs d'onde allant de 0,4 à 2,5 μm . Elle vaut précisément 0,998 à 0,633 μm .

Notons enfin que la valeur de la diffusion de cet échantillon étalon n'est pas garantie dans l'infrarouge moyen (10,6 μm), ce qui peut être une source de difficultés dans le cas où l'on souhaite réaliser des mesures précises à ces longueurs d'onde.

f. Mesure à vide

Comme indiqué plus haut, pour mettre en évidence la détectivité et donc la dynamique de mesure du diffusomètre, on effectue une mesure en l'absence d'échantillon. C'est la réponse à vide du système.

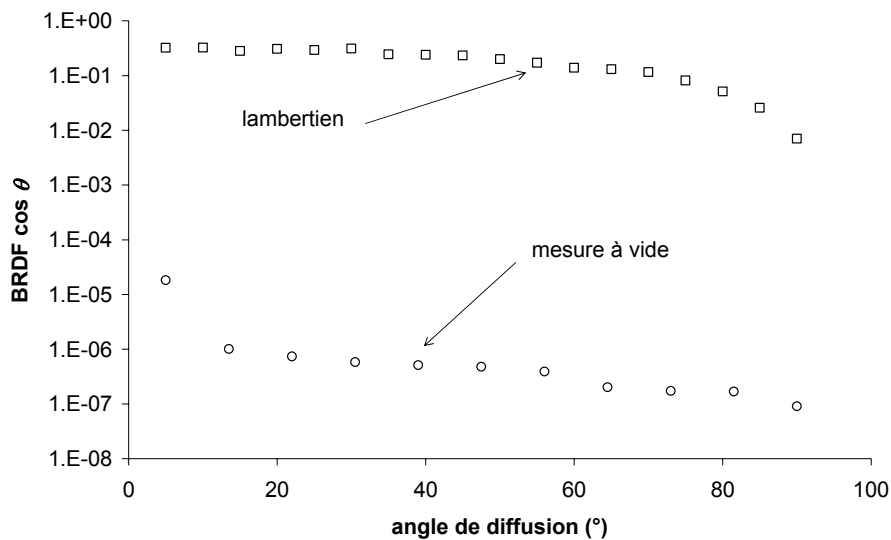


Figure 4 : Dynamique de mesure du diffusomètre

En dehors du voisinage des faisceaux spéculaires (0° et 180°), le seuil de détection est lié au bruit d'obscurité du détecteur; l'accroissement du signal aux alentours de 0° et 180° est dû à la présence de lumière parasite près des faisceaux spéculaires, ainsi qu'à la section gaussienne des faisceaux utilisés.

C'est à partir de cette réponse à vide que l'on peut fixer les angles minimum et maximum de mesure de la diffusion, en s'assurant que les flux mesurés dans ces domaines angulaires sont dus aux rugosités de surface et non à la divergence, diffusion ou diffraction du faisceau incident.

Notons que la mesure à vide est ici comparée à la mesure de l'échantillon lambertien (Figure 4), donnée par : $I(\theta) = \frac{\cos \theta}{\pi}$. C'est cette comparaison qui définit ici notre dynamique.

g. Diffusion globale

Enfin, la diffusion globale D d'un échantillon est obtenue par intégration dans tout l'espace de sa mesure de diffusion angulaire. Elle est de l'ordre de quelques 10^{-6} du flux incident pour des surfaces nues superpolies (0,2 à 0,3 nm de rugosité dans le visible). On utilise souvent la notion de *TIS* pour désigner cette diffusion globale.

Ce *Total Integrated Scattering* est défini par :

$$TIS = \frac{D}{R} = \left(4\pi m_0 \cos i_0 \frac{\delta}{\lambda} \right)^2 \quad (14)$$

où R désigne le facteur de réflexion de l'échantillon.

La formule (14) est issue d'une théorie scalaire^{14,25} basée sur une approximation du profil rugueux par une fonction en escalier. Elle est ici donnée pour des surfaces polies, c'est à dire après un développement limité au premier ordre. Il s'agit d'une expression plus simplifiée que celles données par la théorie perturbative, puisqu'elle n'adresse que la diffusion globale. On peut cependant souligner son côté pratique qui permet d'exprimer la rugosité à partir d'une mesure directe du flux global (cas des sphères intégrantes). On notera la présence de la rugosité apparente $\delta \cos i_0$ avec i_0 l'angle d'éclairement. Par ailleurs, on reconnaît le facteur δ/λ qui traduit l'efficacité de la diffusion.

De façon générale, notre instrument donne directement accès à la mesure de l'indicatrice de diffusion pour la longueur d'onde d'intérêt, d'où l'on peut extraire le spectre de rugosité de l'échantillon. Toutefois cette technique de caractérisation en champ lointain s'applique essentiellement au cas des surfaces uniques, donc polies à partir d'un matériau opaque; le cas des substrats transparents est plus délicat et nous a motivé pour le travail présenté par la suite.

II. Projet DACO

1. Présentation du projet

DACO est l'acronyme de « Development and Application of Compact femtosecond Oscillator ». Ce projet fait partie d'un contrat européen de type CRAFT, ou contrat de recherche coopérative financé par l'Union Européenne dans le but de favoriser les échanges entre différents laboratoires et entreprises de l'Union Européenne.

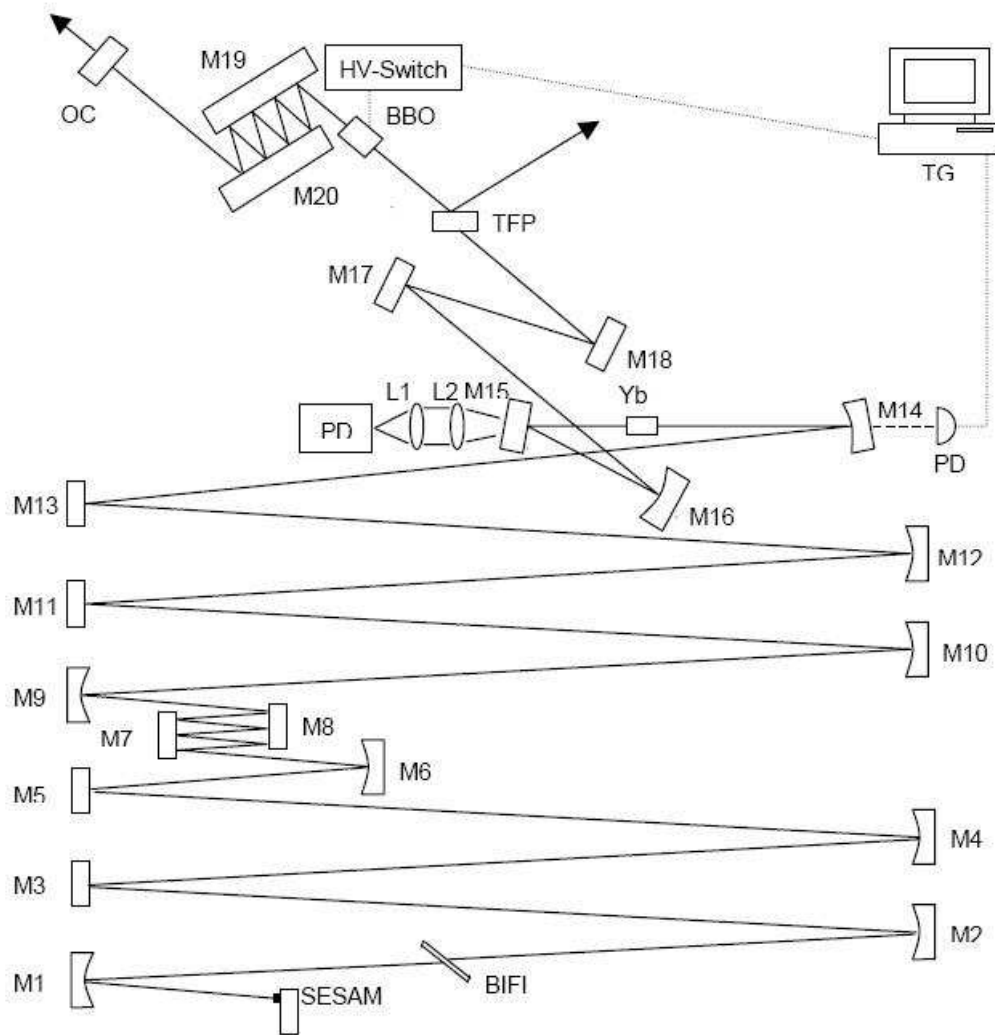
➤ Les participants au projet étaient :

- Polytechnico di Milano (Italie)
- WZW - Optic A.G. (Suisse)
- Universität Karlsruhe (Allemagne)
- Institut Fresnel (France)
- Optotec S.P.A.(Italie)
- Nanolayers Optische Beschichtungen GMBH (Allemagne)
- High Q Laser Production GMBH (Autriche)

➤ Les principaux objectifs de ce projet étaient:

- Le développement de lasers femtosecondes à verrouillage de phase, pompés par diode, particulièrement compacts, stables, à bas coût et robustes, pouvant générer

des impulsions énergétiques suffisamment puissantes pour des applications de micro usinage laser (figures 5 et 6).



Schematic of the diode pumped cavity dumped Yb:glass laser oscillator; PD, pump-diode; L1, L2, achromatic lenses; Yb, anti reflection coated Yb:glass laser medium; BIFI birefringent filter; SESAM, semiconductor saturable absorber mirror; OC, output coupler 0.3 percent transmittance; M1, ROC 300mm high reflector; M2, M4, M10, M12, ROC1000mm dispersive mirrors; M6, M9, ROC500mm high reflectors; M3, M5, M7, M8, M11, M13, M17, M18, M19, M20, plane dispersive mirrors; M16, ROC200mm dispersive mirror; M14, ROC150mm dispersive mirror; M15, dichroic mirror; TFP, thin film polariser; BBO Pockels cell; HV-Switch, high voltage switch; TG, trigger generator; PD, fast photo diode.

Figure 5 : Schéma de principe du laser développé dans le cadre du projet DACO

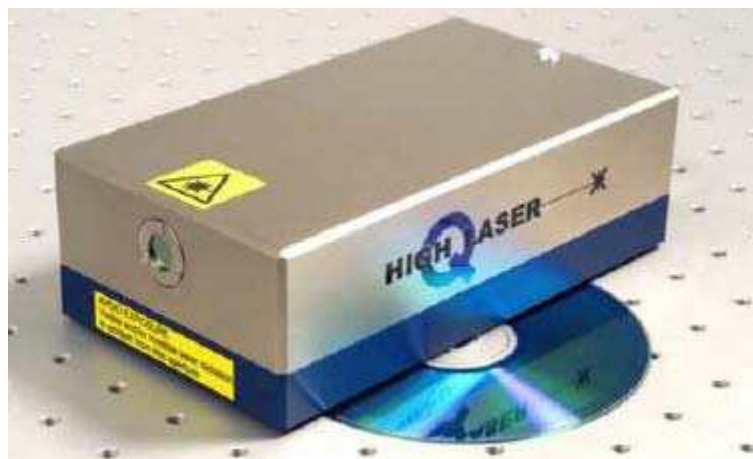


Figure 6 : Laser développé dans le cadre du projet DACO

Le développement de nouveaux composants optiques était nécessaire pour la réalisation d'un tel laser. Ceci inclut la réalisation de substrats superpolis et de traitements multicouches (pulvérisation par faisceau d'ions), atteignant des propriétés de réflectivité et de dispersion sans précédent.

- L'utilisation du système laser ainsi développé pour une application spécifique : Le micro usinage de guides d'onde et de systèmes photoniques à l'intérieur de matériaux dont le volume est transparent ; ceci en vue d'applications originales dans les télécoms optiques.

Il faut préciser que la réussite de ce projet était liée à l'émergence de la start-up High Q Laser dont le marché principal est la conception, fabrication et commercialisation de lasers femtoseconde compacts.

2. Rôle de l'Institut Fresnel

L'institut Fresnel est intervenu dans la phase 2 du programme en tant qu'expert en métrologie. En effet, le laser à réaliser étant un laser de faible encombrement, les miroirs constituant la cavité laser sont petits (12,54 mm de diamètre) et très proches les uns des autres. De ce fait, la diffusion par les miroirs va très vite devenir gênante. En outre, la puissance du laser est en première approche, inversement proportionnelle aux pertes par diffusion des miroirs. Il est donc important de pouvoir caractériser précisément les rugosités des miroirs pour pouvoir quantifier ces pertes. Or il était nécessaire de pouvoir mesurer non seulement les miroirs, mais aussi les substrats sur lesquels sont déposés les miroirs, la rugosité dépendant à la fois de la qualité du polissage du substrat et de celle du dépôt. Les lasers émettent à la longueur d'onde de 1,056 μm . Cependant, à cette longueur d'onde, la détectivité des récepteurs à notre disposition n'est pas suffisante pour caractériser des verres superpolis, de sorte que nous sommes contraints d'effectuer cette caractérisation dans le visible. Par ailleurs, les miroirs et les substrats étant transparents dans le visible, nous avons été confrontés au problème suivant : Comment caractériser en diffusion lumineuse des substrats transparents ?

L'étude par diffusion lumineuse de composants présentant une couche mince transparente a déjà été réalisée par d'autres laboratoires^{26,27}, mais elles ne donnaient accès qu'à des informations concernant la couche déposée. D'autres études ont été menées en utilisant l'ellipsométrie^{28,29}, mais, là encore, elles permettent de caractériser la couche et non pas le substrat.

Dans le cas de substrats transparents non traités, le problème reste donc en suspens. En effet, il n'a été que très peu abordé dans la littérature. Pour être plus précis, une seule étude a été publiée sur ce sujet. Elle a été menée d'un point de vue théorique par O. Kienzle^{30,31} à l'« *Institut für Angewandte Physik* » à Darmstadt (Allemagne), en 1994, mais son application nécessitait l'utilisation d'une sphère intégrante. Or, il nous paraissait important, pour pouvoir faire une étude multi-échelles des substrats transparents, de conserver l'information angulaire donnée par la mesure d'une indicatrice de diffusion.

Dans cette optique, une première série d'essais avait été menée par C. Amra et D. Torricini³² à l'Institut Fresnel en 1998. Le principe consistait à réaliser deux mesures du même échantillon, en réflexion puis en transmission, et à utiliser les modèles perturbatifs pour traiter de manière numérique les résultats et extraire la diffusion provenant de chacune des faces. La méthode s'est heurtée à des difficultés liées à des problèmes de divergence lors des inversions numériques. Le problème restait donc en suspens.

Lors du programme européen DACO nous avons de nouveau été confrontés à cette problématique. Nous l'avons alors abordée sous un autre angle. Nous proposons ici, deux méthodes permettant de caractériser les rugosités des substrats transparents par diffusion lumineuse.

La première méthode, dite « à filtrage d'étendue », repose sur un principe de confocalité. Sa mise en oeuvre nous a conduit à intégrer, sur le diffusomètre existant, une chaîne de mesure dédiée aux substrats transparents. Ce nouvel appareillage permet de mesurer l'intensité lumineuse diffusée par la face avant du substrat, tout en ne tenant pas compte de la lumière diffusée provenant de la face arrière de l'échantillon. On peut alors déduire de l'intensité lumineuse ainsi obtenue le spectre de rugosité de la surface étudiée en utilisant le même modèle que pour les substrats opaques.

Pour la deuxième méthode, dite « pile et face », nous proposons, dans un premier temps, de faire deux mesures en réflexion du même échantillon, centrées sur une face, puis sur l'autre ; et dans un deuxième temps, d'ajuster le modèle mathématique utilisé pour les substrats opaques afin qu'il s'applique aussi aux substrats transparents. Il est alors possible de déduire de nos deux mesures de diffusion, les rugosités de chacune des deux faces.

Par ailleurs, les composants à étudier dans le cadre du projet DACO étant des superpolis, il était nécessaire, pour leur étude, que l'environnement de travail soit propre. Nous avons donc saisi l'opportunité de ce contrat européen pour installer l'ensemble des outils de mesure de l'activité diffusion en salle blanche. Nous avons alors défini un environnement de classe 100 000, avec deux pièces communicantes (Figure 7). Une des pièces comprend les diffusomètres, fonctionnant dans le noir pour les mesures. L'autre pièce contient les électroniques et les moyens de pilotage des instruments, ainsi que des outils métrologiques (profilomètre optique).



Figure 7 : Salle des diffusomètres, et salle de commandes et microscopes

Le cadre du projet étant désormais défini, nous allons maintenant présenter de manière détaillée les deux méthodes de caractérisation des substrats transparents qu'il nous a permis de développer. Mais avant toutes choses, regardons de plus près les problèmes soulevés par la caractérisation des substrats transparents.

Chapitre II :
***Les difficultés liées à la
caractérisation des
substrats transparents***

Dans le cas des substrats transparents, les deux faces du substrat diffusent la lumière comme indiqué Figure 8.

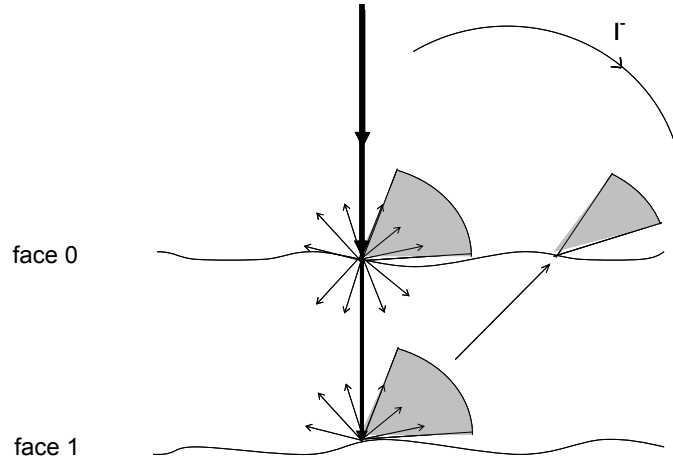


Figure 8 : Diffusion lumineuse en réflexion dans le cas des substrats transparents

Si on fait une mesure d'indicatrice de diffusion centrée sur la face 0, l'intensité que l'on mesure a plusieurs origines. En effet, quand on éclaire l'échantillon, la lumière est à la fois diffusée en réflexion et transmission par la face 0 de l'échantillon, et diffusée en réflexion et transmission par la face 1 de l'échantillon. Si nous regardons plus précisément ce qui se passe, on peut détailler le trajet de la lumière comme suit :

I. Étape 1 : contribution de la face 0

Comme on le voit Figure 9, la lumière incidente est tout d'abord diffusée par la face 0 en réflexion (I_0^-) et en transmission (I_0^+).

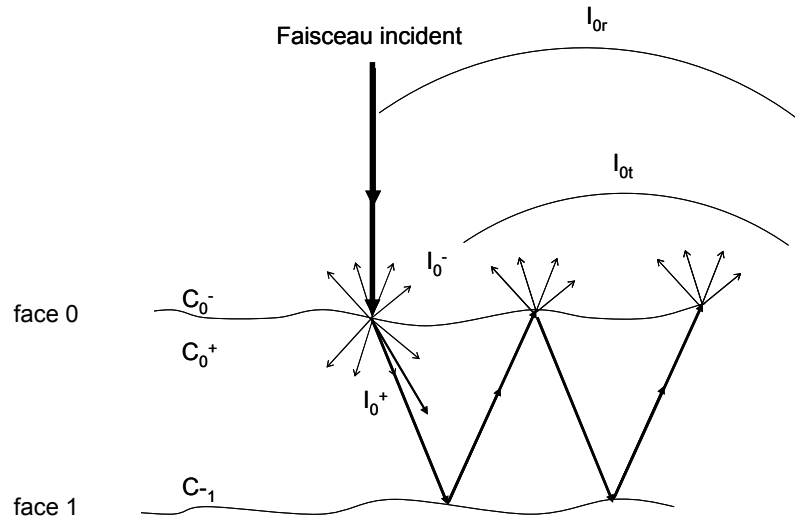


Figure 9 : Lumière diffusée par la face 0 d'un substrat transparent

Si γ_0 est le spectre de rugosité de la face 0, et C_0^- et C_0^+ les facteurs définis équations 6 et 7, respectivement en réflexion et en transmission, on peut écrire:

$$I_0^-(\theta, \phi) = C_0^-(\theta, \phi) \gamma_0(\theta, \phi) \quad (15)$$

et

$$I_0^+(\theta, \phi) = C_0^+(\theta, \phi) \gamma_0(\theta, \phi) \quad (16)$$

L'intensité I_0^- va tout d'abord être collectée directement par le capteur.

Par contre, la lumière diffusée en transmission par la face 0 de l'échantillon (I_0^+) va traverser l'échantillon et être réfléchi par la face 1, et subir des réflexions multiples entre les deux faces (Figure 9) avant d'être mesurée dans le demi espace réfléchi. Nous nommerons I_{0r} cette contribution vue du détecteur (Figure 9), et nous avons :

$$I_{0r}(\theta_0, \phi) = C_0^+(\theta_s) \gamma_0(\theta, \phi) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \quad (17)$$

où R est la réflexion spéculaire classique du dioptre air-verre, et β la transmission diffuse de l'interface air-verre définie par :

$$\beta = T \left(\frac{n_0}{n_s} \right)^2 \frac{\cos \theta_0}{\cos \theta_s} \quad (18)$$

Les directions dans l'air et le verre sont ici notées θ_0 et θ_s , et T désigne la transmission spéculaire classique du dioptre air-verre. Le facteur $R/(1-R^2)$ tient compte des réflexions multiples.

La contribution totale I_{0r} de la face 0 vue d'un capteur situé dans le demi espace réfléchi est donc :

$$\begin{aligned} I_{0r}(\theta_0, \phi) &= I_0^-(\theta_0, \phi) + I_{0r}(\theta_0, \phi) \\ &= \gamma_0(\theta, \phi) \left\{ C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} \end{aligned} \quad (19)$$

II. Étape 2 : contribution de la face 1

La contribution en réflexion de la face 1 est issue originellement de la lumière provenant du faisceau transmis (non diffusé) par la face 0 puis diffusée en réflexion par la face 1 (Figure 10), donnée par I_1^- . En tenant compte des réflexions multiples avant émergence par la face 0, et de la transmission diffuse à travers la face 0, on obtient la contribution :

$$I_{1r}(\theta_s, \phi) = \frac{T(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \frac{\beta(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} C_1^-(\theta_s, \phi) \gamma_1(\theta, \phi) \quad (20)$$

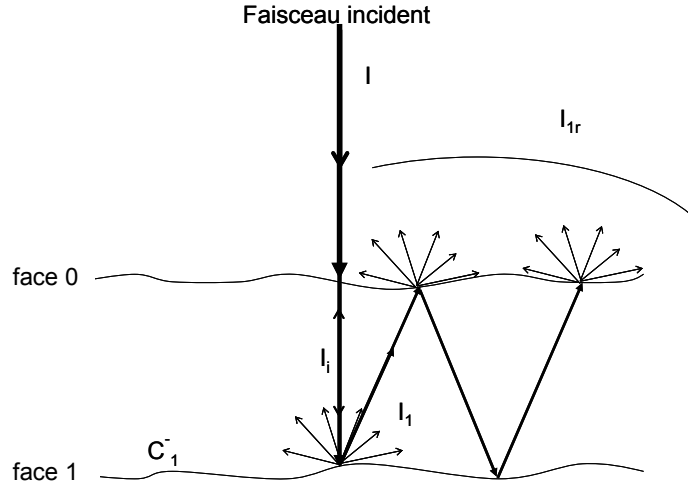


Figure 10 : Lumière diffusée par la face 1 dans un substrat transparent

III. Bilan des contributions de chaque face

Finalement, l'expression de la lumière diffusée issue des deux faces et mesurée dans le demi-espace réfléchi est donnée par :

$$\begin{aligned}
 I^-(\theta_0, \phi) &= I_{0r}(\theta_0, \phi) + I_{1r}(\theta_s, \phi) \\
 &= I_0^-(\theta_0, \phi) + I_{0t}(\theta_0, \phi) + I_{1r}(\theta_s, \phi) \\
 &= \left\{ C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} \gamma_0(\theta_0, \phi) + \frac{T(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \frac{\beta(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} C_1^-(\theta_s, \phi) \gamma_1(\theta_s, \phi)
 \end{aligned} \tag{21}$$

Notons que si un échantillon transparent était étudié de la même manière qu'un verre opaque présentant une seule interface, son spectre de rugosité γ serait déduit de la relation :

$$\gamma(\theta) = \frac{I^-(\theta)}{C^-(\theta)} \tag{22}$$

où $C^-(\theta) = C_0^-(\theta)$.

En réalité, le spectre (erroné) qui serait ainsi mesuré et que l'on désignera comme spectre équivalent du substrat, γ_{eq} , prend en compte la contribution des deux faces et peut être décomposé comme :

$$\begin{aligned}
 \gamma_{eq} &= \frac{I^-(\theta)}{C^-(\theta)} \\
 &= \frac{I^-(\theta)}{C_0^-(\theta)} = \frac{I_{0r}(\theta) + I_{1r}(\theta)}{C_0^-(\theta)} \\
 &= \frac{I_0^-(\theta_0, \phi) + I_{0t}(\theta_0, \phi) + I_{1r}(\theta_s, \phi)}{C_0^-(\theta)} \\
 &= \gamma_0(\theta_0, \phi) + \frac{C_0^+(\theta_s)}{C_0^-(\theta_s)} \frac{R(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \gamma_0(\theta_0, \phi) + \frac{T(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \frac{\beta(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \frac{C_1^-(\theta_s, \phi)}{C_0^-(\theta_s)} \gamma_1(\theta_s, \phi)
 \end{aligned} \tag{23}$$

Nous pouvons voir, dans un premier temps, que le spectre γ_{eq} auquel l'on a accès avec une mesure de BRDF effectuée dans le demi espace réfléchi est différent de γ_0 et γ_1 , tout en étant une combinaison linéaire mais non triviale des deux. Le spectre γ_{eq} est tracé, Figure 11, dans le cas de 2 spectres identiques aux interfaces ($\gamma_0 = \gamma_1$)

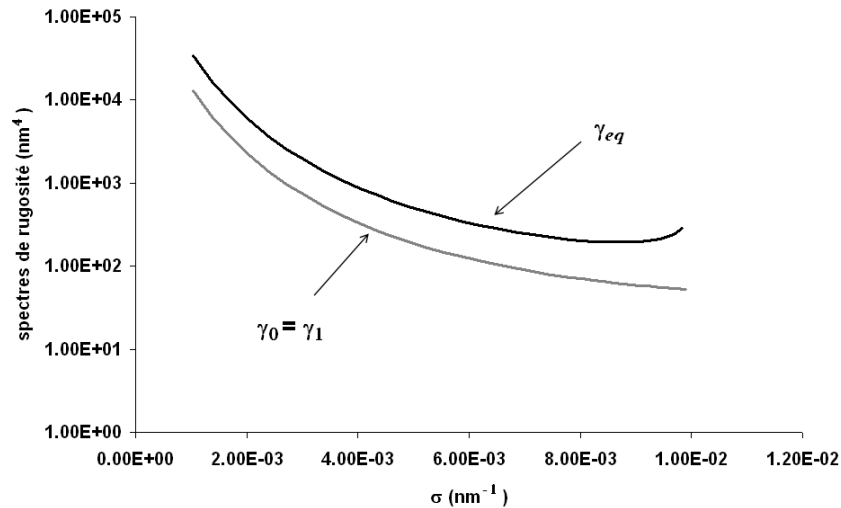


Figure 11 : Différence entre spectre réel et spectre équivalent

Cela nous montre que, dans le cas de substrats transparents, le spectre déduit d'une mesure classique de diffusion contient une erreur qui provient de la contribution de la deuxième face de l'échantillon et que cette erreur n'est pas négligeable.

Par conséquent, dans le cas des substrats transparents, afin d'obtenir une caractérisation fiable des échantillons, il est nécessaire de pouvoir mesurer séparément les contributions en diffusion des deux faces du substrat.

Nous allons maintenant détailler deux méthodes que nous avons développées dans le cadre du projet européen DACO pour apporter une solution à ce problème.

Chapitre III :
Méthode à filtrage
d'étendue

I. Principe

Les mesures de diffusion sont traditionnellement faites à 633 nm en incidence normale. Le capteur utilisé est une fibre optique multimode de 1mm de diamètre. De ce fait, lors de la mesure d'un substrat transparent épais, on relève non seulement la lumière provenant de la face éclairée de l'échantillon, mais aussi la lumière diffusée par la face arrière du substrat (Figure 12). Lorsque notre but est de caractériser la face avant de l'échantillon, la présence de lumière diffusée par la face arrière va donc venir perturber la mesure.

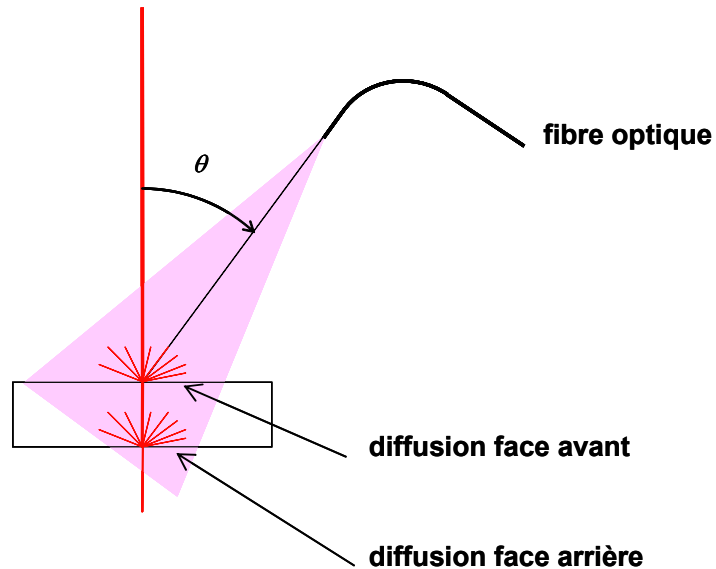


Figure 12: Configuration de mesure traditionnelle

Afin de réduire, voire d'annuler la contribution de cette lumière parasite, une première approche avait consisté à introduire un système optique de reprise intermédiaire³³. Nous proposons, cette fois, de réduire le cône de collection de la fibre optique de reprise en utilisant un diaphragme placé entre la fibre et l'échantillon comme indiqué Figure 13. Nous pourrions alors, au moins sur une certaine partie du domaine angulaire de la mesure, prendre en compte uniquement la lumière diffusée par la face avant de l'échantillon.

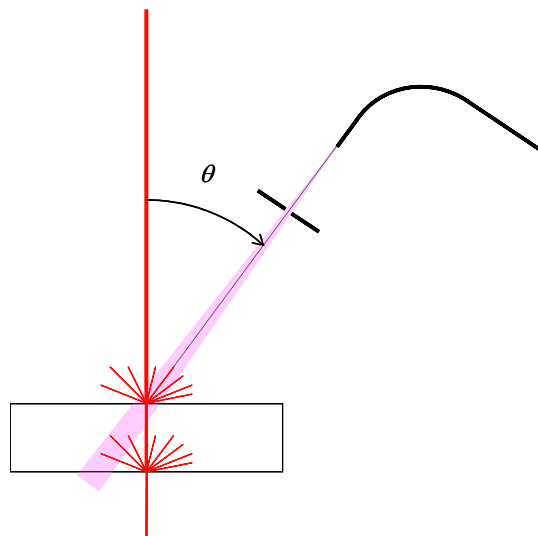


Figure 13: Réduction du cône de collection du capteur

Nous devons dans un premier temps évaluer le domaine de validité de cette méthode. En effet, comme illustré Figure 14, la méthode atteint ses limites lorsque la fibre de collection se rapproche de l'axe optique ($\theta = 0^\circ$).

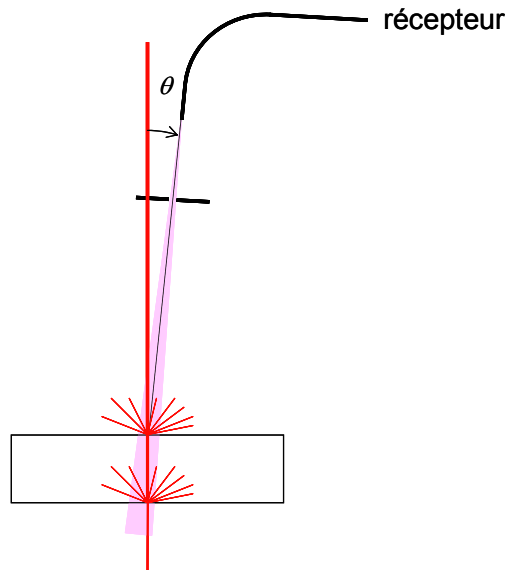


Figure 14 : Cas où l'angle de reprise est proche de 0°

Nous allons maintenant définir précisément ce domaine de validité.

II. Approche théorique

1. Définition du domaine de validité

Cette étude a été effectuée d'un point de vue purement géométrique.

On considère un échantillon transparent d'indice n et d'épaisseur e faiblement rugueux, éclairé en incidence normale dans l'air, ce qui correspond à la configuration de mesure qui nous intéresse. Tout d'abord, on considère, comme décrit Figure 15, que la lumière incidente arrive sur la face 0 du substrat en formant un spot de diamètre s centré sur le point A . Elle traverse ensuite l'échantillon et rencontre la face 1 au point A' . Le point A est le centre de rotation du bras pour la mesure de l'indicatrice de diffusion.

Lors de la mesure, le détecteur effectue une rotation centrée en A dans le plan horizontal selon un angle θ par rapport à la normale à l'échantillon. Notre capteur voit d'une part la lumière issue de A qui effectue tout son trajet dans l'air, mais aussi celle issue de A' qui effectue une partie de son trajet en traversant une épaisseur de verre qui est fonction de l'angle de diffusion θ , de l'angle sur la face 0 à l'intérieur du verre i , de l'épaisseur de la lame de verre e et de l'indice n du substrat (Figure 15). Du point de vue du détecteur, tout se passe comme si l'ensemble des rayons issus de A' venait du point B (Figure 15) en effectuant tout leur trajet dans l'air.

L'épaisseur e' apparente de l'échantillon vue d'un point situé sur le bras tournant autour de l'échantillon est alors :

$$e' = \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}} \quad (24)$$

Par conséquent, du point de vue du récepteur, tout se passe comme si nous avions un substrat d'air, d'épaisseur e' .

On peut d'ores et déjà remarquer que pour les grands angles (proches de 90°), l'épaisseur apparente tend vers 0, ce qui signifie que lorsqu'on regarde le verre en incidence rasante, les deux faces semblent confondues. Nous ne pourrions donc visiblement pas séparer les contributions des deux faces pour les grands angles de mesure. Il en est de même pour les petits angles.

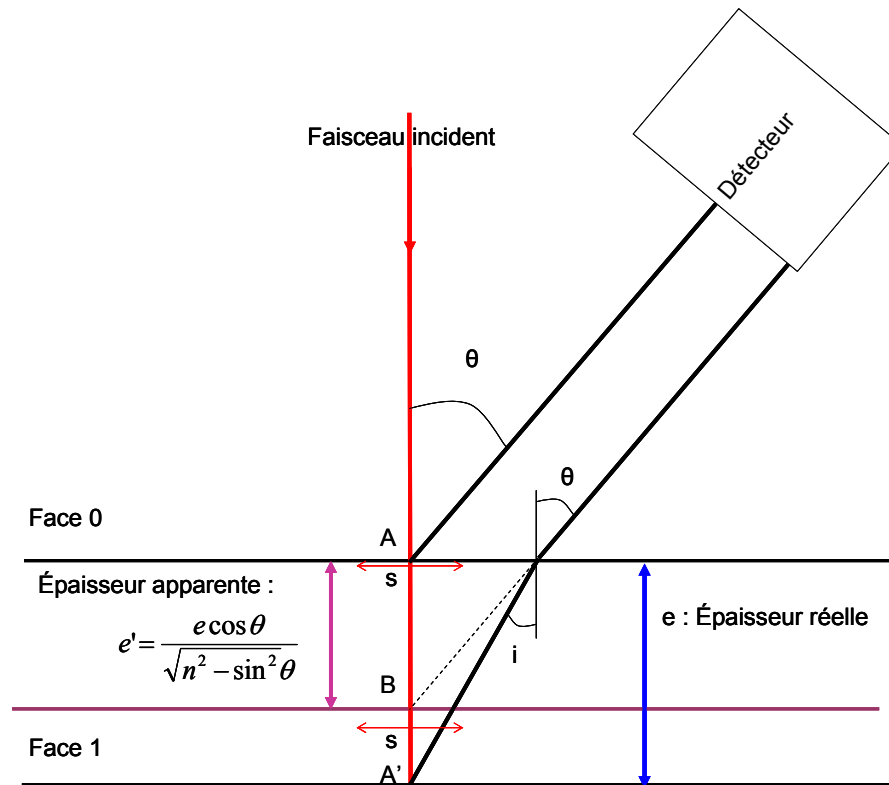


Figure 15 : Schéma de principe, vue latérale

Notre but est de mesurer la lumière issue de A sans tenir compte de celle issue de B avec le système décrit Figure 13. Le faisceau incident a un diamètre s , on peut donc dire que la zone que l'on veut mesurer sur la face 0 est en fait un spot de diamètre $A_1A_2=s$ (figures 16 et 17) et de surface S_1 et il en est de même au niveau du point B où on a un spot de diamètre $B_1B_2=s$ et de surface S_2 .

En outre, on peut définir le cône de collection du système de reprise par le cône englobant l'ensemble des rayons lumineux qui arriveront dans la fibre optique de reprise de diamètre $2a$ après avoir été filtrés par le diaphragme de diamètre $2t$. Il récupère l'intégralité de la lumière issue de l'ellipse ξ_1 définie de grand axe J_1J_2 , de petit axe h_1 et de surface Σ_1 sur la face 0 et l'ellipse ξ_2 de grand axe E_1E_2 , de petit axe h_2 et de surface Σ_2 sur la face 1.

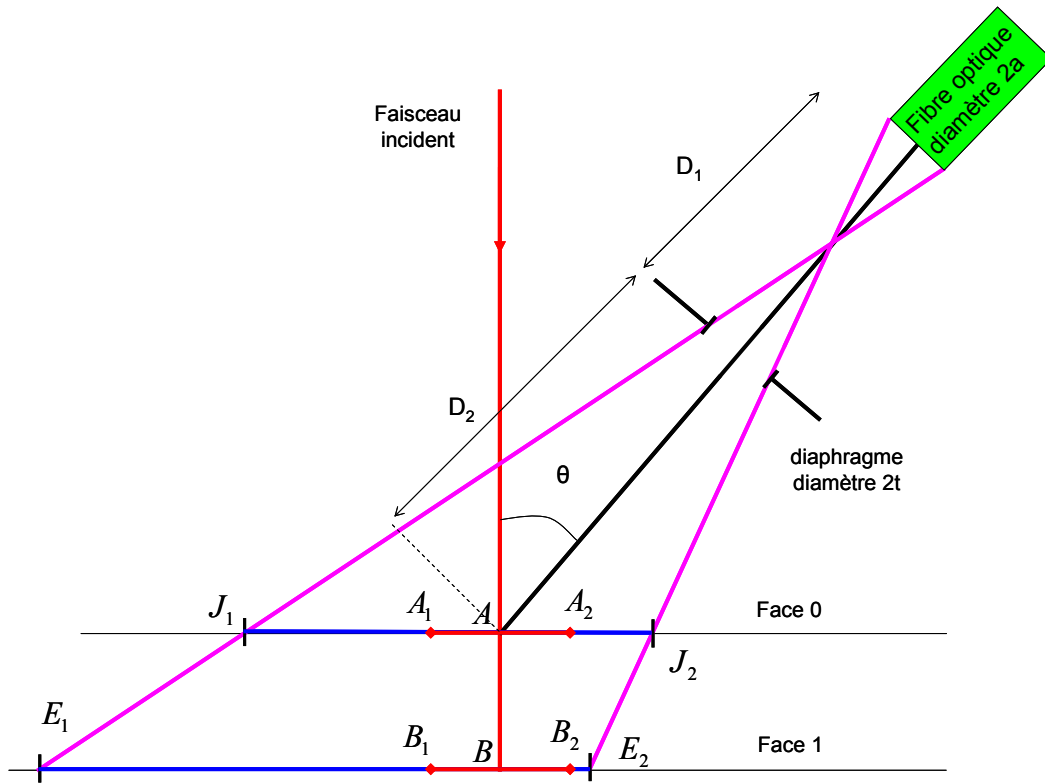


Figure 16 : Vue latérale

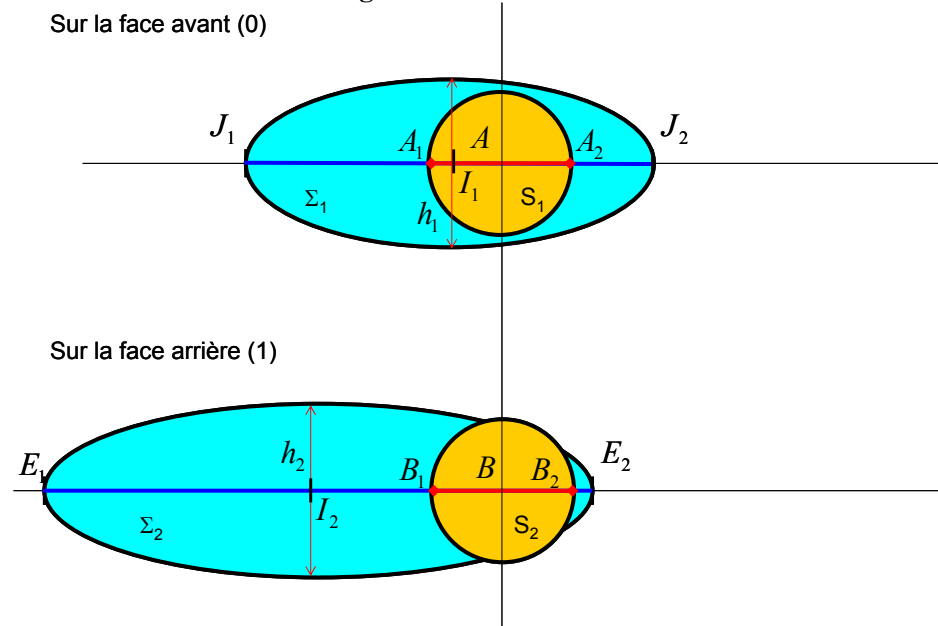


Figure 17 : Vue de dessus

Nous cherchons à mesurer le signal issu de la face 0 tout en minimisant celui issu de la face 1 ce qui revient à faire en sorte que, d'une part, l'aire de l'intersection $S_1 \cap \Sigma_1$ soit la plus grande possible, et d'autre part, la surface $S_2 \cap \Sigma_2$ soit minimale. On va pour cela définir un rapport qu'on nommera taux de recouvrement η et qui sera défini comme suit :

$$\eta = \frac{S_2 \cap \Sigma_2}{S_1 \cap \Sigma_1} \quad (25)$$

Lorsque η est nul, on sépare entièrement les contributions des deux faces et quand $\eta = 1$, les deux faces ont des contributions équivalentes.

Nous allons maintenant calculer le taux de recouvrement.

2. Taux de recouvrement

Le calcul des paramètres des ellipses ξ_1 et ξ_2 est détaillé en annexe (page 225). Nous présenterons ici seulement les résultats.

Tous les paramètres utilisés dans les équations (26) à (29) sont définis Figure 16.

L'ellipse ξ_1 est l'ellipse de grand axe J_1J_2 , de petit axe h_1 et de surface Σ_1 où J_1J_2 et h_1 sont définis par :

$$\begin{aligned} \overline{J_1J_2} = & \left[((D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta) - (D_1 \sin \theta - (a + t) \cos \theta) \frac{(a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta)}{D_1 \cos \theta + (a + t) \sin \theta} \right] \\ & - \left[(D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta + 2a \cos \theta + (D_1 \sin \theta + (a + t) \cos \theta) \frac{(D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta}{D_1 \cos \theta - (a + t) \sin \theta} \right] \end{aligned} \quad (26)$$

et

$$h_1 = \sqrt{\left(\frac{\frac{t}{a+t} D_1 + D_2 + \frac{1}{2} \overline{J_1J_2} \sin \theta}{\frac{t}{a+t} D_1} \right)^2 - (\overline{J_1J_2} \cos \theta)^2} \quad (27)$$

L'ellipse ξ_2 est l'ellipse de grand axe E_1E_2 , de petit axe h_2 et de surface Σ_2 où E_1E_2 et h_2 sont définis par :

$$\begin{aligned} \overline{E_1E_2} = & (D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta \\ & + [D_1 \sin \theta - (a + t) \cos \theta] \frac{a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta + \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}}{D_1 \cos \theta + (a + t) \sin \theta} \\ & - (D_1 + D_2) \sin \theta + a \cos \theta - 2a \cos \theta \\ & - [D_1 \sin \theta + (a + t) \cos \theta] \frac{(D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta + \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}}{D_1 \cos \theta - (a + t) \sin \theta} \end{aligned} \quad (28)$$

et

$$h_2 = \sqrt{\left[\frac{\frac{t}{a+t} D_1 + D_2 + \frac{e'}{\cos \theta} + \left(\frac{1}{2} \overline{E_1 E_2} - e' \tan \theta \right) \sin \theta}{\frac{t}{a+t} D_1} \right]^2 - \left[2 \left(\frac{1}{2} \overline{E_1 E_2} - e' \tan \theta \right) \cos \theta \right]^2} \quad (29)$$

Nous connaissons désormais les caractéristiques des ellipses de reprise sur chaque face en fonction des conditions expérimentales. En utilisant ces paramètres, nous avons calculé numériquement le taux de recouvrement pour un substrat d'indice 1,5. Compte tenu du fait qu'une résolution de 1 ou 2° est suffisante pour l'application qui nous intéresse, et que la fibre optique doit être suffisamment proche de l'échantillon pour permettre de mesurer des faibles niveaux de diffusion, la distance fibre-échantillon ($D_1 + D_2$) que nous utiliserons sera de l'ordre de 40 cm. Nous aurons donc pour les calculs $D_1 + D_2 = 40$ cm.

En outre, la fibre optique de reprise et le diaphragme ont tous deux un diamètre de 1 mm et dans ces conditions, nous avons pu voir lors des simulations que la position optimale du diaphragme correspond au cas où $D_1 = D_2$. De ce fait, nous utiliserons pour la suite $D_1 = D_2 = 20$ cm.

Le taux de recouvrement η correspondant à ces paramètres est tracé Figure 18 en fonction de l'angle de reprise du détecteur et de l'épaisseur de l'échantillon à incidence normale.

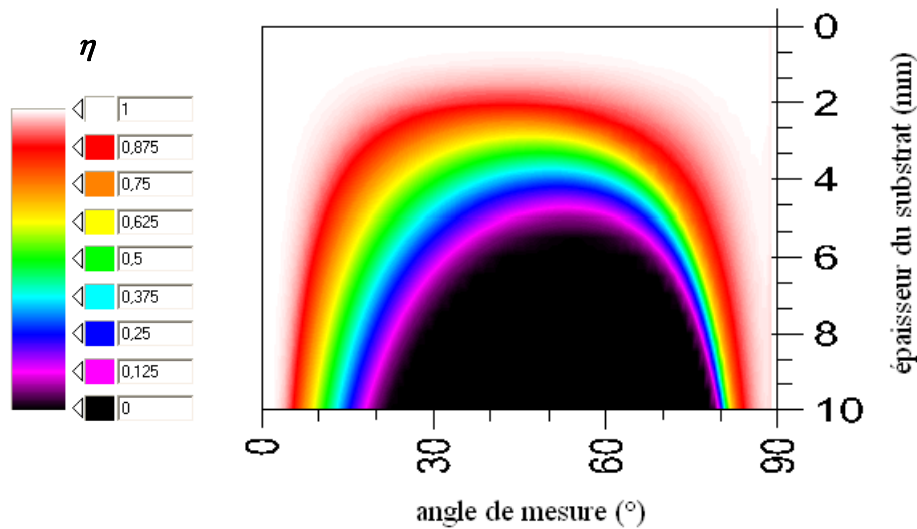


Figure 18 : Taux de recouvrement pour un substrat d'indice $n = 1,5$

On peut noter que le taux de recouvrement s'annule sur un domaine angulaire conséquent sous réserve que l'échantillon soit suffisamment épais. Par exemple, Figure 19 on voit que pour une épaisseur $e = 9$ mm, ce qui correspond aux échantillons étudiés dans le cadre du projet DACO, le taux de recouvrement est nul sur tout le domaine angulaire $[25 ; 75^\circ]$. En outre, plus le substrat est épais, plus le domaine angulaire de séparation est grand, jusqu'à tendre vers $[0^\circ ; 90^\circ]$ lorsque e tend vers l'infini. À l'inverse, pour une épaisseur du substrat inférieure à 2 mm, la séparation des faces n'est plus possible quelque soit le domaine angulaire.

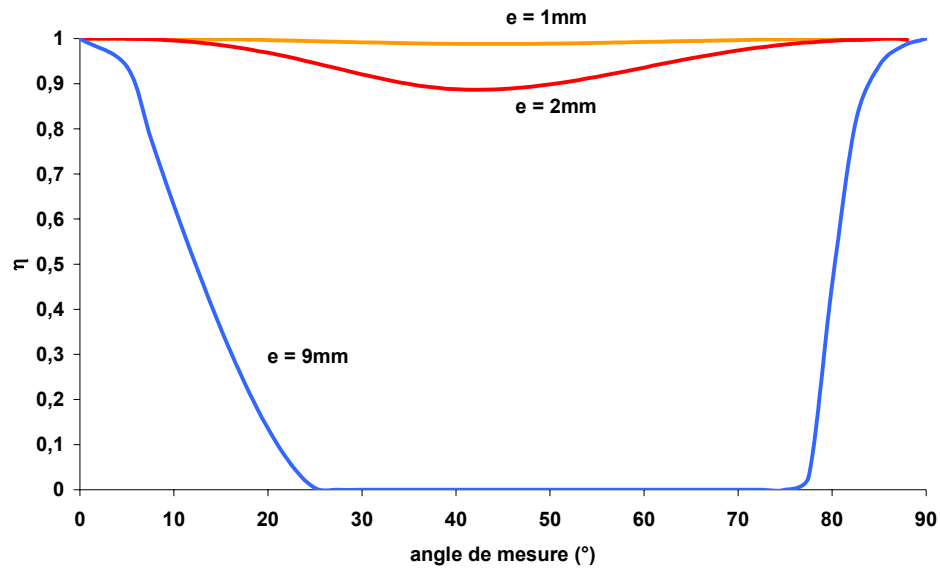


Figure 19 : Taux de recouvrement pour un substrat d'indice $n = 1,5$ et pour une épaisseur de 9 mm

Lorsque $\eta = 0$, la mesure réalisée considère uniquement la lumière diffusée par la face avant, celle-ci étant alors totalement dissociée de celle diffusée par la face arrière. De la même manière, une caractérisation de l'autre face pourrait être faite sur le même domaine angulaire en retournant l'échantillon.

Le domaine de validité de la méthode que nous proposons est désormais défini en fonction de l'épaisseur du substrat. Nous allons maintenant l'appliquer sur différents échantillons.

III. Application et expérience

1. Échantillon opaque

Dans une première étape, nous appliquons cette méthode à un substrat opaque. Nous sommes alors dans le cas d'un substrat d'épaisseur infinie, et le taux de recouvrement est nul sur tout le domaine angulaire de mesure. Par conséquent, si on compare une indicatrice de diffusion mesurée sur un substrat opaque, dans des conditions standards d'utilisation à celle obtenue sur le même échantillon mais en utilisant le système de filtrage d'étendue, nous devrions théoriquement obtenir les mêmes courbes.

Ces mesures comparatives ont été effectuées sur un verre noir opaque et les deux indicatrices de diffusion obtenues sont tracées Figure 20. Sur le même graphe, sont également tracées les indicatrices mesurées sur l'échantillon lambertien ayant servi à l'étalonnage dans les deux configurations de mesure.

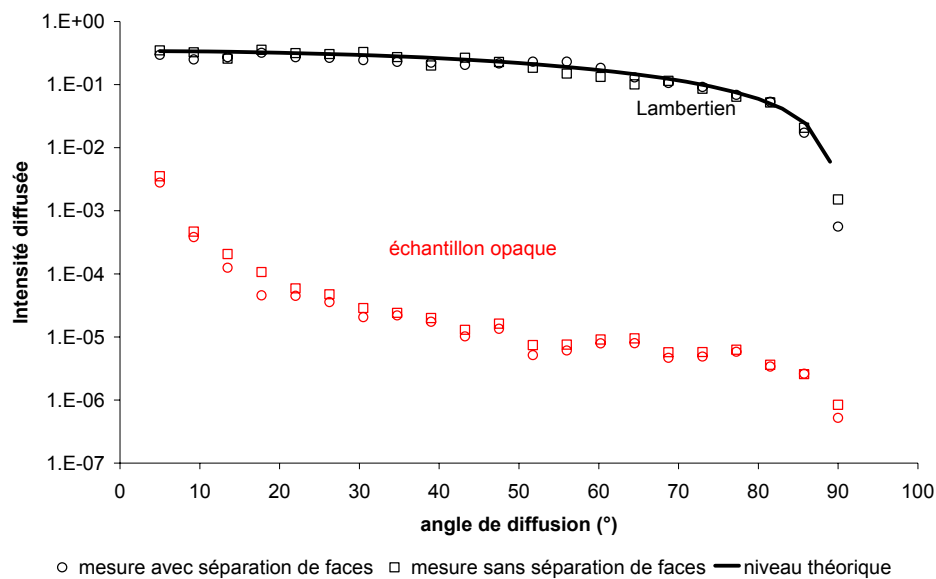


Figure 20 : Indicatrices de diffusion d'un substrat opaque mesurées avec et sans le système de séparation de faces

On constate que, dans le cas de l'échantillon opaque, comme dans celui du lambertien, les courbes obtenues avec chacune des deux configurations de mesure sont parfaitement superposées. Ceci nous donne une première validation de la méthode de filtrage d'étendue. Nous allons maintenant l'appliquer au cas des substrats transparents.

2. Échantillon transparent

Dans le but de valider cette méthode de mesure, nous avons effectué une série de mesures sur les échantillons à caractériser dans le cadre du projet DACO. Ce sont des échantillons transparents de silice de qualité superpolie de 9 mm d'épaisseur et de 12,54 mm de diamètre. Dans ces conditions, d'après les résultats donnés Partie A : Chapitre III, le taux de recouvrement est nul entre 25 et 75°. Par conséquent, une mesure faite sur ce domaine angulaire prend uniquement en compte la face avant de l'échantillon.

Les mesures ont été réalisées sur un panel de 11 échantillons qui correspondent tous à ces caractéristiques. Nous avons choisi de montrer les résultats obtenus sur un de ces échantillons en particulier, les autres ayant donné des résultats similaires.

Nous avons dans un premier temps réalisé une mesure de diffusion dans des conditions standards d'utilisation, c'est-à-dire en n'utilisant aucun système de séparation de faces (Figure 21). Une première mesure a été faite en éclairant la face 0, on obtient alors I , puis, on retourne l'échantillon et on éclaire la face 1. On a alors I' .

On constate que les deux indicatrices de diffusion ont le même niveau d'intensité quelle que soit la face mesurée. Les rugosités moyennes sont également du même ordre de grandeur sur les deux faces.

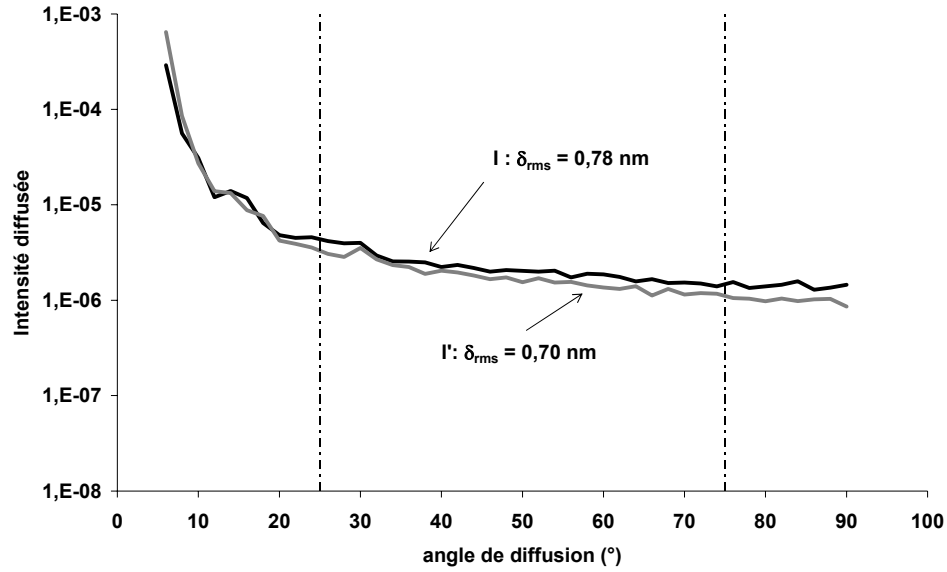


Figure 21: Intensité diffusée I et I' par chacune des deux faces d'un échantillon superpoli transparent mesurée sans système de séparation

Dans un second temps, nous avons effectué la même série de mesures, mais cette fois, en utilisant le système de séparation de faces présenté auparavant. Nous obtenons alors les indicatrices de diffusion données Figure 22. I_0 étant la mesure centrée sur la face 0 et I'_1 , celle centrée sur la face 1. On constate cette fois-ci que le niveau global des indicatrices est nettement inférieur à celui obtenu sans utilisation du système de séparation de faces, donc on annule bien une partie du signal mesuré. Par ailleurs, les deux indicatrices I_0 et I'_1 sont comparables, ce qui permettrait d'attribuer aux deux faces de l'échantillon des qualités de poli similaires.

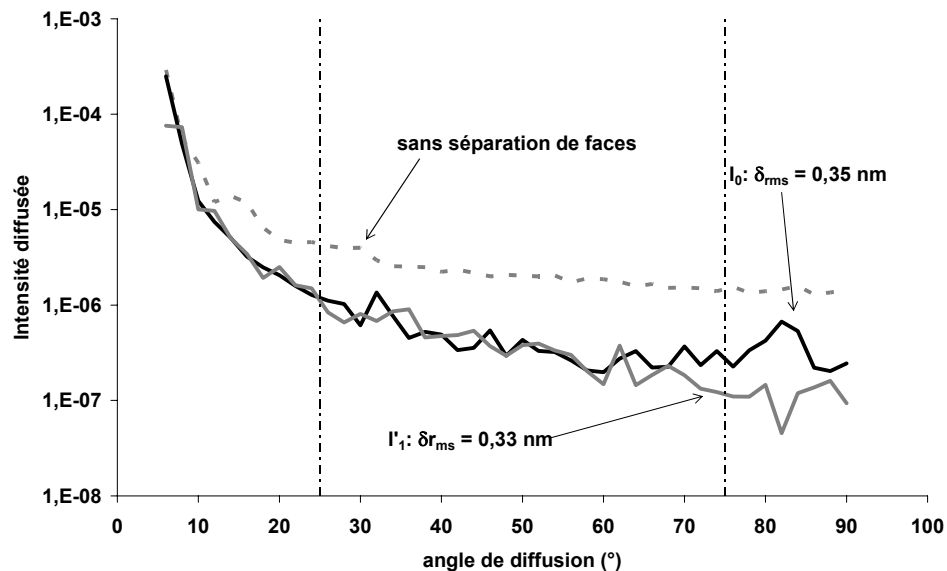


Figure 22: Intensité diffusée I_0 et I'_1 par chacune des deux faces d'un échantillon superpoli transparent mesurée avec le système de séparation

Les mesures étant faites, il nous faut vérifier que les résultats qu'elles donnent sont cohérents. Pour cela, dans un premier temps, nous allons vérifier que nous retrouvons bien la relation (23) donnée partie Partie A :Chapitre II .

On considère tout d'abord les spectres de rugosité γ_0 et γ_1 des faces 0 et 1 déduits en utilisant la formule (1) des intensités I_0 et I_1 mesurées avec le système de séparation de faces. En outre, le spectre γ'_0 de la face 0 est déduit de l'intensité I mesurée sans séparation de faces. Ces trois spectres sont tracés Figure 23.

A partir de γ_0 et γ_1 , nous appliquons la formule (23) donnée partie Partie A :Chapitre II et en déduisons alors γ_{eq} , spectre théoriquement obtenu en faisant la mesure de la face 0 sans séparation de faces. Ce spectre est aussi tracé Figure 23.

Nous devrions avoir $\gamma_{eq} = \gamma'_0$, ce que nous constatons bien Figure 23. Par conséquent, les mesures semblent compatibles en première approche. Pour compléter cette approche, une étude des surfaces par microscopie est présentée en Partie A :Chapitre V .

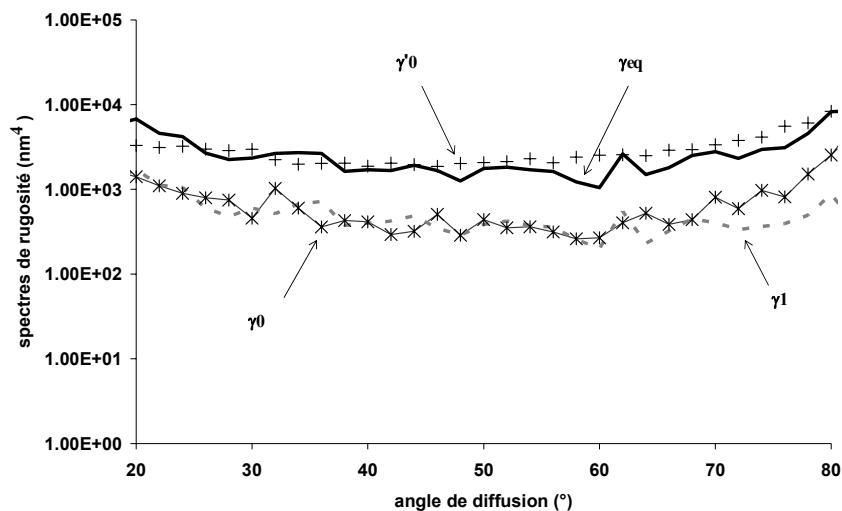


Figure 23 : Spectres de rugosité calculé et mesurés

Enfin, nous pouvons quantifier les valeurs des rugosités de chaque interface à partir des mesures effectuées avec et sans séparation de faces. Pour l'échantillon étudié ici, les rugosités obtenues sans séparation de faces, calculées d'après les courbes données Figure 21 sont 0,78 nm pour la face 0 et 0,70 nm pour la face 1.

Les rugosités déduites des mesures faites avec la séparation de faces, calculées d'après les mesures présentées Figure 22 de 0,35 nm pour la face 0 et 0,33 nm pour la face 1. Il existe une nette différence entre les deux. L'erreur commise si on ne sépare pas les contributions des deux faces est de l'ordre de 112 % dans le cas de la face la moins rugueuse et de 122 % pour la face la plus rugueuse. Ces écarts sont importants et justifient largement l'intérêt de l'étude.

La méthode étant désormais validée, nous l'avons appliquée aux substrats à caractériser dans le cadre du projet DACO. Nous disposons de 11 substrats distincts de silice de 12,54 mm de diamètre, 9 mm d'épaisseur et présentant des degrés de polissage différents. Les indicatrices de diffusion obtenues avec le système de séparation de faces, pour chaque échantillon, sont présentées figures 24 à 34 pour chaque face.

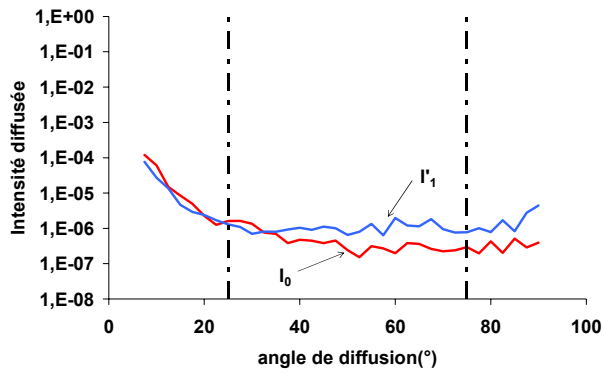


Figure 24 : Échantillon 1

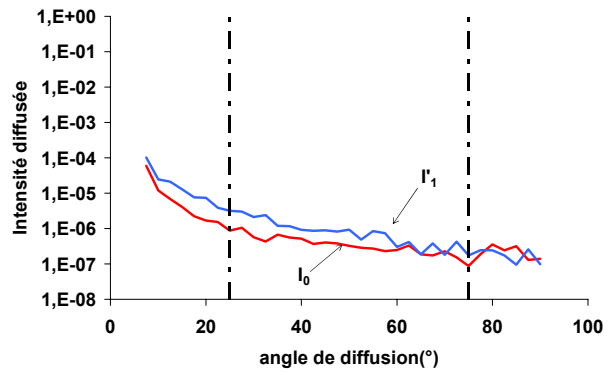


Figure 25 : Échantillon 2

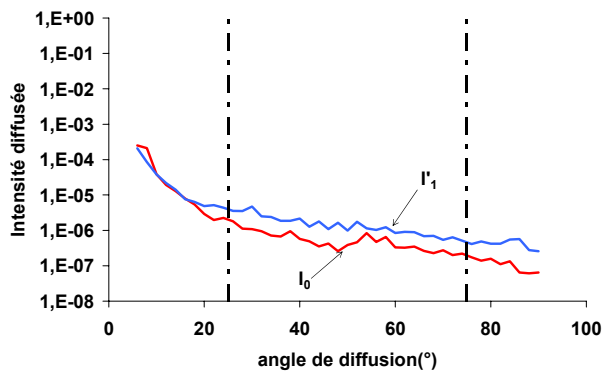


Figure 26 : Échantillon 3

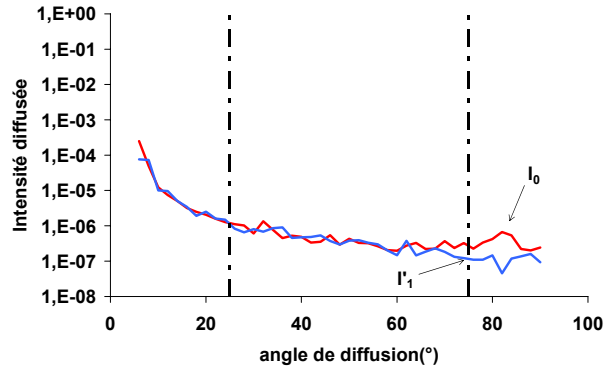


Figure 27 : Échantillon 4

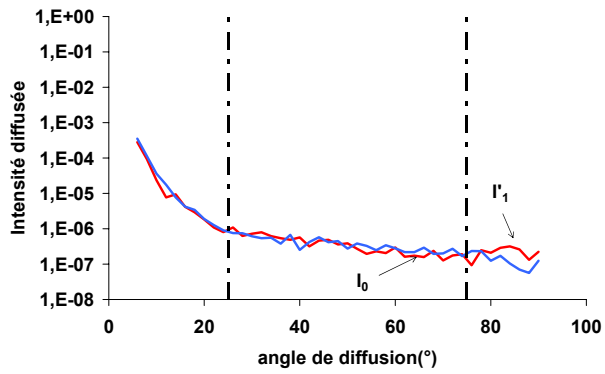


Figure 28 : Échantillon 5

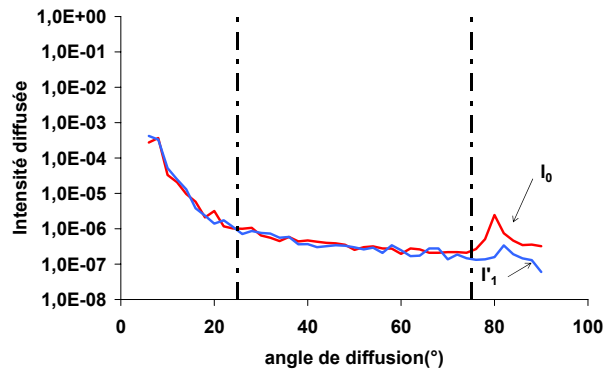


Figure 29 : Échantillon 6

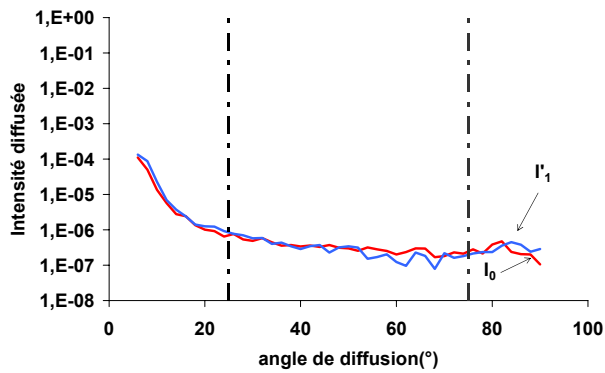


Figure 30 : Échantillon 7

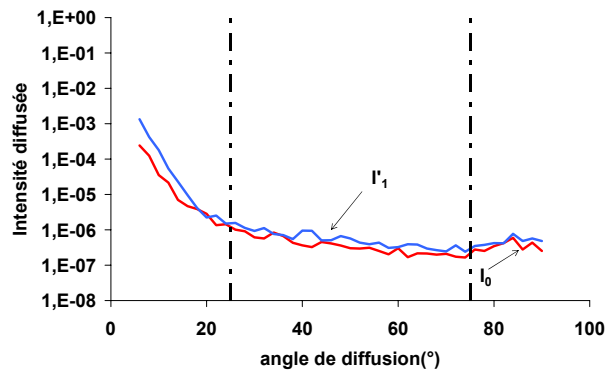


Figure 31 : Échantillon 8

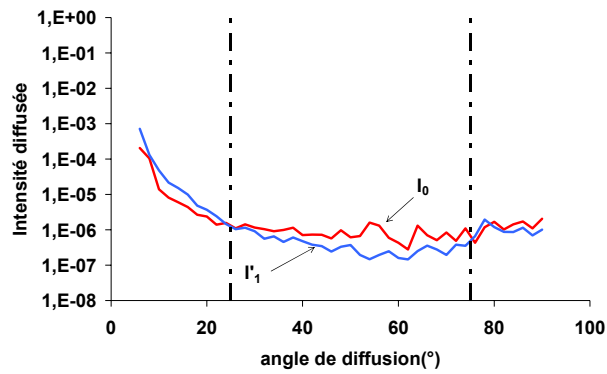


Figure 32 : Échantillon 9

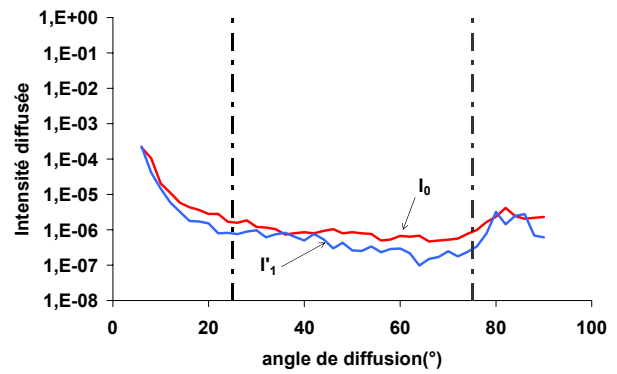


Figure 33 : Échantillon 10

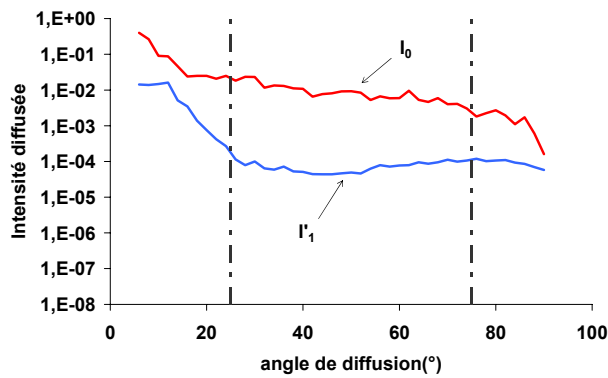


Figure 34 : Échantillon 11

Figures 24 à 34 : Comparaison des indicatrices de diffusion obtenues pour différents échantillons avec le système de séparation de faces.

En outre, à titre indicatif, les rugosités moyennes obtenues par intégration du spectre sur le domaine de validité de la méthode, (soit 25° à 75°) sont données Figure 35 pour chaque face de chaque échantillon.

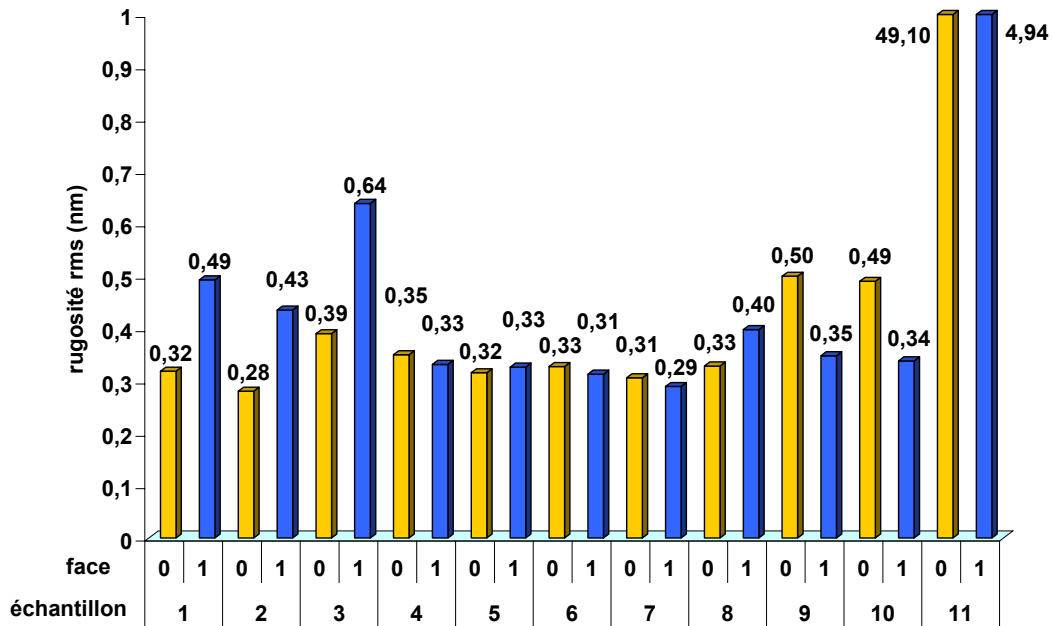


Figure 35 : Rugosités *rms* des deux faces des échantillons mesurés dans le cadre du projet DACO

L'analyse du taux de recouvrement permet ainsi d'analyser chaque surface d'un substrat transparent de façon isolée. Dans le cadre du projet DACO, cette méthode nous aura permis de comparer les faces avant et arrière des substrats et de comparer les substrats entre eux.

L'inconvénient majeur de cette méthode est qu'elle n'autorise pas à prendre en compte la totalité du signal obtenu lors d'une mesure de *BRDF*. Une partie de l'information est donc perdue. Pour remédier à cela, nous avons développé une deuxième méthode de caractérisation des substrats transparents par diffusion lumineuse, qui se fonde sur un retournement des échantillons et un ajustement du modèle électromagnétique utilisé dans le cas des substrats opaques. Nous allons maintenant expliciter cette méthode et comparer ces performances à celles du filtrage d'étendue.

Chapitre IV :
Méthode Pile et Face

Nous venons de mettre en œuvre une méthode qui nous permet de séparer physiquement les contributions en diffusion lumineuse des deux faces d'un substrat transparent épais. Afin de la compléter, nous proposons ici une méthode de caractérisation faisant intervenir uniquement des mesures de diffusion dites « classiques » qui seront complétées par un traitement des données a posteriori adéquat. Cette technique nous permettrait cette fois, d'avoir une séparation de faces par le calcul.

I. Principe

Nous avons vu au Partie A :Chapitre II :que lors d'une mesure de diffusion classique sur un substrat transparent centrée sur la face avant du substrat (ou face 0), on ne mesure pas uniquement l'intensité diffusée par la face 0, qui nous permettrait de déduire directement le spectre de rugosité de la face 0, mais une intensité résultante des spectres de rugosité des deux faces de l'échantillon, γ_0 et γ_1 . Cette intensité s'écrit comme :

$$I^-(\theta_0, \phi) = \left\{ C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} \gamma_0(\theta, \phi) + C_1^-(\theta_s) \frac{1}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \gamma_1(\theta, \phi) \quad (30)$$

La méthode que nous proposons consiste à faire une première mesure de diffusion en réflexion centrée sur la face 0, notée I^- . Ensuite, on retourne l'échantillon, et on effectue une deuxième mesure de flux diffusé dans les mêmes conditions (Figure 36). Cette fois, la mesure sera centrée sur la face 1 et on mesurera l'intensité notée I'^- qui est aussi fonction des spectres de rugosité des deux faces de l'échantillon suivant la relation :

$$I'^-(\theta_0, \phi) = \left\{ C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} \gamma_1(\theta, \phi) + C_1^-(\theta_s) \frac{1}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \gamma_0(\theta, \phi) \quad (31)$$

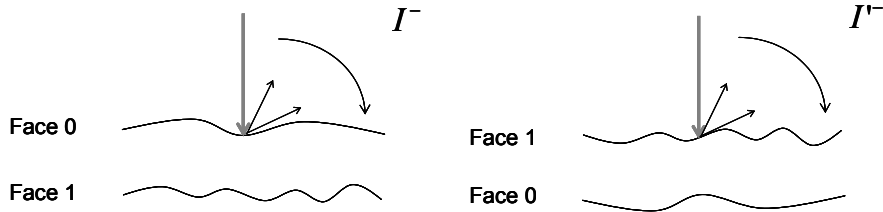


Figure 36: Méthode Pile et Face, configuration de mesure

L'intensité diffusée mesurée dans la première configuration peut donc s'écrire :

$$I^- = J_0^- \gamma_0 + J_1^- \gamma_1 \quad (32)$$

où les coefficients J_i^- sont définis, d'après la relation (30), par :

$$J_0^- = C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \quad (33)$$

$$J_1^- = C_1^-(\theta_s) \frac{1}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \quad (34)$$

La seconde configuration de mesure nous conduit à une relation analogue, avec les mêmes coefficients, mais, cette fois-ci, les spectres de rugosité sont inversés :

$$I'^- = J_0^- \gamma_1 + J_1^- \gamma_0 \quad (35)$$

Par conséquent, les relations (32) et (35) forment un système élémentaire de deux équations à deux inconnues, et les solutions en sont :

$$\gamma_0 = \frac{J_0^- I'^- - J_1^- I^-}{(J_0^-)^2 - (J_1^-)^2} \quad (36)$$

$$\gamma_1 = \frac{J_0^- I'^- - J_1^- I^-}{(J_0^-)^2 - (J_1^-)^2} \quad (37)$$

Ces dernières relations nous permettent a priori de séparer les contributions des deux faces et de déterminer le spectre de rugosité de chacune des deux faces, sous réserve que la sensibilité de notre méthode soit adéquate.

Notons, en outre, que les spectres pourraient aussi être obtenus à partir de deux indicatrices mesurées en transmission (I^+ et I'^+) ou encore à partir d'une courbe obtenue en réflexion couplée avec une courbe mesurée en transmission (I^- et I'^-). Dans le cas général où toutes les mesures peuvent être utilisées, les deux spectres peuvent donc être calculés par différents biais. Par souci de rigueur, les expressions pour une méthode en transmission sont données par :

$$I^+ = C_0^+(\theta_s) \frac{\beta(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \gamma_0(\theta, \phi) + \left\{ C_1^+(\theta_s) + C_1^-(\theta_0) \frac{R(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} T(\theta_s) \gamma_1(\theta, \phi) \quad (38)$$

et

$$I'^+ = C_0^+(\theta_s) \frac{\beta(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \gamma_1(\theta, \phi) + \left\{ C_1^+(\theta_s) + C_1^-(\theta_0) \frac{R(\theta_s)}{1-R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} T(\theta_s) \gamma_0(\theta, \phi) \quad (39)$$

Toutefois le succès de cette méthode sera étroitement lié à la sensibilité de la mesure et la précision des calculs, sur lesquelles il faut nous attarder ici. En particulier le poids de chaque interface dans le processus de diffusion doit être clairement établi. Si cette pondération a été largement étudiée dans le cas d'empilements multicouches, ce n'est pas le cas des substrats transparents épais qui requièrent une étude spéciale, en dépit de leur caractère en apparence simpliste.

II. Facteur de pondération de chaque interface

A priori, la méthode que nous avons proposée au paragraphe précédent fonctionne directement. Toutefois, nous avons négligé un paramètre important, qui concerne la pondération ou le poids à attribuer à chaque interface dans le processus de diffusion, au-delà de la valeur de la rugosité. Nous pourrions traiter ce problème de façon analogue à celui des couches minces et considérer le champ stationnaire comme l'excitateur de chaque interface, mais le problème est plus complexe ici compte tenu de l'épaisseur du substrat qui nous amène à prendre en compte les problèmes de cohérence ou moyennage. Rappelons que nous avons l'habitude de traiter le cas des substrats épais en considérant des réflexions multiples en

intensité pour la réflexion spéculaire (en intensité), mais il nous faudra ici revoir la base de ce raisonnement pour connaître avec rigueur les processus de diffusion, du moins en ce qui concerne l'excitation de la diffusion.

1. Définition

En fait, les équations (15) et (16) que nous avons utilisées pour caractériser la diffusion lumineuse ne sont valables que dans le cas d'une surface simple qui délimite un milieu semi infini. Or, dans notre cas précis, il s'agit d'un substrat et pas d'un milieu semi infini.

Pour une surface simple, nous savons que l'intensité diffusée est proportionnelle au module du champ électrique incident carré, ce qui s'écrit :

$$|E|^2 = |(1 + r_s)|^2 |E^+|^2 \quad (40)$$

où E^+ est le champ incident et r_s le coefficient de réflexion en amplitude de l'interface considérée. Cette contribution est prise en compte par les coefficients C^\pm . Intuitivement, nous pourrions être tentés, pour les substrats, de pondérer la contribution de l'interface 0 par la valeur 1, et celle de l'interface 1 par la valeur T_s , où T_s est le facteur de transmission du dioptre. Nous pourrions également, de façon plus appropriée, utiliser comme coefficients de pondération les facteurs de réflexion (R^*) et de transmission (T^*) en intensité d'un substrat transparent épais obtenus dans le cas de réflexions multiples :

$$R^* = \frac{2R_s}{1 + R_s} \quad (41)$$

$$T^* = \frac{T_s^2}{1 - R_s^2} = \frac{T_s}{1 + R_s} \quad (42)$$

où R_s et T_s sont les facteurs de réflexion et de transmission en énergie pour chaque dioptre. Ces dernières relations sont obtenues soit directement en sommant de façon intuitive des réflexions multiples en intensité, soit en moyennant sur la phase la série des réflexions multiples en amplitude, la moyenne étant justifiée par l'épaisseur du substrat. Dans tous les cas il est nécessaire de nous attarder sur ces raisonnements a priori classiques.

2. Calcul analytique

Il est nécessaire, pour définir rigoureusement le coefficient d'excitation de chaque face du substrat, de revenir à la diffusion dans le cas de couches minces transparentes, puis d'en extraire le champ stationnaire au niveau du dioptre concerné et enfin, compte tenu de l'épaisseur importante du substrat, de calculer la moyenne de ce champ ou de son carré en fonction des termes de phase. Rappelons que dans le cas d'un empilement de couches minces, le champ électrique stationnaire d'ordre 0 (ou spéculaire) E , au niveau d'un dioptre, nous donne le coefficient de pondération de la diffusion par ce dioptre. La Figure 37 se réfère au cas d'une couche mince de verre positionnée entre des superstrats et substrats d'air.

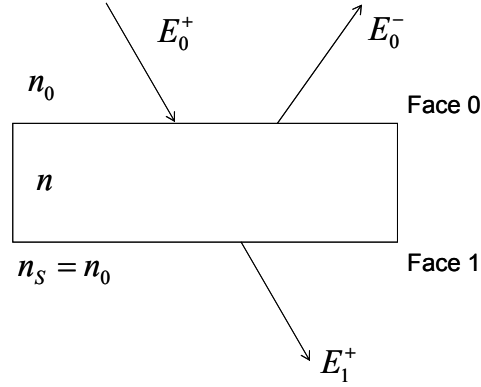


Figure 37: Cas d'une couche mince unique

Dans le cas d'une couche unique, les valeurs du champ stationnaire aux interfaces dépendent d'un facteur de phase η comme suit :

$$\begin{aligned} E_0 &= E_0(e^{j\eta}) \\ E_1 &= E_1(e^{j\eta}) \end{aligned} \quad (43)$$

avec :

$$\eta = \frac{2\pi}{\lambda} ne \cos i \quad (44)$$

où (ne) est l'épaisseur optique de la couche, i l'angle d'incidence dans la couche et λ la longueur d'onde d'éclairage. Un calcul complet serait classique à mener pour tracer la distribution du champ dans la couche mince, mais n'est pas utile ici pour notre objectif.

Le facteur d'excitation moyenne α_p , pour chaque surface d'un substrat épais peut en effet être défini comme:

$$\alpha_0 = \frac{\langle |E_0|^2 \rangle_\eta}{\Phi_0^+} \quad (45)$$

$$\alpha_1 = \frac{\langle |E_1|^2 \rangle_\eta}{\Phi_0^+} \quad (46)$$

où $\langle \rangle_\eta$ désigne la moyenne en fonction du terme η , et Φ_0^+ , le flux incident dans l'air. A ce stade, nous pouvons noter que les facteurs d'intensité (R^*) et (T^*) du substrat épais peuvent être calculés ainsi :

$$\begin{aligned} R^* &= \langle |r(e^{j\eta})|^2 \rangle_\eta \\ T^* &= \langle |t(e^{j\eta})|^2 \rangle_\eta \end{aligned} \quad (47)$$

où r et t sont les facteurs de réflexion et transmission de la couche mince en amplitude.

Nous pouvons désormais calculer les coefficients d'excitation en développant (45-46). Le champ au niveau du dioptré 0 est :

$$\begin{aligned}
 E_0 &= E_0^+ + E_0^- \\
 &= E_0^+(1+r)
 \end{aligned}
 \tag{48}$$

où r est le facteur de réflexion de la couche mince en amplitude, E_0^+ , le champ incident progressif et E_0^- , le champ rétrograde dans l'air (Figure 37). On obtient alors:

$$\begin{aligned}
 |E_0|^2 &= |1+r|^2 |E_0^+|^2 \\
 &= [1+|r|^2 + 2\text{Re}(r)] |E_0^+|^2
 \end{aligned}
 \tag{49}$$

Sachant que le facteur de réflexion en énergie du film est donné par $R = |r|^2$, et que le flux incident, dans le cas d'un éclairage en incidence normale, est proportionnel à $n_0 |E_0^+|^2$, on peut déduire de la relation (49):

$$\alpha_0 = [1 + \langle R \rangle_\eta + 2\text{Re}(\langle r \rangle_\eta)]
 \tag{50}$$

de la même manière, au niveau du dioptre 1 :

$$\begin{aligned}
 E_1 &= E_1^+ \\
 &= tE_0^+
 \end{aligned}
 \tag{51}$$

où E_1^+ est le champ progressif dans le substrat et t , le facteur de transmission de la couche. Nous avons alors :

$$\begin{aligned}
 |E_1|^2 &= T |E_0^+|^2 \\
 &= (1-R) |E_0^+|^2
 \end{aligned}
 \tag{52}$$

avec $T = |t|^2$, le facteur de transmission en énergie de la couche comprise entre l'air (milieu incident) et le verre (substrat), et $T = 1 - R$ en l'absence d'absorption.

Le résultat est donné par:

$$\alpha_1 = 1 - \langle R \rangle_\eta
 \tag{53}$$

Par conséquent, dans la relation (30) les spectres doivent être multipliés par les facteurs de pondération α_0 et α_1 donnés par:

$$\boxed{\alpha_0 = 1 + \langle R \rangle_\eta + 2\text{Re}(\langle r \rangle_\eta)}
 \tag{54}$$

$$\boxed{\alpha_1 = 1 - \langle R \rangle_\eta}
 \tag{55}$$

L'indice n_0 n'apparaît pas dans les relations (54-55) car la normalisation a déjà été prise en compte dans nos codes de simulation. Ces relations nous donnent donc seulement les corrections par pondération des deux interfaces. Les valeurs moyennes des coefficients de réflexion en énergie $\langle R \rangle_\eta$ et en amplitude $\langle r \rangle_\eta$ donnés équations (102-103) peuvent être calculées de différentes manières, que ce soit en considérant les réflexions multiples ou par la

méthode des admittances. Nous les rappelons ci-dessous, par souci de rigueur et de vérification, mais aussi pour accéder à la valeur de la partie réelle du coefficient en amplitude.

a. Réflexions multiples

On considère le substrat transparent comme une couche unique dans laquelle ont lieu des réflexions multiples comme décrit Figure 38. Le coefficient de réflexion du dioptre est alors :

$$\begin{aligned}
 r(\eta) &= r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} + t_0 r_1^2 t'_0 r'_0 e^{4j\eta} + t_0 r_1^3 t'_0 r'^0{}^2 e^{6j\eta} + \dots \\
 &= r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} (1 + r_1 r'_0 e^{2j\eta} + r_1^2 r'^0{}^2 e^{4j\eta} + \dots) \\
 &= r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \frac{1}{1 - r_1 r'_0 e^{2j\eta}}
 \end{aligned} \tag{56}$$

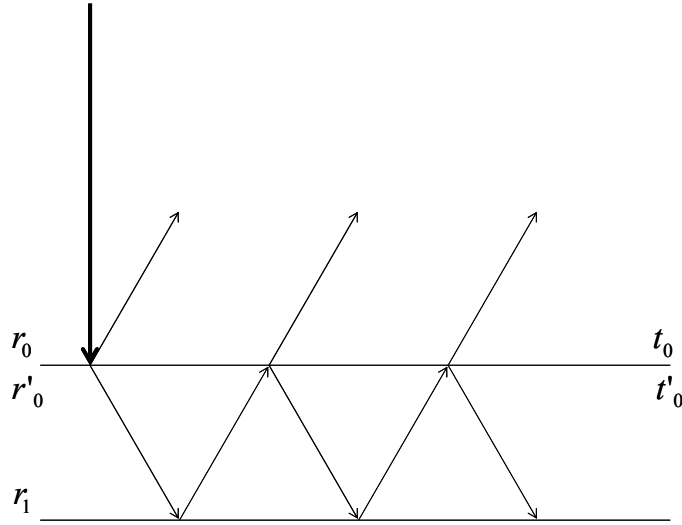


Figure 38 : Réflexions multiples à l'intérieur du dioptre

Les coefficients que nous cherchons à calculer sont :

$$\text{Re}(\langle r \rangle_\eta) = \text{Re} \left(\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} r(\eta) d\eta \right) \tag{57}$$

et

$$\langle R \rangle_\eta = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} R(\eta) d\eta \tag{58}$$

Tout d'abord :

$$\begin{aligned}
 \langle r \rangle_\eta &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} r(\eta) d\eta \\
 &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \left[r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \frac{1}{1 - r_1 r'_0 e^{2j\eta}} \right] d\eta \\
 &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} r_0 d\eta + \frac{t_0 r_1 t'_0}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{e^{2j\eta}}{1 - r_1 r'_0 e^{2j\eta}} d\eta \\
 &= r_0 + 0 \\
 &= r_0
 \end{aligned} \tag{59}$$

Ensuite:

$$\begin{aligned}
 \langle R \rangle_\eta &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} R(\eta) d\eta \\
 &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} |r(\eta)|^2 d\eta
 \end{aligned} \tag{60}$$

Or,

$$r(\eta) = \frac{-r_0 + \cos(2\eta)r_1(r_0 r'_0 - t_0 t'_0) + j \sin(2\eta)r_1(r_0 r'_0 - t_0 t'_0)}{-1 + \cos(2\eta)r_1 r'_0 + j \sin(2\eta)r_1 r'_0} \tag{61}$$

Par conséquent :

$$\begin{aligned}
 R(\eta) &= \frac{|-r_0 + \cos(2\eta)r_1(r_0 r'_0 - t_0 t'_0) + j \sin(2\eta)r_1(r_0 r'_0 - t_0 t'_0)|^2}{|-1 + \cos(2\eta)r_1 r'_0 + j \sin(2\eta)r_1 r'_0|^2} \\
 &= \frac{r_0^2 + r_0^2 r_1^2 r'_0{}^2 - 2r_0 r_1^2 t_0 r'_0 t'_0 + r_1^2 t_0^2 t'_0{}^2 - 2 \cos(2\eta)r_0 r_1 (r_0 r'_0 - t_0 t'_0)}{1 - \cos(2\eta)r_1 r'_0 + r_1^2 r'_0{}^2}
 \end{aligned} \tag{62}$$

$$\begin{aligned}
 \langle R \rangle_\eta &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} R(\eta) d\eta \\
 &= \frac{1}{2\pi} \left[r_0^2 + r_0^2 r_1^2 (r'_0)^2 - 2r_0 r_1^2 t_0 r'_0 t'_0 + r_1^2 t_0^2 (r'_0)^2 \right] \int_0^{2\pi} \frac{d\eta}{1 + r_1^2 (r'_0)^2 - \cos(2\eta)r_1 r'_0} \\
 &\quad - \frac{1}{2\pi} [2r_0 r_1 (r_0 r'_0 - t_0 t'_0)] \int_0^{2\pi} \frac{\cos(2\eta)}{1 + r_1^2 (r'_0)^2 - \cos(2\eta)r_1 r'_0} d\eta
 \end{aligned} \tag{63}$$

$$\begin{aligned}
 \langle R \rangle_\eta &= \frac{1}{2\pi} \left[r_0^2 + r_0^2 r_1^2 (r'_0)^2 - 2r_0 r_1^2 t_0 r'_0 t'_0 + r_1^2 t_0^2 (r'_0)^2 \right] \frac{2\pi}{\frac{1 - r_1 r'_0}{1 + r_1 r'_0} (1 + r_1 r'_0)^2} \\
 &\quad - \frac{1}{2\pi} [2r_0 r_1 (r_0 r'_0 - t_0 t'_0)] \frac{\pi \left[-1 + \frac{1 - r_1 r'_0}{1 + r_1 r'_0} + 2r_1 r'_0 + r_1^2 (r'_0)^2 \left(-1 + \frac{1 - r_1 r'_0}{1 + r_1 r'_0} \right) \right]}{r_1 r'_0 \frac{1 - r_1 r'_0}{1 + r_1 r'_0} (1 + r_1 r'_0)^2}
 \end{aligned} \tag{64}$$

d'où :

$$\langle R \rangle_\eta = r_0^2 + \frac{r_1^2 t_0^2 t_0'^2}{1 - r_1^2 r_0'^2} \quad (65)$$

Au final, on obtient :

$$\boxed{\text{Re}(\langle r \rangle_\eta) = r_0} \quad (66)$$

$$\boxed{\langle R \rangle_\eta = r_0^2 + \frac{r_1^2 t_0^2 t_0'^2}{1 - r_1^2 r_0'^2}} \quad (67)$$

b. Méthode des admittances

On considère le substrat comme une couche unique, et on va chercher à calculer le coefficient de réflexion r_a de l'empilement, substrat (air), couche (lame de verre), superstrat (air). Sachant que :

$$r_a = \frac{\tilde{n}_0 - Y_0}{\tilde{n}_0 + Y_0} \quad (68)$$

Y_0 étant l'admittance de l'empilement au niveau du dioptre 0, donc déduite de $Y_l = \tilde{n}_s$ par la relation de récurrence suivante :

$$Y_0 = \frac{(-j\tilde{n} \sin \eta + Y_1 \cos \eta)}{\left(-j \frac{Y_1}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right)} \quad (69)$$

Notons ici la présence des indices effectifs \tilde{n} donnés pour chaque polarisation par :

$$\begin{aligned} \tilde{n} &= n \cos i & (\text{TE}) \\ \tilde{n} &= \frac{n}{\cos i} & (\text{TM}) \end{aligned} \quad (70)$$

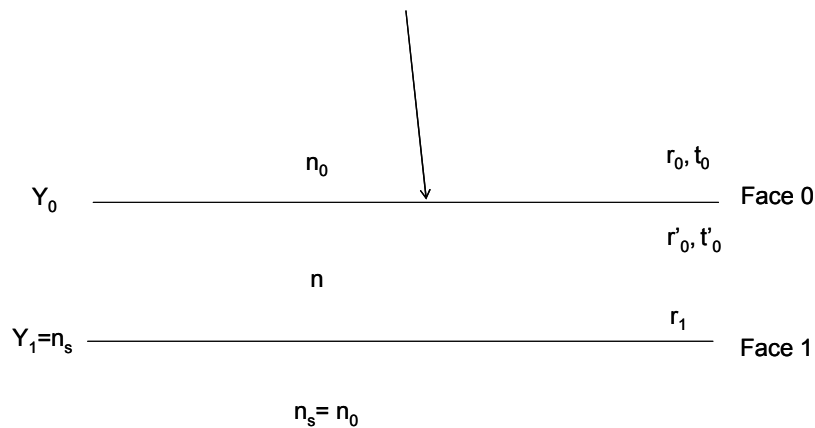


Figure 39 : Calcul du coefficient de réflexion avec les admittances

Cette fois encore, les coefficients que nous cherchons sont :

$$\text{Re}(\langle r_a \rangle_\eta) = \text{Re} \left(\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} r_a(\eta) d\eta \right) \quad (71)$$

et

$$\langle R_a \rangle_\eta = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} R_a(\eta) d\eta \quad (72)$$

on a :

$$\begin{aligned} Y_0 &= \frac{(-j\tilde{n} \sin \eta + Y_1 \cos \eta)}{\left(-j \frac{Y_1}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right)} \\ &= \frac{(-j\tilde{n} \sin \eta + \tilde{n}_s \cos \eta)}{\left(-j \frac{\tilde{n}_s}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right)} \end{aligned} \quad (73)$$

ce qui nous permet d'écrire:

$$\begin{aligned} r_a(\eta) &= \frac{\tilde{n}_0 - Y_0}{\tilde{n}_0 + Y_0} \\ &= \frac{\tilde{n}_0 - \frac{(-j\tilde{n} \sin \eta + \tilde{n}_s \cos \eta)}{\left(-j \frac{\tilde{n}_s}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right)}}{\tilde{n}_0 + \frac{(-j\tilde{n} \sin \eta + \tilde{n}_s \cos \eta)}{\left(-j \frac{\tilde{n}_s}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right)}} \\ &= \frac{\tilde{n}_0 \left(-j \frac{\tilde{n}_s}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right) - (-j\tilde{n} \sin \eta + \tilde{n}_s \cos \eta)}{\tilde{n}_0 \left(-j \frac{\tilde{n}_s}{\tilde{n}} \sin \eta + \cos \eta\right) + (-j\tilde{n} \sin \eta + \tilde{n}_s \cos \eta)} \\ &= \frac{j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 - \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_0 \tilde{n}_s)}{j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0 \tilde{n}_s)} \end{aligned} \quad (74)$$

$$r_a(\eta) = \frac{2j\tilde{n} \sin(2\eta)\tilde{n}_0(\tilde{n}^2 - 2\tilde{n}_s) + \cos(2\eta)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) + (-\tilde{n} + \tilde{n}_0)(\tilde{n} + \tilde{n}_0)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2)}{4\tilde{n}^2\tilde{n}_0\tilde{n}_s + \tilde{n}_0^2(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + \cos(2\eta)(-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) + \tilde{n}^2(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2)} \quad (75)$$

donc :

$$\begin{aligned} \text{Re}(\langle r_a \rangle_\eta) &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\cos(2\eta)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) + (-\tilde{n} + \tilde{n}_0)(\tilde{n} + \tilde{n}_0)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2)}{4\tilde{n}^2\tilde{n}_0\tilde{n}_s + (\tilde{n}_0^2 + \tilde{n}^2)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + \cos(2\eta)(-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2)} d\eta \\ &= \frac{1}{2\pi} (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) \int_0^{2\pi} \frac{\cos(2\eta)}{4\tilde{n}^2\tilde{n}_0\tilde{n}_s + (\tilde{n}_0^2 + \tilde{n}^2)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + \cos(2\eta)(-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2)} d\eta \\ &\quad + \frac{1}{2\pi} (-\tilde{n} + \tilde{n}_0)(\tilde{n} + \tilde{n}_0)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) \int_0^{2\pi} \frac{d\eta}{4\tilde{n}^2\tilde{n}_0\tilde{n}_s + (\tilde{n}_0^2 + \tilde{n}^2)(\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + \cos(2\eta)(-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2)(\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2)} \end{aligned} \quad (76)$$

on a alors:

$$\operatorname{Re}\langle r_a \rangle_\eta = \frac{n_0 - n}{n_0 + n} \quad (77)$$

En outre :

$$\langle R_a \rangle_\eta = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} R_a(\eta) d\eta = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} |r_a(\eta)|^2 d\eta \quad (78)$$

$$\begin{aligned} R_a &= \left| \frac{j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 - \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_0 \tilde{n}_s)}{j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0 \tilde{n}_s)} \right|^2 \\ &= \frac{\left[j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 - \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_0 \tilde{n}_s) \right] \left[-j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 - \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_0 \tilde{n}_s) \right]}{\left[j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0 \tilde{n}_s) \right] \left[-j\tilde{n} \cos \eta (\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s) - \sin \eta (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0 \tilde{n}_s) \right]} \\ &= \frac{-4\tilde{n}^2 \tilde{n}_0 \tilde{n}_s + \tilde{n}^2 (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + \tilde{n}_0^2 (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + (-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2) (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) \cos(2\eta)}{\tilde{n}^4 + \tilde{n}^2 \tilde{n}_0^2 + 4\tilde{n}^2 \tilde{n}_0 \tilde{n}_s + \tilde{n}^2 \tilde{n}_s^2 + (-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2) (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) \cos(2\eta)} \end{aligned} \quad (79)$$

d'où :

$$\begin{aligned} \langle R_a \rangle_\eta &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{-4\tilde{n}^2 \tilde{n}_0 \tilde{n}_s + \tilde{n}^2 (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + \tilde{n}_0^2 (\tilde{n}^2 + \tilde{n}_s^2) + (-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2) (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) \cos(2\eta)}{\tilde{n}^4 + \tilde{n}^2 \tilde{n}_0^2 + 4\tilde{n}^2 \tilde{n}_0 \tilde{n}_s + \tilde{n}^2 \tilde{n}_s^2 + (-\tilde{n}^2 + \tilde{n}_0^2) (\tilde{n}^2 - \tilde{n}_s^2) \cos(2\eta)} d\eta \\ &= \frac{1}{2\pi} \frac{\tilde{n}^2 \tilde{n}_0 + \tilde{n}^2 \tilde{n}_s - 4\tilde{n} \tilde{n}_0 \tilde{n}_s + \tilde{n}_0^2 \tilde{n}_s + \tilde{n}_0 \tilde{n}_s^2}{\tilde{n}^2 \tilde{n}_0 + \tilde{n}^2 \tilde{n}_s + \tilde{n}_0^2 \tilde{n}_s + \tilde{n}_0 \tilde{n}_s^2} \end{aligned} \quad (80)$$

Pour résumer, par cette deuxième méthode, on a :

$$\boxed{\operatorname{Re}\langle r_a \rangle_\eta = \frac{n_0 - n}{n_0 + n}} \quad (81)$$

$$\boxed{\langle R_a \rangle_\eta = \frac{n^2 n_0 + n^2 n_s - 4n n_0 n_s + n_0^2 n_s + n_0 n_s^2}{n^2 n_0 + n^2 n_s + n_0^2 n_s + n_0 n_s^2}} \quad (82)$$

c. Comparaison

Nous allons commencer par comparer les résultats obtenus par nos deux méthodes, pour vérifier que nous avons bien la même chose.

Sachant que :

$$r_0 = \frac{n_0 - n}{n_0 + n} \quad (83)$$

$$t_0 = \frac{2n_0}{n_0 + n} \quad (84)$$

$$t'_0 = \frac{2n}{n_0 + n} \quad (85)$$

$$r'_0 = \frac{n - n_0}{n_0 + n} \quad (86)$$

$$r_1 = \frac{n - n_s}{n_s + n} \quad (87)$$

les relations (66), (67), (81) et (82) nous permettent d'écrire:

$$\boxed{\operatorname{Re}\langle r \rangle_\eta = \operatorname{Re}\langle r_a \rangle_\eta = r_0} \quad (88)$$

$$\boxed{\langle R \rangle_\eta = \langle R_a \rangle_\eta = r_0^2 + \frac{r_1^2 t_0^2 t_0'^2}{1 - r_1^2 r_0'^2}} \quad (89)$$

On a alors : $\operatorname{Re} \langle r \rangle_\eta = \operatorname{Re} \langle r_a \rangle_\eta$ et $\langle R \rangle_\eta = \langle R_a \rangle_\eta$

Nos deux méthodes donnent les mêmes résultats.

En outre, dans notre cas, $n_s = n_0$, par conséquent :

$$\begin{aligned} \langle R \rangle_\eta = \langle R_a \rangle_\eta &= \frac{2n^2 n_0 - 4nn_0^2 + 2n_0^3}{2n^2 n_0 + 2n_0^3} \\ &= \frac{n^2 - 2nn_0 + n_0^2}{n^2 + n_0^2} \\ &= \frac{(n - n_0)^2}{n^2 + n_0^2} \end{aligned} \quad (90)$$

Or,

$$\begin{aligned} R^* &= \frac{2R_s}{1 + R_s} \\ &= \frac{2R_0}{1 + R_0} \\ &= \frac{(n_0 - n)^2}{n^2 + n_0^2} \end{aligned} \quad (91)$$

d'où :

$$\langle R \rangle_\eta = \langle R_a \rangle_\eta = R^* \quad (92)$$

On retrouve bien ici la valeur R^* que nous avons l'habitude de calculer en sommant les réflexions multiples en intensité.

d. Autre méthode

Notons également que nous aurions pu obtenir ces résultats de façon très directe, en considérant que la moyenne de la série est la série des moyennes, en amplitude ou en intensité. En effet :

$$r(\eta) = r_0 + t_0 r_1 t_0' e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r_0' e^{2j\eta})^k \quad (93)$$

En amplitude, on a alors :

$$\begin{aligned}
 \langle r(\eta) \rangle_\eta &= \left\langle r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right\rangle_\eta \\
 &= \left\langle r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} r_1^k r'_0{}^k e^{2jk\eta} \right\rangle_\eta \\
 &= r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} r_1^k r'_0{}^k \langle e^{2jk\eta} \rangle_\eta
 \end{aligned} \tag{94}$$

or, $\langle e^{2jk\eta} \rangle_\eta = 0$, par conséquent :

$$\langle r(\eta) \rangle_\eta = r_0 \tag{95}$$

En intensité,

$$\begin{aligned}
 |r(\eta)|^2 &= \left| r_0 + t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 \\
 &= |r_0|^2 + \left| t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 + 2 \operatorname{Re} \left(\bar{r}_0 t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta} \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right) \\
 &= |r_0|^2 + |t_0 r_1 t'_0 e^{2j\eta}|^2 \left| \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 + 2 r_0 t_0 r_1 t'_0 \sum_{k=0}^{+\infty} r_1^k r'_0{}^k \operatorname{Re}(e^{2j(k+1)\eta}) \\
 &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \left| \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 + 2 r_0 t_0 r_1 t'_0 \sum_{k=0}^{+\infty} r_1^k r'_0{}^k \operatorname{Re}(e^{2j(k+1)\eta})
 \end{aligned} \tag{96}$$

d'où

$$\begin{aligned}
 \langle |r(\eta)|^2 \rangle_\eta &= \langle r_0^2 \rangle_\eta + \left\langle (t_0 r_1 t'_0)^2 \left| \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 \right\rangle_\eta + \left\langle 2 r_0 t_0 r_1 t'_0 \sum_{k=0}^{+\infty} r_1^k r'_0{}^k \operatorname{Re}(e^{2j(k+1)\eta}) \right\rangle_\eta \\
 &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \left\langle \left| \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 \right\rangle_\eta + 2 r_0 t_0 r_1 t'_0 \sum_{k=0}^{+\infty} r_1^k r'_0{}^k \operatorname{Re}(\langle e^{2j(k+1)\eta} \rangle_\eta) \\
 &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \left\langle \left| \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 \right\rangle_\eta
 \end{aligned} \tag{97}$$

or :

$$\begin{aligned}
 \left| \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1 r'_0 e^{2j\eta})^k \right|^2 &= \sum_{k=0}^{+\infty} |r_1^k r'_0{}^k e^{2jk\eta}|^2 + \sum_{\substack{k=0 \\ k \neq p}}^{+\infty} \sum_{p=0}^{+\infty} 2 \operatorname{Re}(r_1^k r'_0{}^k e^{2jk\eta} r_1^p r'_0{}^p e^{-2jp\eta}) \\
 &= \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1^k r'_0{}^k)^2 + 2 \sum_{\substack{k=0 \\ k \neq p}}^{+\infty} \sum_{p=0}^{+\infty} r_1^{k+p} r'_0{}^{k+p} \operatorname{Re}(e^{2j(k-p)\eta})
 \end{aligned} \tag{98}$$

on peut donc écrire :

$$\begin{aligned}
 \langle |r(\eta)|^2 \rangle_\eta &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \left\langle \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1^k r'_0{}^k)^2 + 2 \sum_{\substack{k=0 \\ k \neq p}}^{+\infty} \sum_{p=0}^{+\infty} r_1^{k+p} r'_0{}^{k+p} \operatorname{Re}(e^{2j(k-p)\eta}) \right\rangle_\eta \\
 &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \left[\sum_{k=0}^{+\infty} \langle (r_1^k r'_0{}^k)^2 \rangle_\eta + 2 \sum_{\substack{k=0 \\ k \neq p}}^{+\infty} \sum_{p=0}^{+\infty} r_1^{k+p} r'_0{}^{k+p} \operatorname{Re} \langle e^{2j(k-p)\eta} \rangle_\eta \right] \quad (99) \\
 &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \sum_{k=0}^{+\infty} (r_1^2 r'_0{}^2)^k \\
 &= r_0^2 + (t_0 r_1 t'_0)^2 \frac{1}{1 - r_1^2 r'_0{}^2}
 \end{aligned}$$

on retrouve encore une fois :

$$\boxed{\langle r(\eta) \rangle_\eta = \operatorname{Re} \langle r \rangle_\eta = \operatorname{Re} \langle r_a \rangle_\eta = r_0} \quad (100)$$

et

$$\boxed{\langle |r(\eta)|^2 \rangle_\eta = \langle R \rangle_\eta = \langle R_a \rangle_\eta = R^*} \quad (101)$$

Nous n'avons toutefois pas voulu utiliser cette méthode de façon directe pour ne pas adresser les problèmes de limite ou de convergence.

e. Conséquences

Les valeurs utilisées par la suite seront, par conséquent :

$$\langle \operatorname{Re}(r) \rangle_\eta = r_s = \frac{n_0 - n}{n_0 + n} \quad (102)$$

$$\langle R \rangle_\eta = R^* = \frac{2R_s}{1 + R_s} \quad (103)$$

où r_s et R_s sont définis pour une interface air/verre unique, et $R_s = |r_s|^2$.

Les coefficients de pondération de chaque interface pour la diffusion sont donc :

$$\boxed{\begin{aligned} \alpha_0 &= 1 + 2 \left[r_s + \frac{R_s}{1 + R_s} \right] \\ &= 1 - 2\sqrt{R_s} + R^* \end{aligned}} \quad (104)$$

avec $r_s = -\sqrt{R_s}$.

et :

$$\boxed{\alpha_1 = \frac{1 - R_s}{1 + R_s} = \frac{T_s}{1 + R_s} = T^*} \quad (105)$$

avec T_s le facteur de transmission d'une interface air/verre unique.

La valeur du coefficient $\alpha_j = T^*$ montre tout d'abord que nous aurions pu nous fier à l'intuition et considérer une excitation donnée par la transmission classique d'un substrat

transparent épais, somme de transmission multiples en intensité. A l'inverse, la pondération de la première interface (α_0) n'est pas intuitive, et est éloignée d'une pondération homogène ($\alpha_0 = \alpha_1$). En effet, pour un substrat de verre ($n=1,5$), on obtient :

$$\left. \begin{array}{l} \alpha_0 = 0,677 \\ \alpha_1 = 0,923 \end{array} \right\} \Rightarrow \frac{\alpha_0}{\alpha_1} = 0,733 \quad (106)$$

Pour un substrat de Sélénium de zinc (ZnSe), dans l'infrarouge, avec un indice $n = 2,44$ à $\lambda = 2 \mu\text{m}$, on a :

$$\left. \begin{array}{l} \alpha_0 = 0,461 \\ \alpha_1 = 0,702 \end{array} \right\} \Rightarrow \frac{\alpha_0}{\alpha_1} = 0,657 \quad (107)$$

et pour un substrat de germanium, avec $n = 4,1$ à $\lambda = 2 \mu\text{m}$:

$$\left. \begin{array}{l} \alpha_0 = 0,324 \\ \alpha_1 = 0,460 \end{array} \right\} \Rightarrow \frac{\alpha_0}{\alpha_1} = 0,703 \quad (108)$$

A titre indicatif, les coefficients de pondération, ainsi que leur rapport sont tracés Figure 40 en fonction de l'indice du substrat pour une mesure faite dans l'air.

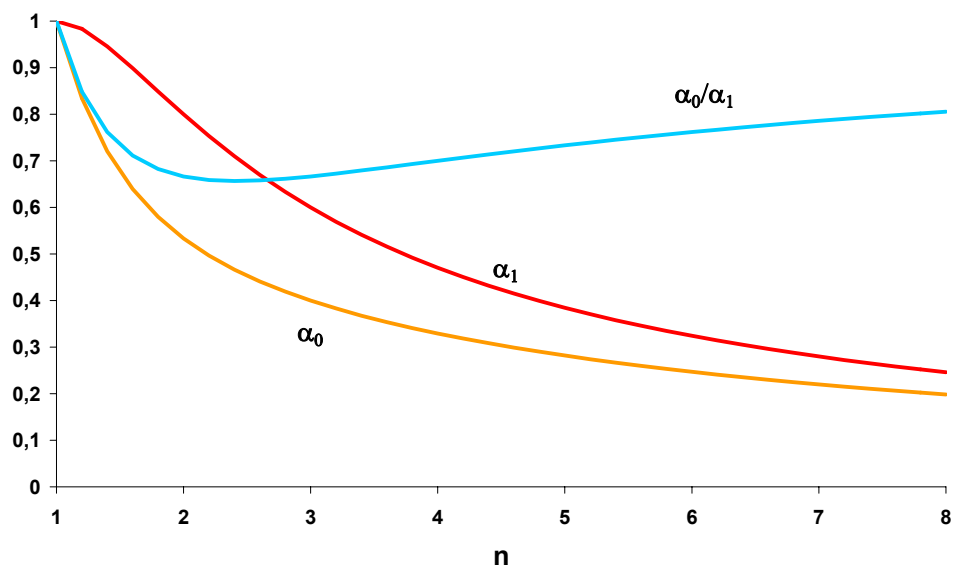


Figure 40 : Coefficients de pondération et fonction de l'indice du substrat

Comme nous le verrons plus loin, (voir paragraphe Partie A :Chapitre IV :IV), la procédure que nous proposons pour caractériser séparément les rugosités des deux faces est très sensible au moindre paramètre, ce qui donne un rôle clé à ces coefficients de pondération.

3. Exemples numériques

Grâce à ce que nous venons de voir dans les paragraphes précédents, nous avons maintenant tous les éléments en main pour calculer l'indicatrice de diffusion, I_r , d'un substrat transparent épais, connaissant les spectres de rugosité des deux surfaces de l'échantillon. Le calcul a été réalisé avec des spectres définis classiquement comme la transformée de Fourier de la somme de deux fonctions, l'une gaussienne et l'autre, exponentielle, comme suit :

$$\gamma(\sigma) = \frac{1}{4\pi} (\delta_g L_g)^2 \exp\left[-\left(\frac{\sigma L_g}{2}\right)^2\right] + \frac{1}{2\pi} \frac{(\delta_e L_e)^2}{[1 + (\sigma L_e)^2]^{\frac{3}{2}}} \quad (109)$$

les paramètres étant:

$$\delta_e = 0,5 \text{ nm}$$

$$L_e = 2000 \text{ nm}$$

$$\delta_g = 1 \text{ nm}$$

$$L_g = 20 \text{ nm}$$

et

$$\delta = \sqrt{\delta_e^2 + \delta_g^2} \quad (110)$$

Nous considérons également que les deux faces du substrat ont les mêmes spectres de rugosité.

Ces paramètres ont été choisis car ils sont très proches de ceux couramment obtenus dans des conditions expérimentales standards. La rugosité alors obtenue par intégration du spectre sur la bande passante correspondant à une mesure est : 0,382 nm. Il est à noter que cette valeur est différente de $\delta = \sqrt{\delta_e^2 + \delta_g^2} = 1,118 \text{ nm}$ qui est, quant à elle, caractéristique d'une bande passante infinie.

Sur la Figure 41, nous avons tracé l'indicatrice de diffusion obtenue dans le cas d'un substrat de verre dont les deux faces sont identiques et qui est éclairé à la longueur d'onde de 633 nm. La courbe 1 est l'indicatrice de diffusion qui serait mesurée si on caractérisait l'échantillon simulé. Elle prend en compte l'intégralité (les 2 faces) du substrat. La courbe 2 est l'indicatrice de diffusion que l'on mesurerait si on prenait en compte uniquement la contribution de la face avant du substrat. La courbe 3 est l'intensité qui serait mesurée si on était capable de prendre en compte uniquement la contribution, en diffusion, de la face arrière de l'échantillon.

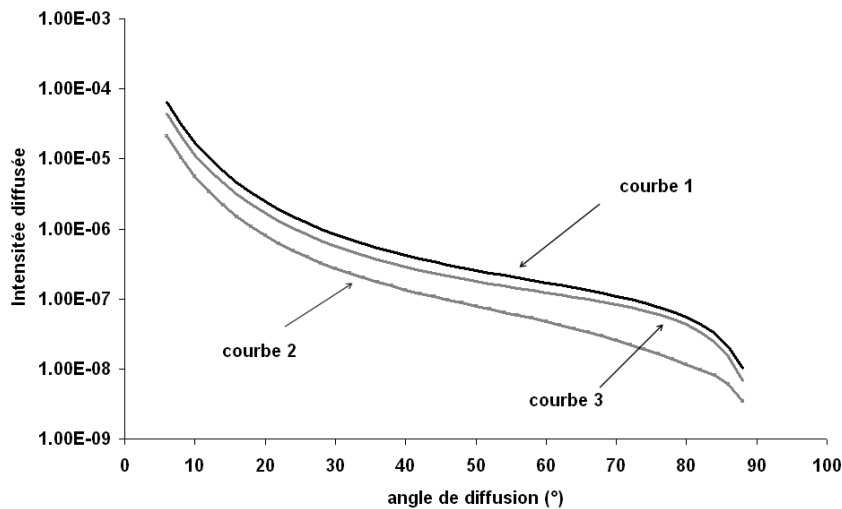


Figure 41 : Indicatrice de diffusion d'un substrat de verre dans son intégralité (courbe 1), contribution de la face 0 (courbe 2) et de la face 1 (courbe 3).

Sur la Figure 42, nous comparons l'indicatrice de diffusion obtenue dans le cas d'un substrat de verre (courbe 1) à celle qui serait obtenue dans le cas d'un unique dioptre qui délimiterait un milieu de verre semi infini présentant le même profil (courbe 2). Si on utilise la formule permettant de déduire d'une mesure de diffusion le spectre de rugosité d'une surface unique, la rugosité résultante est de 0,572 nm, au lieu de 0,347 nm. Ceci nous montre que l'erreur qui aurait été alors commise est de l'ordre de 64 %.

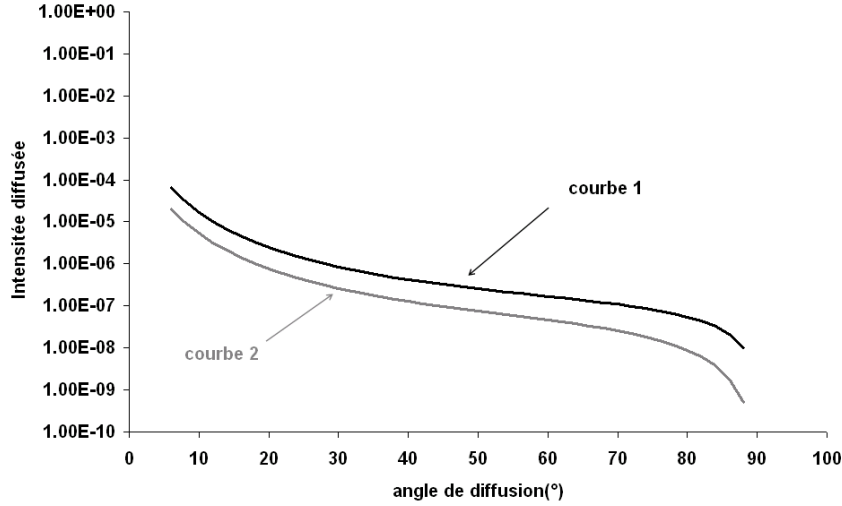


Figure 42 : Indicatrice de diffusion d'un substrat (courbe 1) et d'une interface délimitant un milieu semi infini (courbe 2).

Par conséquent, dans le cas des substrats transparents, afin d'obtenir une caractérisation fiable des échantillons, il est nécessaire de pouvoir mesurer séparément les contributions en diffusion des deux faces du substrat. Nous présentons maintenant une deuxième méthode de caractérisation par diffusion lumineuse des substrats transparents, qui prend en compte les facteurs de pondération que nous venons de définir.

III. Utilisation

Nous devons, pour prendre en compte les coefficients de pondération lors de notre mesure d'intensité, considérer les expressions 30 et 31 et multiplier les spectres de rugosité de chaque face par les coefficients de pondération correspondants.

Pour rappel, si on considère les deux configurations de mesure définies Figure 36, les intensités mesurées sont alors :

$$I^-(\theta_0, \phi) = \left\{ C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} \alpha_0 \gamma_0(\theta, \phi) + C_1^-(\theta_s) \frac{1}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \alpha_1 \gamma_1(\theta, \phi) \quad (111)$$

lorsque la mesure est centrée sur la face 0, et :

$$I^-(\theta_0, \phi) = \left\{ C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right\} \alpha_0 \gamma_1(\theta, \phi) + C_1^-(\theta_s) \frac{1}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \alpha_1 \gamma_0(\theta, \phi) \quad (112)$$

lorsque la mesure est centrée sur la face 1.

L'intensité diffusée mesurée dans la première configuration peut s'écrire :

$$I^- = D_0^- \gamma_0 + D_1^- \gamma_1 \quad (113)$$

où les coefficients D_i^- tiennent désormais compte des coefficients de pondération et sont définis, d'après la relation (30), par :

$$D_0^- = J_0^- \alpha_0 = \left[C_0^-(\theta_0) + C_0^+(\theta_s) \frac{R(\theta_s)}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right] \alpha_0 \quad (114)$$

$$D_1^- = J_1^- \alpha_1 = \left[C_1^-(\theta_s) \frac{1}{1 - R^2(\theta_s)} \beta(\theta_s) \right] \alpha_1 \quad (115)$$

La seconde configuration de mesure nous conduit à une relation similaire, avec les mêmes coefficients, mais, cette fois-ci, les spectres de rugosité sont inversés :

$$I'^- = D_0^- \gamma_1 + D_1^- \gamma_0 \quad (116)$$

Par conséquent, les relations (32) et (35) forment un système de deux équations à deux inconnues, et les solutions en sont :

$$\gamma_0 = \frac{D_0^- I^- - D_1^- I'^-}{(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2} \quad (117)$$

$$\gamma_1 = \frac{D_0^- I'^- - D_1^- I^-}{(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2} \quad (118)$$

Ces dernières relations nous permettent de séparer les contributions des deux faces et de déterminer le spectre de rugosité de chacune des deux faces, sous réserve que la sensibilité de notre méthode soit adéquate.

IV. Efficacité de la méthode

Si les équations (117) et (118) fournissent une solution élémentaire, il est clair cependant qu'il faut maintenant nous attarder sur les problèmes de précision. Développons d'abord l'erreur sur le spectre γ_0 .

$$\gamma_0 = \frac{D_0^- I^- - D_1^- I'^-}{(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2} \quad (119)$$

On a alors :

$$\begin{aligned}
 \frac{\Delta\gamma_0}{\gamma_0} &\leq \left| \frac{\Delta(D_0^- I^- - D_1^- I'^-)}{D_0^- I^- - D_1^- I'^-} \right| + \left| \frac{\Delta((D_0^-)^2 - (D_1^-)^2)}{(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2} \right| \\
 &\leq \frac{1}{|D_0^- I^- - D_1^- I'^-|} \left(|D_0^- \Delta I^- + D_1^- \Delta I'^-| + |\Delta D_0^- I^- + \Delta D_1^- I'^-| \right) \\
 &\quad + \frac{1}{|(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2|} |2D_0^- \Delta D_0^- + 2D_1^- \Delta D_1^-| \tag{120} \\
 &\leq \frac{1}{|D_0^- I^- - D_1^- I'^-|} \left(|D_0^- \Delta I^-| + |D_1^- \Delta I'^-| + |\Delta D_0^- I^-| + |\Delta D_1^- I'^-| \right) \\
 &\quad + \frac{2}{|(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2|} \left(|D_0^- \Delta D_0^-| + |D_1^- \Delta D_1^-| \right)
 \end{aligned}$$

Posons $\beta = \frac{I'^-}{I^-}$, on obtient, sachant que l'erreur commise sur I^- ne dépend pas du niveau mesuré :

$$\begin{aligned}
 \frac{\Delta I^-}{I^-} &= \frac{\Delta I'^-}{I'^-} \tag{121} \\
 \Rightarrow \Delta I'^- &= \beta \Delta I^-
 \end{aligned}$$

d'où :

$$\begin{aligned}
 \frac{\Delta\gamma_0}{\gamma_0} &\leq \frac{1}{|D_0^- I^- - D_1^- I'^-|} \left\{ (|D_0^-| + \beta |D_1^-|) |\Delta I^-| + (|\Delta D_0^-| + \beta |\Delta D_1^-|) I'^- \right\} \\
 &\quad + \frac{2}{|(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2|} \left(|D_0^- \Delta D_0^-| + |D_1^- \Delta D_1^-| \right) \tag{122} \\
 &\leq A + B + C
 \end{aligned}$$

avec :

$$\begin{aligned}
 A &= \frac{|\Delta I^-|}{|D_0^- I^- - D_1^- I'^-|} (|D_0^-| + \beta |D_1^-|) \\
 B &= \frac{I'^-}{|D_0^- I^- - D_1^- I'^-|} (|\Delta D_0^-| + \beta |\Delta D_1^-|) \tag{123} \\
 C &= \frac{2}{|(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2|} (|D_0^- \Delta D_0^-| + |D_1^- \Delta D_1^-|)
 \end{aligned}$$

Examinons ces termes séparément.

$$\begin{aligned}
 A &= \frac{|\Delta I^-|}{|D_0^- I^- - D_1^- I'^-|} (|D_0^-| + \beta |D_1^-|) \\
 &= \frac{|\Delta I^-|}{|I^-|} \frac{|D_0^-| + \beta |D_1^-|}{|D_0^- - \beta D_1^-|} \tag{124}
 \end{aligned}$$

On constate tout d'abord que l'erreur sur le spectre est proportionnelle à l'erreur relative $\frac{\Delta I^-}{I^-}$ sur la mesure, de l'ordre de quelques pour-cent. Quant au coefficient $\frac{|D_0^-| + \beta |D_1^-|}{|D_0^- - \beta D_1^-|}$, il va dépendre du rapport des intensités $\beta = \frac{I_1^-}{I_0^-}$. Ce coefficient a été tracé

Figure 43 pour différentes valeurs de $k = \frac{\gamma_0}{\gamma_1}$.

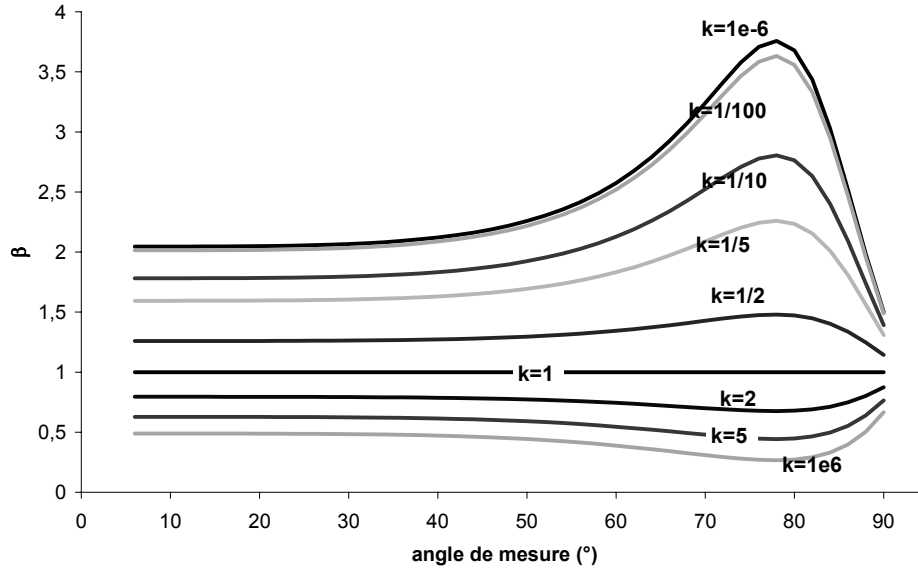


Figure 43 : Coefficient β pour différentes valeurs de k

On constate que même pour les très grandes valeurs de k , β reste borné entre 0,3 et 4. En outre, dans le cas d'un substrat dont les deux faces présentent une rugosité du même ordre de grandeur, ce coefficient est proche de 1. En pratique, les substrats qui seront caractérisés par cette méthode présentent des niveaux de diffusion équivalents que la mesure soit centrée sur la face 0 ou sur la face 1, on considèrera donc le cas où $\beta = 1$. Il ne nous reste plus qu'à

chiffrer $\varepsilon_1 = \frac{|D_0^-| + |D_1^-|}{|D_0^- - D_1^-|}$, ce qui est fait Figure 44.

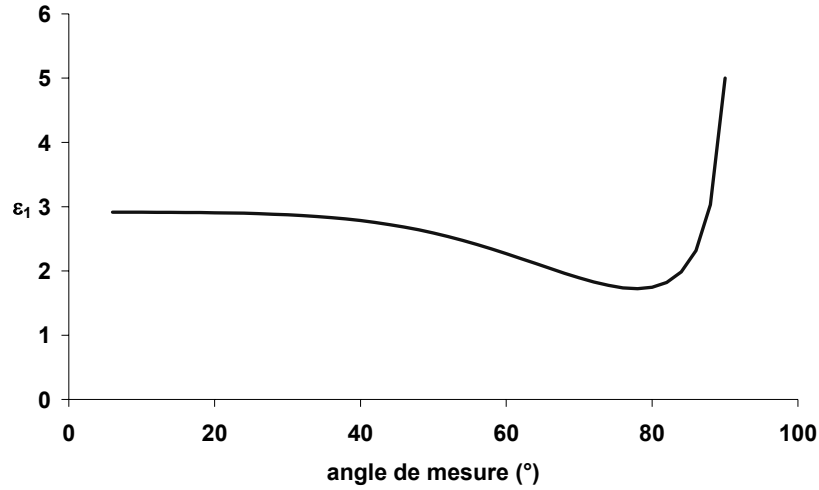


Figure 44 : Évolution angulaire du coefficient ε_1 en fonction de l'angle

Sur l'intégralité du domaine angulaire, on a : $\varepsilon_1 \leq 5$, par conséquent :

$$A \leq 5 \left| \frac{\Delta I^-}{I^-} \right| \quad (125)$$

Par ailleurs, empiriquement, on a :

$$\left| \frac{\Delta I^-}{I^-} \right| \leq 0,04 \quad (126)$$

Cette valeur étant liée à la stabilité de la puissance optique du laser.

d'où :

$$A \leq 0,2 \quad (127)$$

Examinons maintenant les deuxième et troisième termes :

$$\begin{aligned} B &= \frac{I^-}{|D_0^- I^- - D_1^- I^-|} \left(|\Delta D_0^-| + \beta |\Delta D_1^-| \right) \\ &= \frac{|\Delta D_0^-| + \beta |\Delta D_1^-|}{|D_0^- - \beta D_1^-|} \\ &\approx \frac{|\Delta D_0^-| + |\Delta D_1^-|}{|D_0^- - D_1^-|} \end{aligned} \quad (128)$$

et :

$$C = \frac{2}{|(D_0^-)^2 - (D_1^-)^2|} \left(|D_0^- \Delta D_0^-| + |D_1^- \Delta D_1^-| \right) \quad (129)$$

L'erreur sur les coefficients ΔD_i peut provenir d'une méconnaissance de l'indice de réfraction ou des angles. En pratique, les substrats concernés par ce type d'étude sont des substrats de verre et leur indice est connu à 0,1% près. En outre, la précision angulaire des mesures est inférieure au dixième de degré. Les termes B et C correspondant à cette marge d'erreur sont tracés Figure 45.

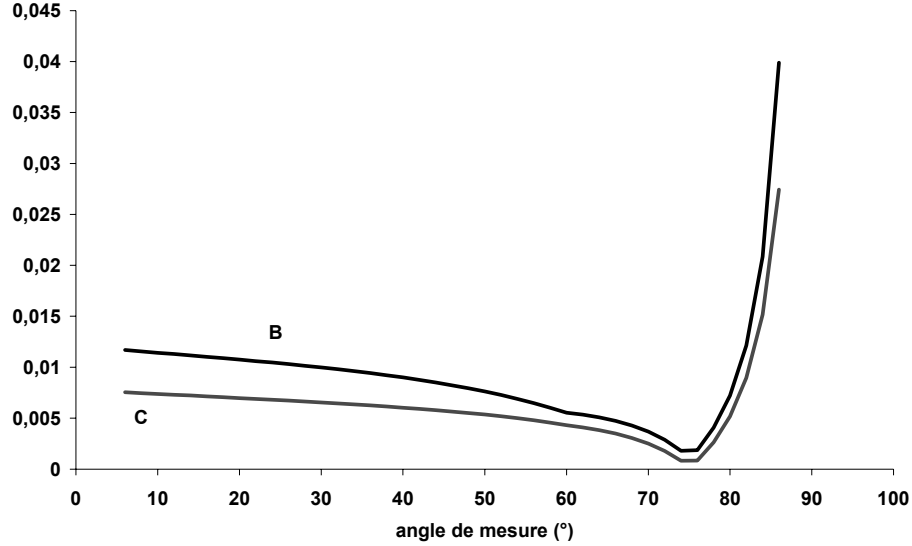


Figure 45 : Termes B et C pour un décalage angulaire de $0,1^\circ$ et un erreur relative sur l'indice de $0,1\%$

On constate que sur l'intégralité du domaine angulaire de mesure, on a $B < 0,04$ et $C < 0,04$.

On en déduit :

$$\begin{aligned}
 \frac{\Delta \gamma_0}{\gamma_0} &\leq A + B + C \\
 &\leq 5 \left| \frac{\Delta I^-}{I^-} \right| + 0,04 + 0,04 \\
 &\leq 5 \left| \frac{\Delta I^-}{I^-} \right| + 0,08
 \end{aligned} \tag{130}$$

on a alors :

$$\frac{\Delta \gamma_0}{\gamma_0} \leq 0,28 \tag{131}$$

La valeur donnée équation (131) est une majoration de l'erreur commise sur le spectre. Pour être plus précis, nous allons calculer cette erreur dans un cas particulier représentatif de nos futures applications. À cet effet, nous avons considéré comme dans la partie précédente, un substrat transparent dont les deux faces présentent le même profil, donc le même spectre de rugosité γ et la même rugosité rms $\delta = 0,349$ nm. Si on effectue une mesure de l'intensité diffusée par ce substrat dans des conditions parfaites, on obtient l'indicatrice donnée Figure 41 (courbe 1).

Si on effectue cette même mesure en commettant une erreur de 0,1% sur l'indice de l'échantillon et en ayant un décalage angulaire de 0,1°, on obtient le spectre de rugosité γ^* tracé Figure 46. La rugosité *rms* δ^* qui en découle est de 0,360 nm.

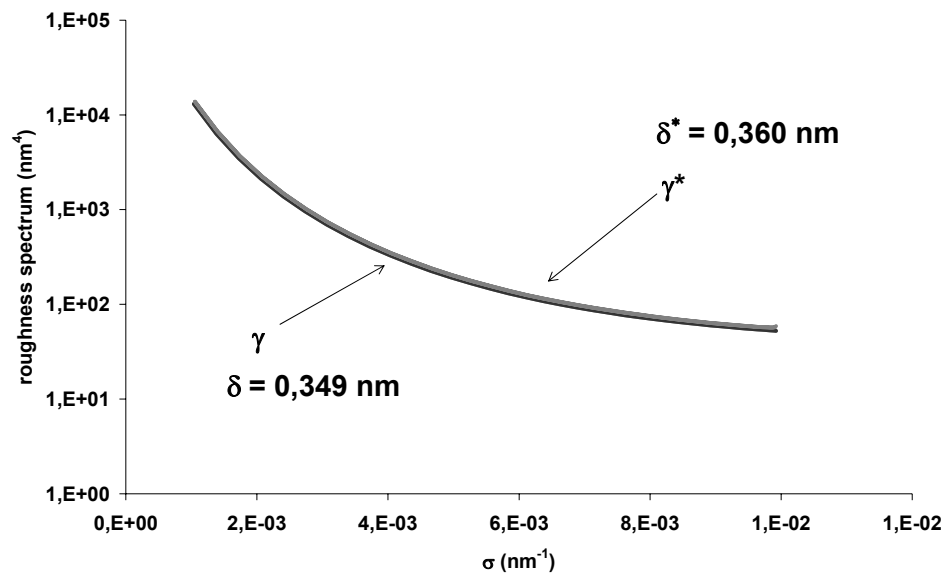


Figure 46 : Spectres de rugosité et rugosités *rms* initiaux et attendus avec un décalage angulaire de 0,1° et une erreur sur l'indice de 0,1%

L'erreur moyenne alors commise sur le spectre est de 6%, on est donc bien en dessous de la limite définie équation (131). De la même manière, l'erreur commise sur la rugosité est de 3%, ce qui, à cette échelle, correspond à une erreur de 0,1 Å.

De plus, pour mieux se rendre compte du niveau de précision nécessaire à la mise en œuvre de la séparation de faces, nous avons tracé les valeurs des coefficients *B* et *C* dans le cas d'une erreur sur l'indice de 5% et d'un décalage angulaire de 1°.

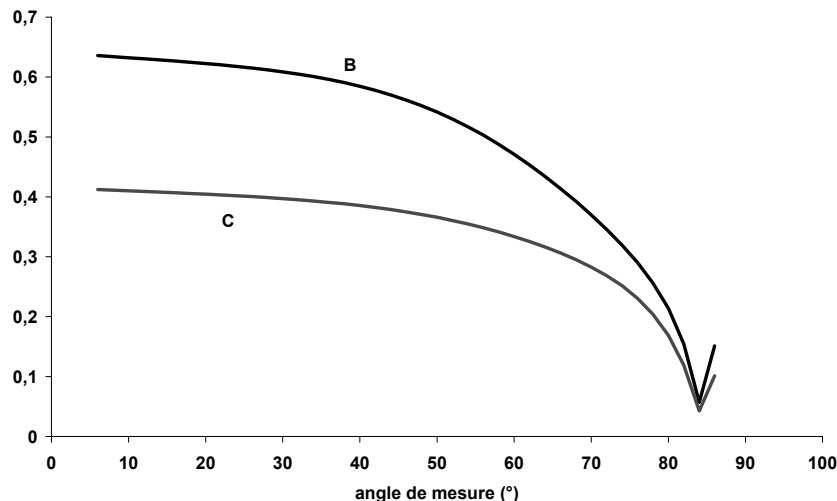


Figure 47: Termes *B* et *C* pour un décalage angulaire de 1° et un erreur relative sur l'indice de 5%

On a ici :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta\gamma_0}{\gamma_0} &\leq A + B + C \\ &\leq 5 \left| \frac{\Delta I^-}{I^-} \right| + 0,65 + 0,4 \\ &\leq 1,25 \end{aligned} \quad (132)$$

On peut voir que bien que les erreurs commises sur l'indice ou le décalage angulaire soient faibles, l'erreur qu'elles provoquent sur le calcul du spectre de rugosité est loin d'être négligeable. En effet, si on regarde Figure 48 le spectre de rugosité γ^* qui serait obtenu avec une telle erreur, on a une erreur moyenne de 45% par rapport au spectre réel γ . De la même manière, la rugosité *rms* δ^* qui serait alors mesurée est de 0,424 nm, alors que la rugosité *rms* réelle δ est de 0,349 nm, l'erreur commise sur la rugosité est donc de 22%.

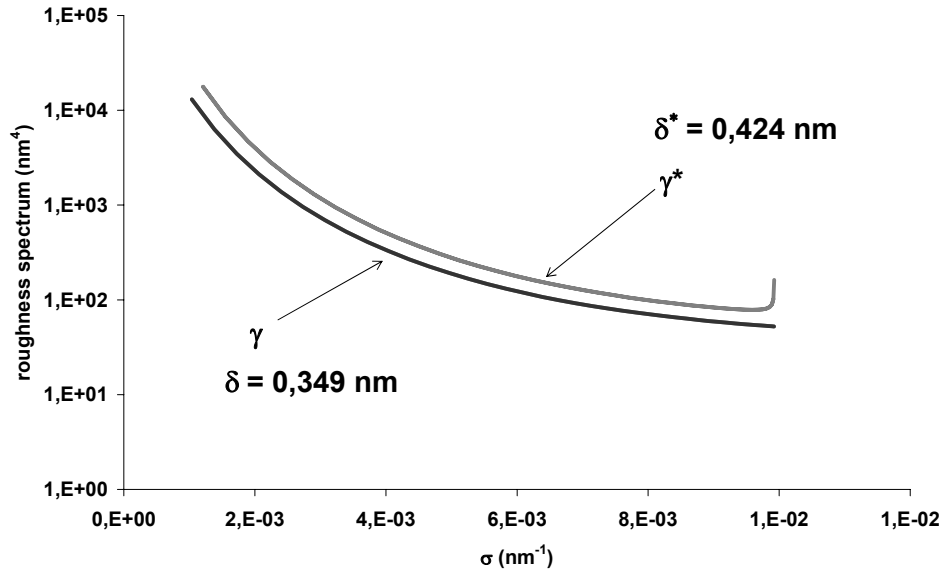


Figure 48 : Spectres de rugosité et rugosités *rms* initiaux et attendus avec un décalage angulaire de 1° et une erreur sur l'indice de 5%

Ceci confirme que la méthode de caractérisation des substrats transparents que nous proposons est très sensible au moindre paramètre.

En outre, il peut également exister des biais résultant d'erreurs de réglage des différents angles, provoquant des erreurs croissantes avec la direction de diffusion. Pour illustrer ceci, nous avons tracé Figure 49, le spectre de rugosité γ^* déduit d'une mesure faite dans le cas où le centre de rotation du détecteur est décalé de 5 mm par rapport à sa position.

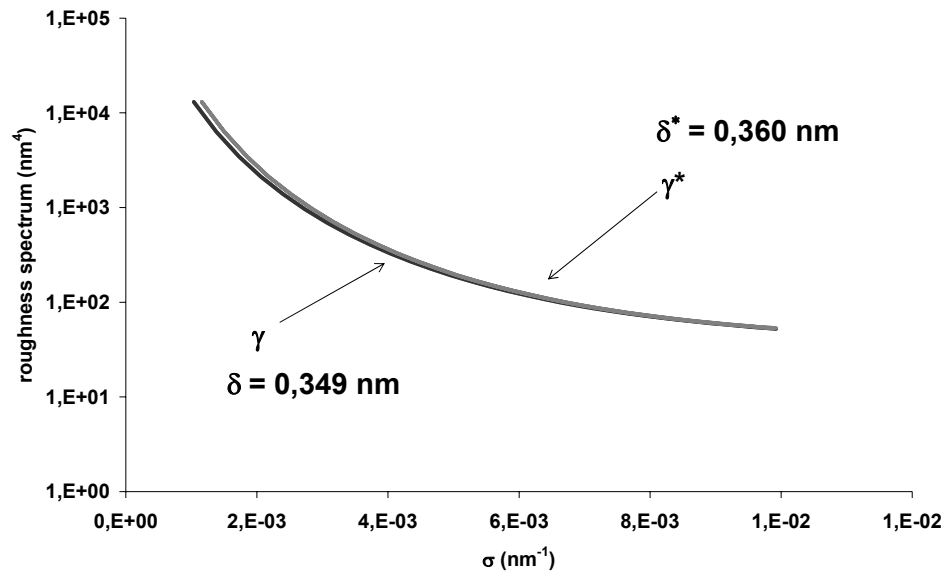


Figure 49 : Spectres de rugosité et rugosités rms initiaux et attendus avec un décalage du centre de rotation de 5 mm

Dans ce cas, la rugosité rms déduite de la mesure erronée est de 0,360 nm, alors que la rugosité réelle est de 0,349 nm. L'erreur commise est alors de 3%.

En conclusion, la méthode de séparation de faces permet de mesurer la rugosité d'une surface avec une bonne précision (de l'ordre de quelques pour-cent) tant que les erreurs commises sur l'indice et sur l'angle de mesure restent faibles.

En effet, pour $\frac{\Delta n}{n} = 0,03$ et $\Delta\theta = 0,5^\circ$, on a $\frac{\Delta\gamma_0}{\gamma_0} = 0,12$ et $\frac{\Delta\delta}{\delta} = 0,06$.

Par conséquent, pour que l'erreur commise sur le calcul de la rugosité des surfaces mesurées reste inférieure à 6%, il faut que l'indice du substrat soit connu avec une précision meilleure que 3% et que les angles de mesure soient précis à $0,5^\circ$ près. Ceci montre à quel point la méthode de caractérisation des substrats transparents proposée ici est sensible au moindre paramètre. Son application nécessite donc de connaître de manière précise les caractéristiques du substrat et les paramètres de mesure.

V. Applications

Afin de tester notre méthode, nous l'avons appliquée pour caractériser les mêmes échantillons qu'avec la méthode à filtrage d'étendue (Partie A :Chapitre III :III). Nous rappelons qu'il s'agit d'échantillons transparents de silice fondue superpolie, de 9 mm d'épaisseur et de 12,5 mm de diamètre. Pour chacun des échantillons, deux indicatrices de diffusion ont été mesurées, dans les deux configurations de mesure décrites Figure 36. Nous avons donc une mesure de BRDF centrée sur la face 0, à laquelle s'ajoute une seconde mesure centrée sur la face 1 de l'échantillon considéré.

Les mesures ont été effectuées avec le diffusomètre décrit Partie A :Chapitre I :I.2, et à la longueur d'onde de 633 nm. Comme dans la Partie A :Chapitre III :III, nous présenterons les résultats obtenus uniquement pour un échantillon, les autres ayant donné des résultats comparables.

Les spectres de rugosité ainsi mesurés pour l'échantillon étudié dans les parties précédentes sont tracés Figure 50 pour les 2 surfaces du substrat et nous donnent les rugosités

suivantes : $\delta_0 = 0,47$ nm et $\delta_1 = 0,55$ nm. A titre comparatif, nous avons tracé sur le même graphe les spectres qui auraient été obtenus si nous avions traité les indicatrices de diffusion mesurées comme celles d'un dioptre unique délimitant un milieu semi infini, ce qui en pratique correspond à ce que nous faisons dans le cas des substrats opaques. La différence entre les deux cas de figure est notable.

En effet, les rugosités qui auraient alors été déduites sont : $\delta_0 = 0,92$ nm et $\delta_1 = 0,84$ nm, ce qui correspond à une erreur de 96 % pour la face 0 et 53 % pour la face 1.

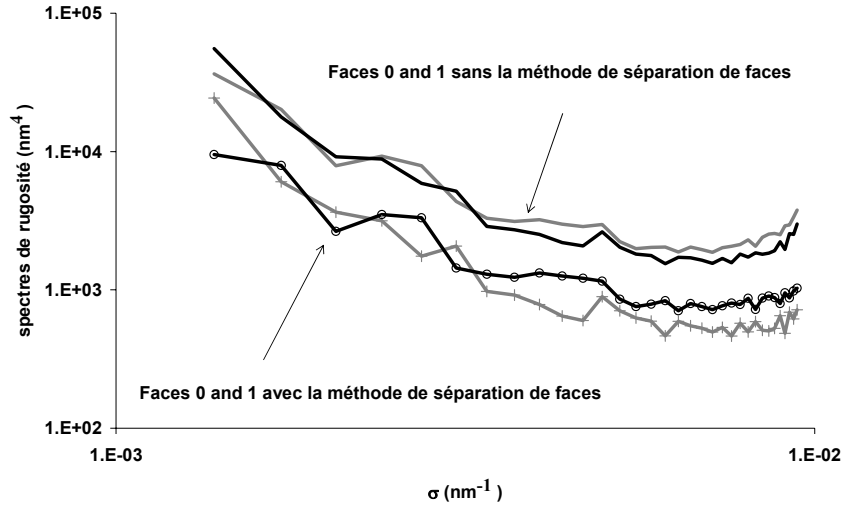


Figure 50 : Spectres de rugosité mesurés avec et sans la séparation de faces

En outre, nous avons effectué des mesures de rugosité avec cette méthode pour chacun des 11 échantillons caractérisés au préalable avec la méthode à filtrage d'étendue Partie A : Chapitre III : III. Les rugosités obtenues pour chaque face de chaque substrat sont données Figure 51.

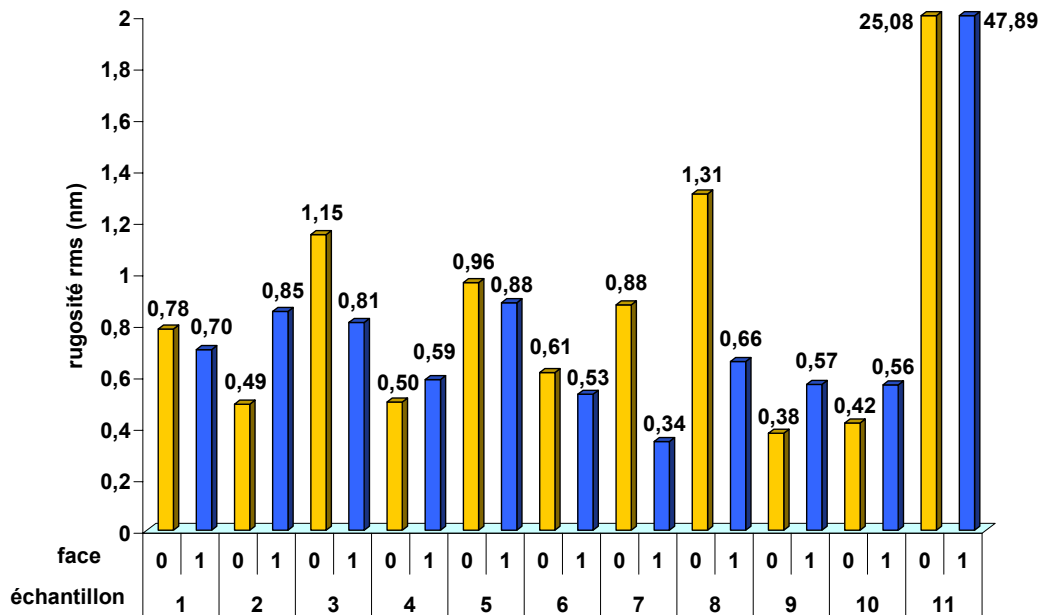


Figure 51: Rugosités moyennes des deux faces des échantillons

Il est important de noter que ces rugosités ne sont pas directement comparables avec celles obtenues avec la méthode à filtrage d'étendue. En effet, avec chaque méthode, le calcul de la rugosité *rms* se fait par intégration du spectre de rugosité sur le domaine de validité de la méthode. Or, nos deux méthodes n'ont pas les mêmes domaines de validité, donc les rugosités obtenues ne sont pas comparables directement. Une étude comparative est malgré tout considérée dans la partie suivante.

VI. Comparaison à la méthode à filtrage d'étendue

Nous avons constaté des résultats similaires avec les deux méthodes de mesures. Afin de vérifier leur compatibilité, nous allons comparer les deux méthodes l'une avec l'autre sur leur domaine commun de validité. Puis, par la suite, les résultats obtenus avec les deux méthodes seront comparés à ceux déduits de mesures de microscopie sur le même échantillon.

Nous avons vu dans la partie Partie A : Chapitre II : que les échantillons que nous avons testés ayant une épaisseur de 9 mm, le domaine angulaire sur lequel la séparation de face par filtrage d'étendue fonctionne est : $[25^\circ, 75^\circ]$. Nous allons donc, pour pouvoir comparer ces deux méthodes, considérer les résultats obtenus avec la méthode calculatoire seulement sur le domaine $[25^\circ, 75^\circ]$.

Pour cela, on considère maintenant sur la Figure 52 les rugosités obtenues pour chaque face avec chacune des méthodes, par intégration du spectre de rugosité sur le domaine commun de validité des deux méthodes. Nous les comparons également sur le même graphe à celles obtenues avec une mesure de diffusion classique, c'est à dire, sans séparation de faces.

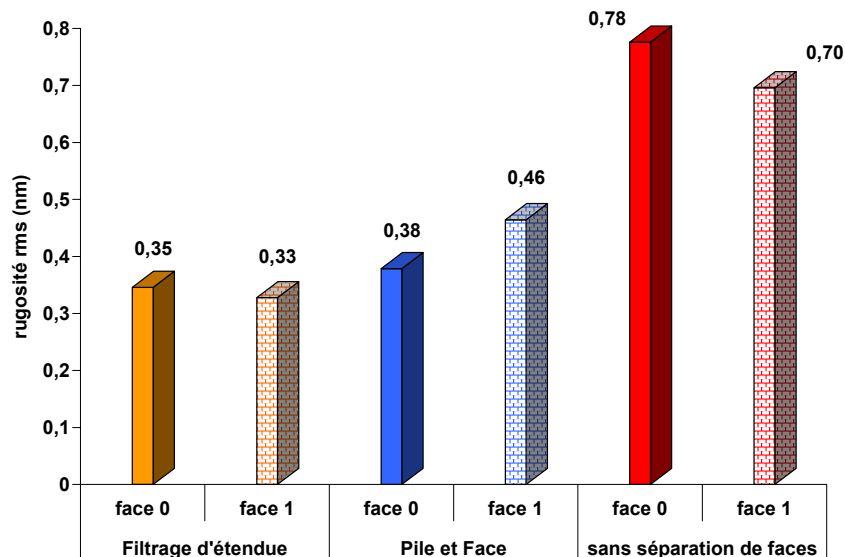


Figure 52 : Rugosités moyennes (en nm) pour chaque face de l'échantillon avec les deux méthodes de séparation de faces et une mesure de diffusion classique

On constate qu'avec les deux méthodes, on a une rugosité nettement inférieure à celle obtenue sans séparation de faces. En outre, l'écart entre les résultats obtenus pour chaque méthode est faible.

Les deux méthodes donnent des résultats comparables. Elles sont donc en accord l'une avec l'autre. Il nous reste désormais, comme dernière validation, à les comparer à une autre méthode de caractérisation indépendante de la diffusion lumineuse. Nous avons choisi pour cela la microscopie en champ proche.

Chapitre V :
Comparaison avec la
microscopie optique et en
champ proche

Dans ce paragraphe, nous souhaitons explorer directement le profil de nos substrats transparents par des techniques de microscopie : la microscopie interférentielle et la microscopie à force atomique (*AFM*). Nous pourrions ainsi comparer les mesures obtenues avec les mesures de diffusion lumineuse effectuées Partie A :Chapitre III :III et Partie A :Chapitre IV :V.

Dans une première étape, nous présenterons les outils de microscopie utilisés et nous expliquerons comment des mesures de diffusion lumineuse peuvent être comparées à des cartographies faites par microscopie. Puis, dans un second temps, nous présenterons les résultats obtenus sur nos échantillons transparents.

I. Techniques de microscopie utilisées

1. Profilomètre optique Talysurf



Figure 53 : Talysurf de la société Taylor Hobson

Le Talysurf CCI 3000 est un profilomètre optique interférentiel utilisant un objectif de Mirau (Figure 54) commercialisé par la société Taylor Hobson. Il permet d'obtenir des images en trois dimensions à haute résolution de surfaces relativement lisses. C'est un système d'imagerie sans contact et non destructif.

Une source de lumière blanche est utilisée pour éclairer à la fois une surface plane de référence et la surface à étudier. Les ondes renvoyées par ces deux surfaces sont ensuite recombinaées et le champ d'interférences qui en résulte est enregistré par une caméra CCD à grand nombre de pixels (1000 par 1000). Par suite du caractère temporellement incohérent de la source, le phénomène d'interférences ne présente de visibilité significative qu'au voisinage immédiat de la différence de marche nulle. La mesure de la topographie de la surface met donc en oeuvre un balayage en différence de marche de ce dispositif interférométrique à l'aide d'un système de déplacement vertical à cale piézo-électrique, un enregistrement synchrone des trames vidéo fournies par la caméra CCD et un traitement du signal permettant d'extraire, pour chaque pixel, la position du zéro de la différence de marche (qui correspond donc à la frange blanche ou au maximum du pic de corrélation).

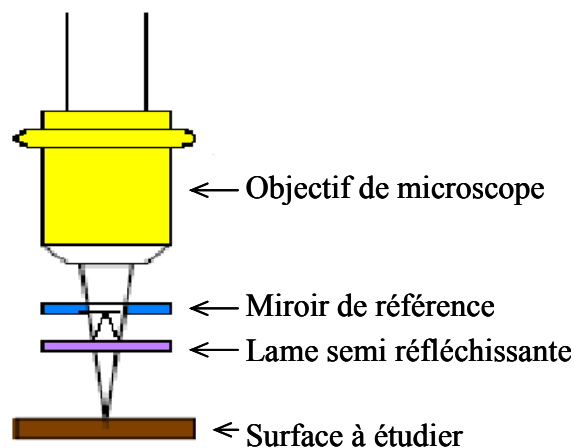


Figure 54 : Objectif de Mirau

Dans le cas des grandissements 20 et 50 que nous serons conduits à utiliser, le dispositif interférométrique est construit autour d'un objectif de Mirau (cf. Figure 54). Cette méthode permet d'avoir une résolution verticale de $0,1 \text{ \AA}$, et $1,36 \text{ \mu m}$ latéralement.

2. Microscopie à force atomique

La microscopie à force atomique ou AFM est basée sur les interactions instantanées existant entre une pointe approchée d'un échantillon et les atomes de surface de l'échantillon. Ces interactions sont à l'origine des forces de Van der Waals. Ces forces interviennent lors de tout phénomène d'interaction atomique ou moléculaire même dans le cas des molécules non polaires.

La détection des forces interatomiques peut s'effectuer dans deux modes différents : un mode attractif correspondant à des distances relativement grandes (de quelques nanomètres à quelques dixièmes de nanomètres) et un mode répulsif dans le cas où les distances sont inférieures à la distance d'équilibre.

L'élément essentiel de la microscopie à force atomique est la pointe. Cette dernière doit être particulièrement fine et suffisamment dure. La pointe est montée sur un microlevier qui doit avoir à la fois une grande fréquence de résonance et une faible raideur.

Deux modes sont possibles :

- détection à pression variable où la pointe, en contact avec l'objet, va suivre les aspérités de l'objet en faisant fléchir le microlevier. La position verticale de ce dernier va constituer le signal utile.
- détection à pression constante où la position du levier est asservie sur une valeur de référence correspondant généralement à une faible pression de la pointe sur l'objet. Le signal enregistré est alors la tension appliquée sur la céramique piézo-électrique contrôlant la distance en z .

Le microscope utilisé au laboratoire est un appareil de type VEECO (Topometrix Explorer). La pointe est portée par un ensemble de translateurs piézo-électriques. Le microlevier est placé au voisinage de l'objet de telle sorte que la pointe soit en contact avec la surface (mode de contact) ou à quelques Angströms de cette dernière (mode attractif). Le balayage, piloté par ordinateur, consiste à déplacer la sonde, l'objet restant fixe. La variation de la position verticale du microlevier est détectée grâce à la réflexion d'une diode laser sur sa surface.

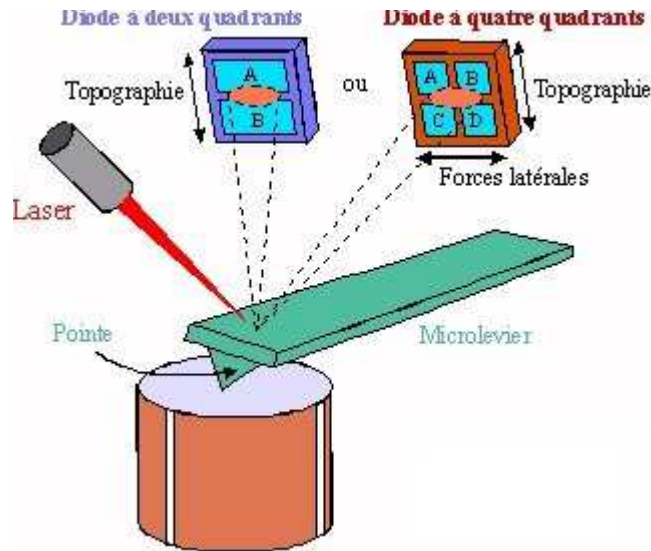


Figure 55 : Principe de fonctionnement d'un microscope à force atomique

Le détecteur est une photodiode à quatre quadrants (pour la détection des déplacements latéraux et transversaux du microlevier) ou à deux quadrants (détection des déplacements transversaux seulement).

Un troisième mode de fonctionnement de l'AFM est appelé mode résonnant. Il consiste à faire vibrer dans un plan vertical, l'ensemble pointe et microlevier, avec une faible amplitude en régime répulsif et une grande amplitude en régime attractif. L'amplitude de vibration va dépendre de la distance séparant la position moyenne de la pointe par rapport à l'objet.

Les mesures réalisées par la suite utilisent une diode à quatre quadrants et sont réalisées en mode contact.

Ces outils de microscopie nous permettent de faire des images des surfaces que nous voulons caractériser. Il nous appartient alors de les traiter afin d'en extraire des informations comparables à celles données par une mesure de diffusion lumineuse.

Nous utiliserons pour cela la méthodologie décrite dans le paragraphe suivant.

II. Comparaison microscopie / diffusion lumineuse : Principe

1. Analyse quantitative d'images de surfaces obtenues par microscopie

Les images obtenues par microscopie consistent en un échantillonnage bidimensionnel de la surface, donné par $h_{nm} = h(n\Delta x, m\Delta y)$. La taille de la surface mesurée vaut $L_x L_y = L^2$, l'échantillonnage est effectué avec $N_x N_y = N^2$ points. L'intervalle d'échantillonnage spatial est donc donné par $\Delta x = \Delta y = L/N$.

Avec la donnée de la surface échantillonnée, on peut calculer le spectre de rugosité^{23,34}. D'après la définition du spectre de rugosité :

$$\gamma(\vec{\sigma}) = \frac{4\pi^2}{S} \left| \hat{h}(\vec{\sigma}) \right|^2 \quad (133)$$

Comme nous travaillons à partir d'un échantillonnage de la surface, nous obtenons un ensemble discret de fréquences spatiales, qui nous conduit à effectuer des transformées de Fourier discrètes.

Le spectre sera donc échantillonné comme suit:

$$\gamma_{pq} = \gamma(p\Delta\sigma_x, q\Delta\sigma_y) = \left(\frac{2\pi}{L}\right)^2 \left| \hat{h}(p\Delta\sigma_x, q\Delta\sigma_y) \right|^2 \quad (134)$$

où $\Delta\sigma_x = \Delta\sigma_y$ est l'intervalle d'échantillonnage spectral. Pour respecter la loi de Shannon, on choisira $\Delta\sigma_x = \Delta\sigma_y = \frac{2\pi}{N\Delta x} = \frac{2\pi}{L}$. Notons que nous travaillons ici en pulsations spatiales $\sigma = 2\pi\nu$ avec ν la fréquence.

Rappelons maintenant la définition de la transformée de Fourier utilisée:

$$\hat{h}(\vec{\sigma}) = \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty-\infty}^{\infty} h(\vec{r}) \exp(-j \vec{\sigma} \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (135)$$

Cela conduit à la formule suivante pour la transformée de Fourier discrète:

$$\hat{h}\left(p \frac{2\pi}{L}, q \frac{2\pi}{L}\right) = \frac{1}{4\pi^2} \frac{L^2}{N^2} \sum_{m,n} h\left(m \frac{L}{N}, n \frac{L}{N}\right) \exp\left(-j \frac{\pi}{N} (mp + nq)\right) \quad (136)$$

Finalement le spectre de rugosité s'exprime par:

$$\gamma\left(p \frac{2\pi}{L}, q \frac{2\pi}{L}\right) = \frac{L^4}{4\pi^2 N^4} \left| \sum_{m,n} h\left(m \frac{L}{N}, n \frac{L}{N}\right) \exp\left(-j \frac{\pi}{N} (mp + nq)\right) \right|^2 \quad (137)$$

Cette quantité pourra ainsi être comparée directement au spectre obtenu à partir des mesures de diffusion. Or les spectres issus des mesures de diffusion sont habituellement donnés sous la forme de courbes unidimensionnelles obtenues après une moyenne sur l'angle polaire Φ . Par conséquent nous appliquerons la même procédure aux spectres calculés à partir des images fournies par microscopie.

Si nous récapitulons, les étapes à suivre lors du calcul du spectre de rugosité d'une surface échantillonnée par microscopie sont les suivantes :

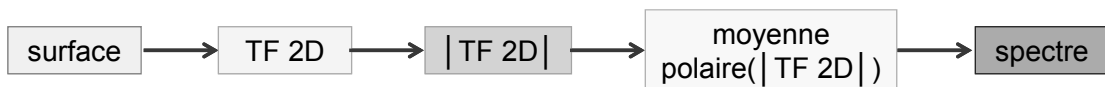


Figure 56 : Démarche logique

Si on considère une surface de côté L définie par N points de côté, on suit la procédure suivante :

➤ **Étape 1 : On calcule la TF 2D de cette surface.**

Ce qu'on appelle ici, et par la suite *TF 2D* de la surface, c'est en fait la transformée de Fourier bidimensionnelle de la surface considérée calculée d'après la formule (136).

La bande passante sur laquelle est définie la *TF 2D* est :

$$\begin{aligned}
 B_{TF} &= [\sigma_{\min}, \sigma_{\max}] \\
 &= \left[0, 2\pi \frac{N}{L} \right]
 \end{aligned}
 \tag{138}$$

et ce, sur N points, donc si on considère, l'intervalle d'échantillonnage spectral correspondant à la TF 2D la surface imagée, il est défini par :

$$\Delta\sigma = \frac{2\pi}{L}
 \tag{139}$$

- **Étape 2 : On calcule le module de chaque terme de la TF 2D.**
- **Étape 3 : On calcule la moyenne polaire du module de la TF 2D obtenue à l'étape 2.**

Cette fois, nous prendrons en compte seulement un quart de la surface totale du module de la TF 2D.

En effet, tout d'abord nous considérons qu'en chaque point le vecteur $\vec{\sigma}$ peut être défini par :

$$\vec{\sigma} = \sigma_u \vec{u} + \sigma_v \vec{v}
 \tag{140}$$

u étant l'axe horizontal et v le vertical sur la Figure 57.

Ensuite, la fonction que nous calculons est une transformée de Fourier discrète. De ce fait, dans chacune des deux directions u et v , seule la première moitié du signal donne réellement une information sur la surface initiale, la seconde moitié étant déduite de la première par symétrie, la fonction étant pseudopériodique et hermitienne. Si on visualise sur un plan le module de la TF 2D d'une surface échantillonnée quelconque, on a un résultat de la forme donnée Figure 57.

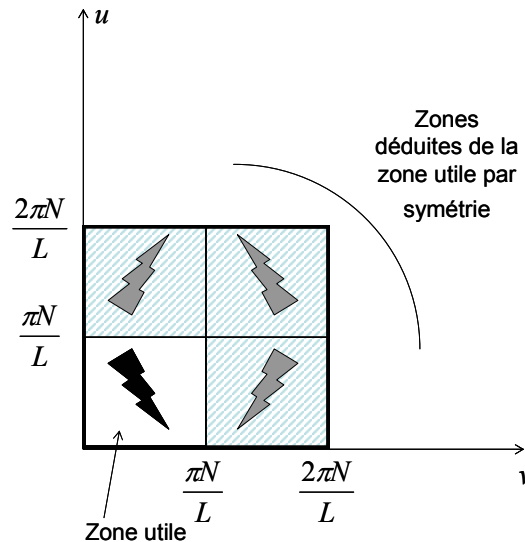


Figure 57 : Répartition de la TF 2D

Pour le calcul de la moyenne polaire, on considère seulement cette zone utile. On effectue alors la moyenne du module de la TF 2D à $|\vec{\sigma}|$ constant, en fonction de l'angle polaire (Figure 58).

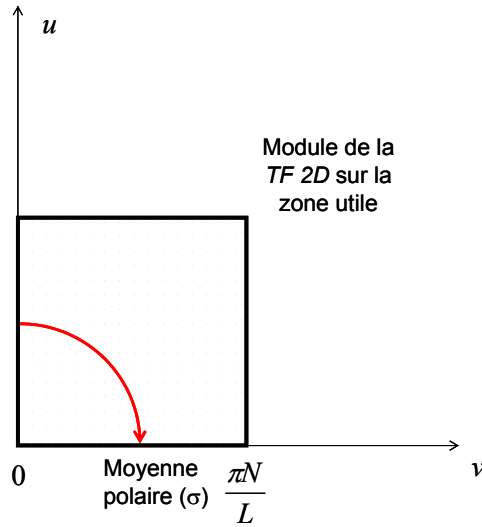


Figure 58 : Définition de la moyenne polaire

La moyenne est effectuée pour tous les points de la zone utile définie Figure 58, comme on le voit Figure 59. La bande passante sur laquelle est définie la moyenne est donc :

$$\begin{aligned}
 B_{MP} &= \left[\sqrt{\left(\frac{\sigma_{\min.x}}{2} \sqrt{2}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\min.y}}{2} \sqrt{2}\right)^2}, \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\max.x}}{2} \sqrt{2}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\max.y}}{2} \sqrt{2}\right)^2} \right] \\
 &= \left[\frac{\sqrt{2}}{2} \sigma_{\min}, \frac{\sqrt{2}}{2} \sigma_{\max} \right] \\
 &= \left[0, \pi \frac{N}{L} \sqrt{2} \right]
 \end{aligned} \tag{141}$$

avec toujours N points sur cette même bande. D'où un intervalle d'échantillonnage spectral diminué et qui vaut cette fois :

$$\Delta\sigma = \frac{\pi}{L} \sqrt{2} \tag{142}$$

mais on comprend bien que passé l'arc de cercle en pointillés (Figure 59), les valeurs données par cette moyenne n'ont plus de sens.

La zone sur laquelle la moyenne polaire est utilisable est alors :

$$B_{MPU} = \left[0, \pi \frac{N}{L} \right] \tag{143}$$

Les valeurs étant données avec un pas :

$$\Delta\sigma = \frac{\pi}{L} \sqrt{2} \tag{144}$$

et nous avons donc $E\left(\frac{N}{\sqrt{2}}\right)$ points sur l'intervalle B_{MPU} .

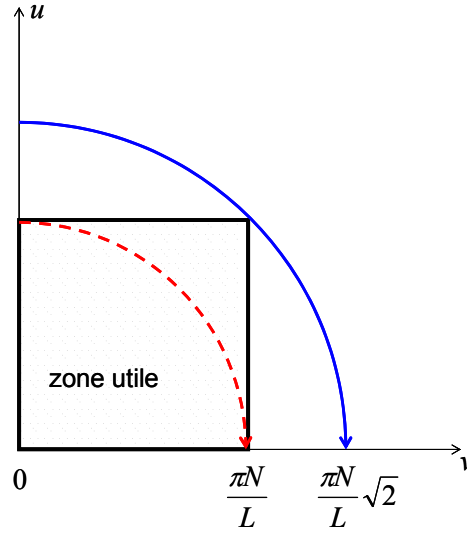


Figure 59 : Domaine de définition de la moyenne polaire

En conclusion, à partir de la mesure par microscopie d'une surface de côté L échantillonnée par N points, on peut déduire le spectre de rugosité de cette surface sur la bande passante B_μ , définie par :

$$B_\mu = \left[0, \pi \frac{N}{L} \right] \quad (145)$$

Et avec un pas d'échantillonnage défini comme suit :

$$\Delta\sigma = \frac{\pi}{L} \sqrt{2} \quad (146)$$

D'après l'expression précédente de la fenêtre fréquentielle accessible, on peut voir qu'en choisissant différentes valeurs de L , pour le même nombre de points N , on atteint différentes fenêtres fréquentielles. Ainsi une taille L de la fenêtre mesurée suffisamment petite permet de se rapprocher de l'échelle atomique. Inversement, pour des tailles de fenêtres plus grandes, on caractérise de plus faibles fréquences spatiales. Cela revient à regarder la surface à une échelle plus ou moins grossière puisque l'on conserve le même nombre de points sur une surface plus ou moins grande. La comparaison des différentes fenêtres fréquentielles accessibles par plusieurs méthodes de caractérisation rendra possible une analyse multi-échelles des échantillons³⁵⁻³⁷.

Pour la microscopie à force atomique, nous avons mesuré des fenêtres de $16 \mu\text{m}$ avec une résolution de 300 points, ce qui permet d'avoir accès à des pulsations spatiales comprises entre σ_{\min}^{AFM} et σ_{\max}^{AFM} avec :

$$\sigma_{\min}^{AFM} = \frac{\pi}{L} \sqrt{2} = 2,777 \cdot 10^{-4} \text{ nm}^{-1} \quad (147)$$

et

$$\sigma_{\max}^{AFM} = \frac{\pi N}{L} = 5,890 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1} \quad (148)$$

La résolution latérale (spatiale) est alors de l'ordre de $\frac{2\pi}{\sigma_{\max}} \approx 100 \text{ nm}$.

Pour le profilomètre optique Talysurf, nous avons, dans un premier temps, mesuré des fenêtres de côté $900 \mu\text{m}$ avec 1024 points. Ceci permet d'avoir accès à des pulsations spatiales comprises entre $\sigma_{\min 900\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}}$ et $\sigma_{\max 900\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}}$ avec :

$$\sigma_{\min 900\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}} = \frac{\pi}{L} \sqrt{2} = 4,937 \cdot 10^{-6} \text{ nm}^{-1} \quad (149)$$

et

$$\sigma_{\max 900\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}} = \frac{\pi N}{L} = 3,574 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^{-1} \quad (150)$$

et dans un second temps, de fenêtres de côté $360 \mu\text{m}$ avec toujours 1024 points. Ceci permet, cette fois, d'avoir accès à des pulsations spatiales comprises entre $\sigma_{\min 360\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}}$ et $\sigma_{\max 360\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}}$ avec :

$$\sigma_{\min 360\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}} = \frac{\pi}{L} \sqrt{2} = 1,234 \cdot 10^{-5} \text{ nm}^{-1} \quad (151)$$

et

$$\sigma_{\max 360\mu\text{m}}^{\text{Talysurf}} = \frac{\pi N}{L} = 8,936 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^{-1} \quad (152)$$

Dans l'un et l'autre cas, les résolutions latérales sont respectivement de 1758 nm et 703 nm .

2. Correspondance avec la diffusion lumineuse

Dans le cas du sondage par diffusion lumineuse, il est possible de mesurer l'indicatrice de diffusion $I(\theta, \Phi)$. Les angles (θ, Φ) caractérisent une direction de diffusion (Figure 1).

Ensuite, de cette mesure de diffusion, d'après la relation (153), nous pouvons déduire le spectre de rugosité γ de la surface mesurée, sachant que le facteur C dépend uniquement des conditions expérimentales et est défini par la relation (154)

$$I(\theta, \phi) = C^-(\theta, \phi) \gamma(\theta, \phi) \quad (153)$$

$$C^-(\theta, \phi) = C^-(\theta) = \frac{1}{2} \left(\frac{2\pi n_o}{\lambda} \right)^2 \left[\cos^2 \theta_0 |q_s|^2 + |q_p|^2 \right] \quad (154)$$

avec :

$$\begin{aligned} q_s(\theta) &= j \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \cdot 2n_o (n_o - n_s) (n_o \cos \theta_o + n_s \cos \theta_s)^{-1} \\ q_p(\theta) &= j \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \cdot 2n_o (n_o - n_s) (n_o / \cos \theta_o + n_s / \cos \theta_s)^{-1} \end{aligned} \quad (155)$$

Le spectre de rugosité γ de la surface, qui est ici exprimé en fonction de θ et ϕ peut aussi s'exprimer en fonction de la pulsation spatiale $\vec{\sigma}$ sachant que :

$$\vec{\sigma} = \frac{2\pi n_0}{\lambda} \sin \theta \begin{pmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{pmatrix} \quad (156)$$

Cela signifie que la surface rugueuse peut être décomposée en une somme infinie de réseaux sinusoïdaux de pas $p(\sigma)=2\pi/\sigma$ et de traits perpendiculaires à $\vec{\sigma} / \sigma$, avec $\sigma = |\vec{\sigma}| = 2\pi n_0 \sin \theta / \lambda$.

Par conséquent, par la technique de diffusion lumineuse, on accède à une fenêtre fréquentielle B_D donnée en incidence normale par:

$$\begin{aligned} B_D(\lambda, \theta_{\min}) &= [\sigma_{\min}, \sigma_{\max}] \\ &= \left[\frac{2\pi}{\lambda} n_0 \sin \theta_{\min}, \frac{2\pi}{\lambda} n_0 \sin \theta_{\max} \right] \\ &= \left[\frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta_{\min}, \frac{2\pi}{\lambda} \right] \end{aligned} \quad (157)$$

Si on considère cette fois la fréquence spatiale $\vec{\nu} = \vec{\sigma} / 2\pi$, la fenêtre fréquentielle accessible s'exprime par :

$$\begin{aligned} B(\lambda, \theta_{\min}) &= [\nu_{\min}, \nu_{\max}] \\ &= \left[\frac{n_0}{\lambda} \sin \theta_{\min}, \frac{n_0}{\lambda} \sin \theta_{\max} \right] \\ &= \left[\frac{\sin \theta_{\min}}{\lambda}, \frac{1}{\lambda} \right] \end{aligned} \quad (158)$$

L'existence d'une borne minimale est liée à l'angle minimum de mesure de la diffusion, à partir duquel réflexion spéculaire et ondes diffusées se superposent. Par contre, la borne supérieure, égale à l'inverse de la longueur d'onde d'éclairement, est propre à la méthode optique elle-même. Au delà de cette valeur, les fréquences spatiales sont responsables d'ondes évanescentes caractéristiques d'une énergie non radiative et confinées au voisinage immédiat de la surface, donc non accessibles par la technique de diffusion lumineuse. On dit pour cela que la lumière radiative ne voit pas les défauts dont les dimensions latérales sont inférieures à la longueur d'onde d'étude. De façon plus exacte, cela signifie que les fréquences spatiales d'un défaut supérieures à λ^{-1} ne sont pas accessibles par diffusion en espace libre.

Les mesures par diffusion lumineuse donnent donc accès à une fenêtre fréquentielle donnée en formule (157). Cette fenêtre doit être comparée aux fenêtres accessibles par les techniques de microscopie évoquées dans le paragraphe précédent.

Nous pouvons dès à présent noter que ces deux instruments ne donnent pas accès au même domaine de fréquences spatiales. Il faut également à ce stade comparer le domaine accessible à celui accessible par des mesures par diffusion lumineuse, défini par les formules (147-150).

En Figure 60 sont représentés les différents domaines accessibles. Nous pouvons noter que les informations accessibles peuvent se recouper à l'intersection des fenêtres : toutes ces techniques peuvent se compléter pour donner accès à une caractérisation de type multi-échelle de la surface.

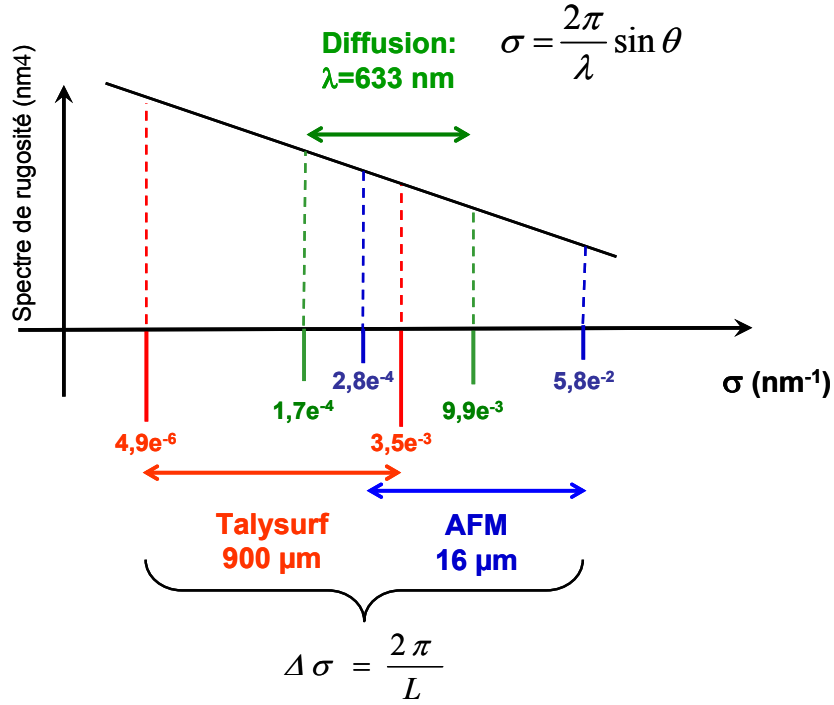


Figure 60 : Fenêtres fréquentielles accessibles par différentes méthodes de caractérisation

A partir de ces considérations, il est important de revenir sur la notion de rugosité. En effet, nous pouvons rappeler que la rugosité s'exprime par l'intégrale du spectre de rugosité:

$$\delta^2 = \int_{\vec{\sigma}} \gamma(\vec{\sigma}) d\vec{\sigma} \quad (159)$$

D'un point de vue théorique, l'intégrale porte sur un domaine infini. Toutefois dans la pratique, l'intégrale ne peut être calculée que sur le domaine de fréquences spatiales accessibles par la mesure, on a alors :

$$\begin{aligned} \delta^2 &= \left(\frac{2\pi m_0}{\lambda} \right)^2 \int_{\phi=0}^{\phi=2\pi} \int_{\theta_{\min}}^{\theta_{\max}} \gamma(\theta, \phi) \sin \theta \cos \theta d\theta d\phi \\ &= 2\pi \int_{\sigma_{\min}}^{\sigma_{\max}} \sigma \bar{\gamma}(\sigma) d\sigma \end{aligned} \quad (160)$$

et sachant que :

$$\bar{\gamma}(\theta) = \bar{\gamma}(\sigma) = \frac{1}{2\pi} \int_{\phi=0}^{\phi=2\pi} \gamma(\theta, \phi) d\phi \quad (161)$$

on peut également écrire :

$$\delta^2 = 2\pi \int_{\sigma_{\min}}^{\sigma_{\max}} \sigma \bar{\gamma}(\sigma) d\sigma \quad (162)$$

Le domaine d'intégration varie, lors des mesures optiques, avec la longueur d'onde. Dans le cas de mesures par microscopie, il peut varier avec le pas d'échantillonnage. Par conséquent, la valeur de la rugosité sera différente selon la technique de mesure, pour un même échantillon.

Dans un premier temps, nous avons décrit comment extraire les spectres de rugosité d'une surface à partir, soit d'une image faite au microscope, soit de la mesure d'une

indicatrice de diffusion de cette surface. Et ensuite, nous avons vu dans quelles limites les spectres déduits de différentes méthodes de caractérisation optiques sont comparables. Forts de ces connaissances, nous allons désormais caractériser les topographies des surfaces nos échantillons transparents par microscopie afin de comparer les rugosités ainsi obtenues à celles mesurées par la technique de la diffusion lumineuse.

III. Application

Nous utiliserons ici, les échantillons caractérisés dans les parties précédentes qui sont des verres de silice fondue, de 9 mm d'épaisseur et de 12,54 mm de diamètre. Nous avons imagé ces échantillons par les deux techniques de microscopie dont nous disposons.

1. Talysurf

Nous commencerons par le microscope interférentiel qui est celui qui nous permet d'accéder aux fenêtres fréquentielles les plus éloignées données par la technique de la diffusion lumineuse.

Nous avons effectué les mesures au microscope interférentiel avec deux résolutions différentes, ce qui nous permet d'accéder à deux fenêtres fréquentielles distinctes. Toutes les images ont été faites avec une définition de 1024 points, seules les dimensions de la zone imagée changent. Dans un premier temps, nous avons un grandissement de 50, ce qui nous permet d'imager une zone de 360 μm de coté. Ensuite, nous utiliserons un grandissement de 20 avec lequel nous imagerons une zone de 900 μm de coté.

a. $L = 360 \mu\text{m}$, $N = 1024$ points

Nous avons ici imagé le même échantillon que dans les partie précédentes, sur chacune de ces faces. L'image obtenue pour la face 0 est donnée Figure 61, et celle obtenue pour la face 1, est donnée Figure 62.

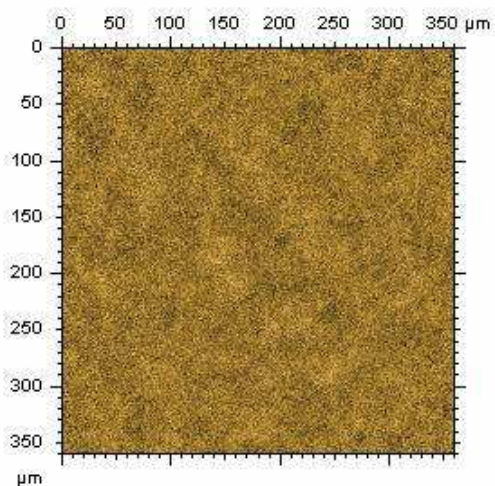


Figure 61 : Face 0

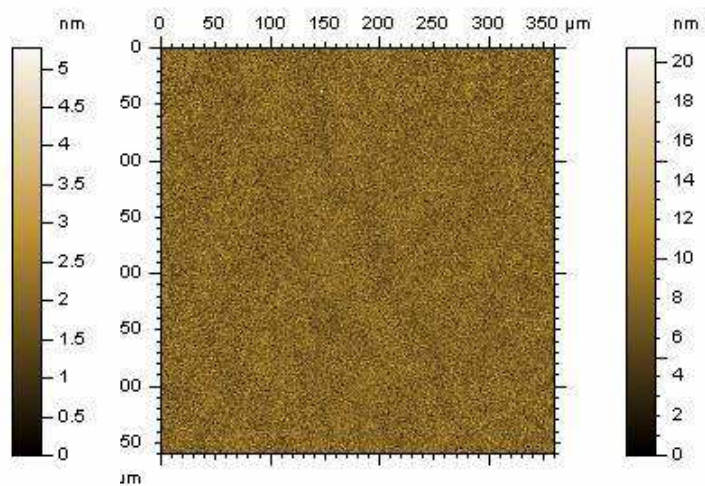


Figure 62 : Face 1

Figures 61 et 62 : Image par microscopie interférentielle ($L=360 \mu\text{m}$) des deux faces de l'échantillon

Les spectres de rugosité calculés pour chacune des deux faces sont donnés Figure 63 pour la face 0 et Figure 64 pour la face 1 en fonction de la pulsation spatiale σ .

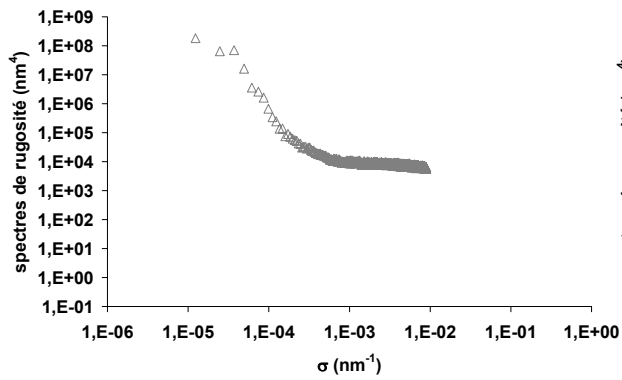


Figure 63 : Face 0

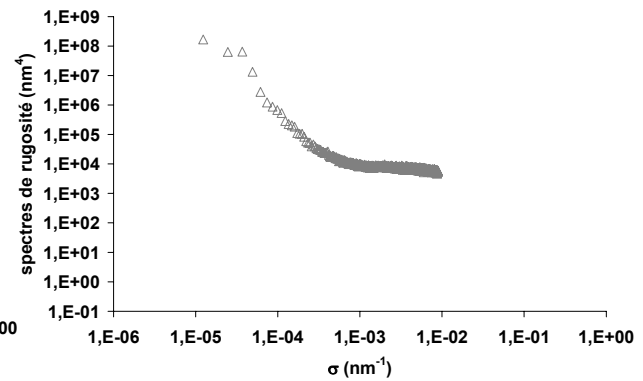


Figure 64 : Face 1

Figures 63 et 64 : Spectres de rugosité des deux faces de l'échantillon

L'analyse de cette première figure doit nous amener d'emblée à redoubler de prudence. En effet, si chaque instrument est censé bénéficier d'une précision meilleure que l'Angström, il ne faut pas oublier qu'on s'intéresse ici au spectre de la topographie dont l'intégrale est la rugosité. Analysons donc les différents domaines fréquentiels.

- Les dix premiers points de mesure aux basses fréquences indiquent un arrondi qui pourrait caractériser la planéité de l'échantillon, mais traduit simplement les défauts de courbure de l'instrument à cette précision.
- La partie moyenne du spectre peut toujours être approchée à l'aide d'une droite, mais ce résultat dépend de la bande passante considérée par cette approximation.
- Enfin, le spectre aux hautes fréquences est relativement plat, ce que l'on peut attribuer au bruit de mesure. Ceci est confirmé Figure 65 par les spectres obtenus sur plusieurs échantillons superpolis. Tous présentent cette zone plate qui est au même niveau et sur la même plage fréquentielle, on peut donc bien l'assimiler à un bruit de mesure.

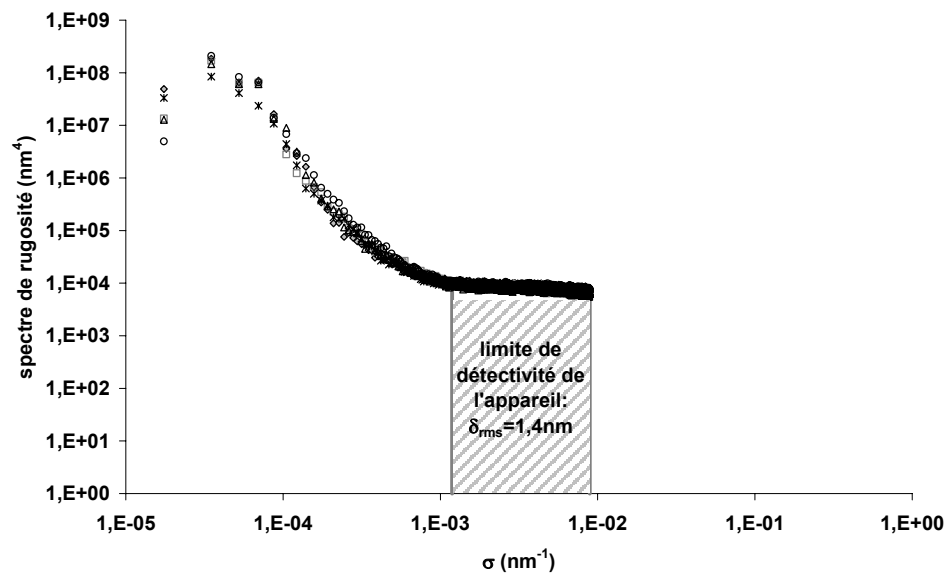


Figure 65 : Spectres de rugosité de différents échantillons superpolis mesurés avec le profilomètre optique

Ces remarques étant faites, nous allons passer à un autre grandissement et d'autres mesures qui nous permettront de réduire ces ambiguïtés. En effet, dans l'état actuel des mesures, seule la partie approximée par une droite pourrait être utilisée sans ambiguïté, mais la bande passante relative est alors bien réduite.

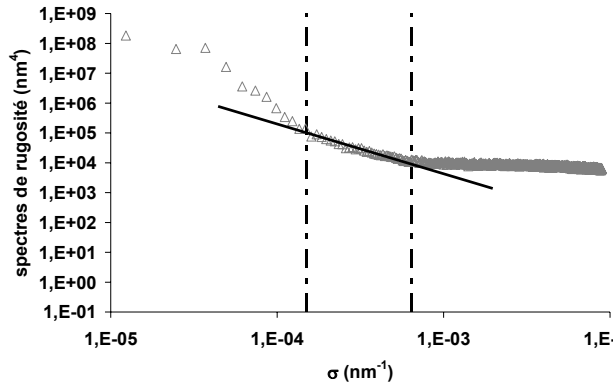


Figure 66 : Face 0

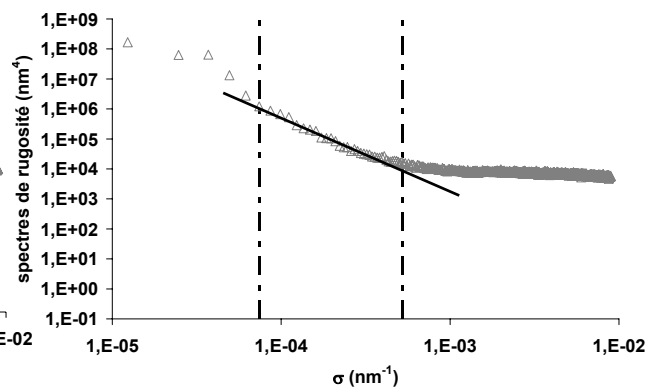


Figure 67 : Face 1

Figures 66 et 67 : Décomposition des spectres de rugosité des deux faces de l'échantillon

b. $L = 900 \mu\text{m}$, $N = 1024$ points

Nous avons choisi d'augmenter la taille de la zone imagée. Nous aurons donc cette fois $L = 900 \mu\text{m}$, $N = 1024$ points et un grandissement de 20.

Les images obtenues dans cette configuration sont données Figure 68 pour la face 0 et Figure 69 pour la face 1.

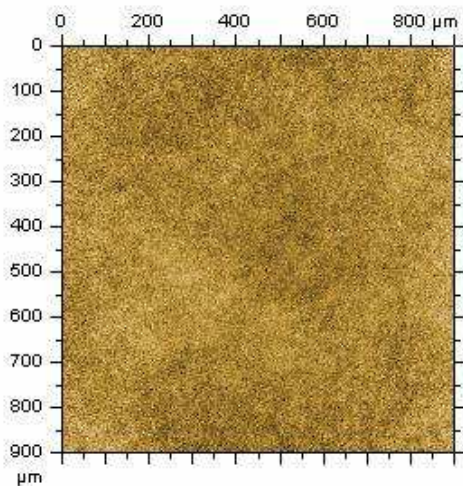


Figure 68 : Face 0

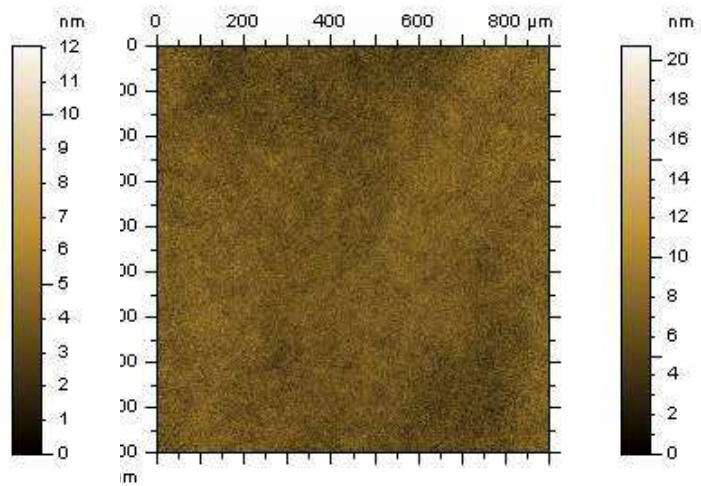


Figure 69 : Face 1

Figures 68 et 69 : Images obtenues par microscopie interférentielle ($L=900 \mu\text{m}$) pour les deux faces de l'échantillon

En outre, les spectres obtenus à partir de ces deux images sont tracés Figure 70 pour la face 0 et Figure 71 pour la face 1 en fonction de la pulsation spatiale σ .

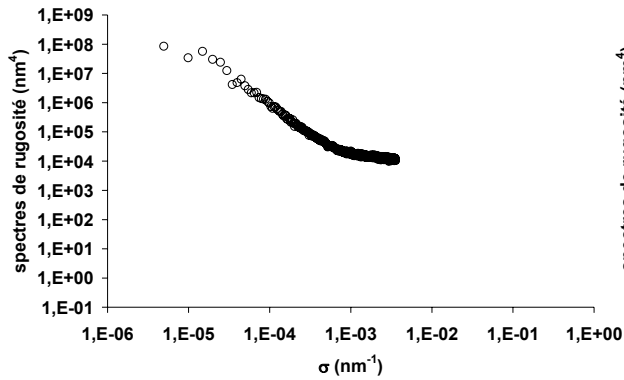


Figure 70 : Spectre de rugosité de la face 0

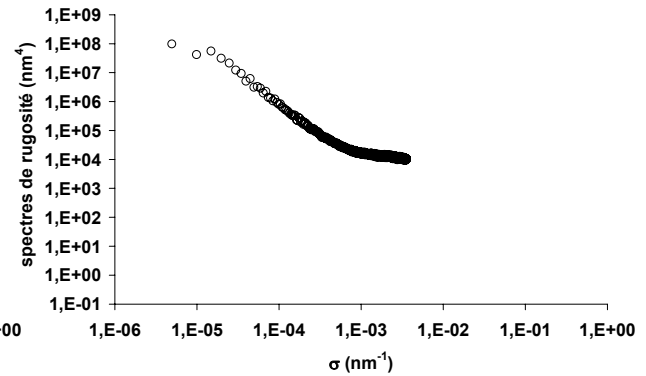


Figure 71 : Spectre de rugosité de la face 1

On peut noter qu'on retrouve la même séparation des spectres en trois parties distinctes que nous avons avec le grandissement de 50 (figures 72 et 73).

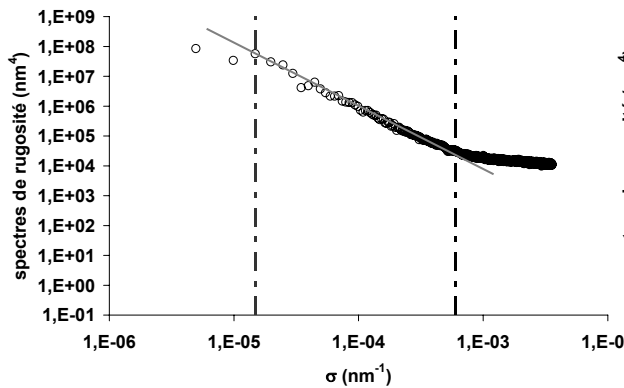


Figure 72 : Face 0

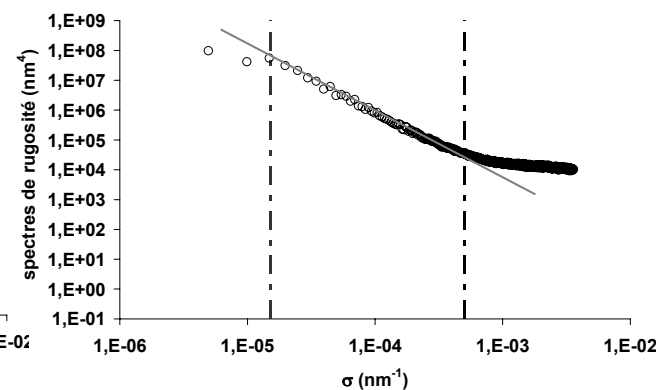


Figure 73 : Face 1

Figures 72 et 73 : Décomposition des spectres de rugosité des deux faces de l'échantillon

On constate cette fois que la partie linéaire (approchée par une droite) est cette fois plus importante, et qu'elle inclue d'avantage de basses fréquences. Quant à l'extrémité du spectre aux hautes fréquences, elle devra toujours être utilisée avec prudence car elle peut être liée à la détectivité verticale de l'instrument. Dans ce qui suit, on se limitera donc à la bande passante intermédiaire des spectres.

A titre d'illustration, nous avons tracé figures 74 et 75 la comparaison des spectres mesurés sur une fenêtre de 200 μm et 900 μm . Ces résultats sont représentatifs des limites de l'instrument.

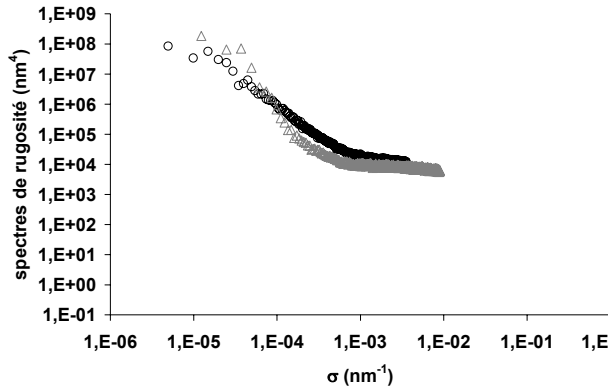


Figure 74 : Face 0

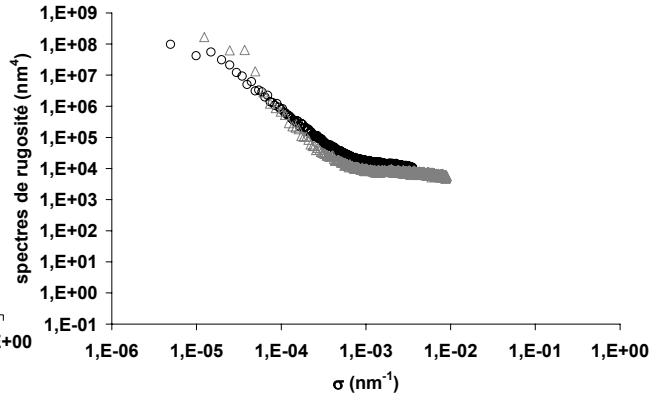


Figure 75 : Face 1

Figures 74 et 75 : Spectres de rugosité obtenus avec les deux grandissements pour les deux faces de l'échantillon

c. Comparaison avec la diffusion lumineuse

Nous avons tracé Figure 76 pour la face 0, Figure 77 pour la face 1 les spectres obtenus avec un grandissement de 20 ainsi que les résultats obtenus en utilisant la technique de la diffusion lumineuse sans séparation de faces puis avec chacune des deux méthodes de séparation sur leur domaine de validité.

Les deux figures montrent que les résultats donnés par chacune des méthodes de séparation de faces permettent une bonne extrapolation des spectres obtenus avec le profilomètre dans le domaine des hautes fréquences, ce qui n'est pas le cas sans la séparation de faces.

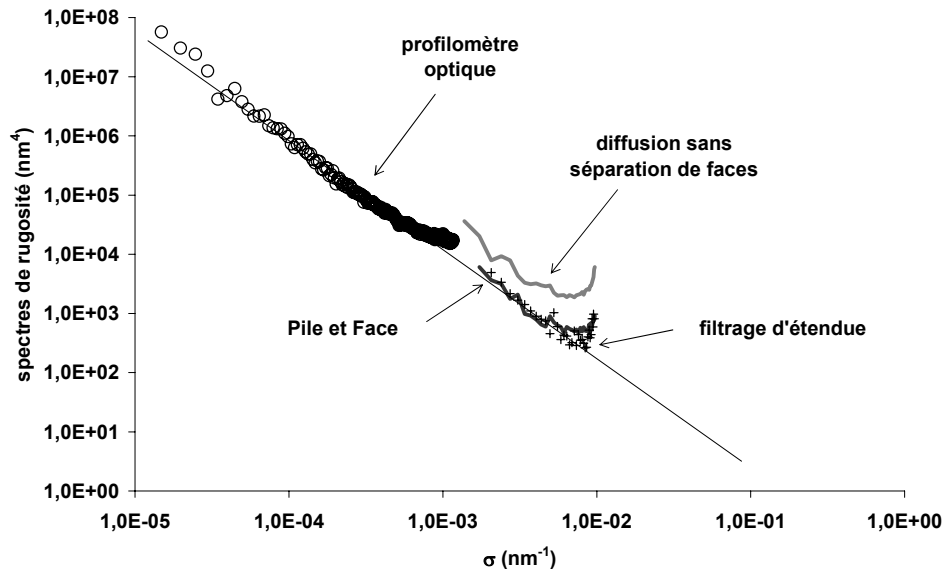


Figure 76 : Comparaison des spectres de rugosité obtenus par microscopie interférentielle et diffusion lumineuse avec et sans séparation de faces pour la face 0

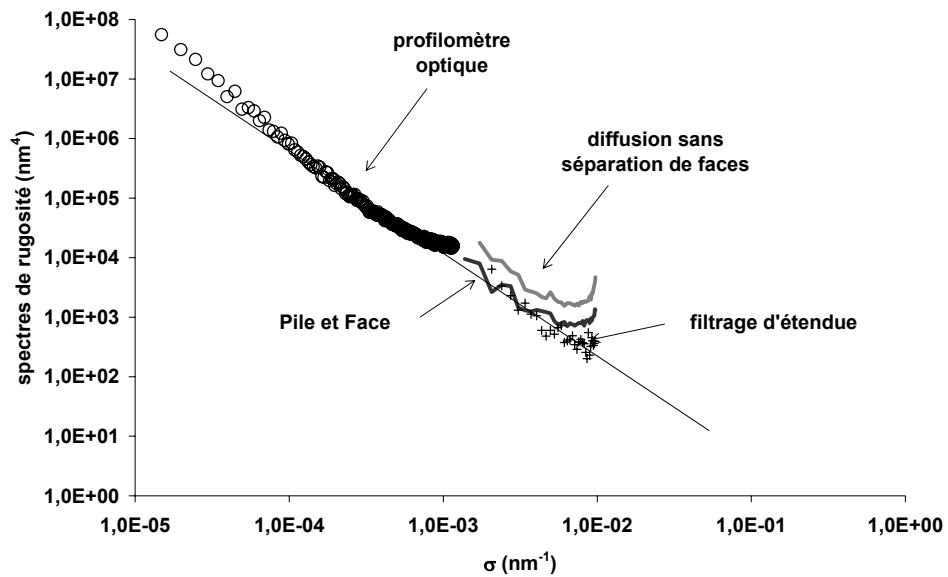


Figure 77 : Comparaison des spectres de rugosité obtenus par microscopie interférentielle et diffusion lumineuse avec et sans séparation de faces pour la face 1

Ces résultats sont très encourageants et nous laissent penser que les spectres obtenus par nos deux méthodes de séparation de faces sont au bon niveau. Toutefois pour en être certains, il faudrait pouvoir les comparer à des mesures effectuées avec un instrument nous permettant d’avoir accès à la même fenêtre fréquentielle. Le microscope interférentiel ne nous permettant pas de le faire, nous avons choisi de faire des mesures comparatives avec un microscope à force atomique. On notera que la remontée du spectre optique $\gamma = I/C$ est due à la lumière parasite en deçà de $\theta = 80^\circ$.

2. Mesures AFM

Nous avons caractérisé nos échantillons par microscopie AFM. Les paramètres de mesure étant cette fois : $L = 16 \mu\text{m}$ et $N = 300$ points, ce qui permet d’avoir accès à la même bande passante que les mesures de diffusion.

Les images obtenues sont données Figure 78 pour la face 0 et Figure 79 pour la face 1.

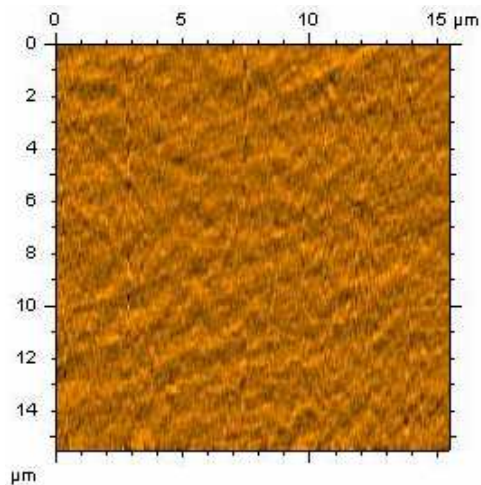


Figure 78 : Face 0

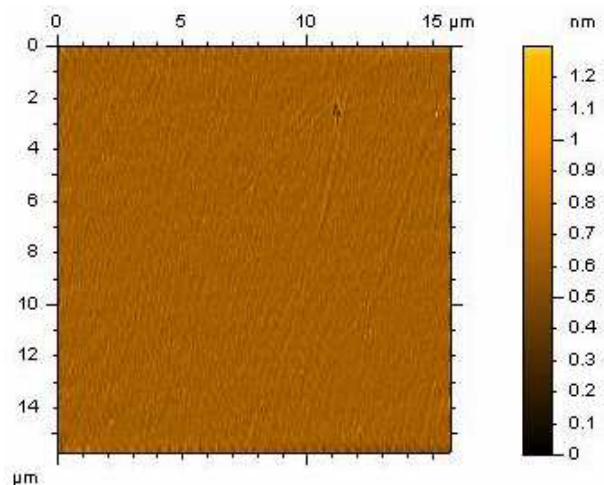


Figure 79 : Face 1

Figures 78 et 79 : Image par microscopie AFM ($L=16 \mu\text{m}$) pour les deux faces de l'échantillon

Les spectres déduits des mesures AFM sont présentés Figure 80 pour la face 0 et Figure 81 pour la face 1. Là encore, tous les spectres sont tracés en fonction de la pulsation spatiale σ . Pour comparaison, nous avons également tracé sur ces graphes les spectres mesurés par diffusion lumineuse sans séparation de faces puis avec chacune des deux méthodes de séparation.

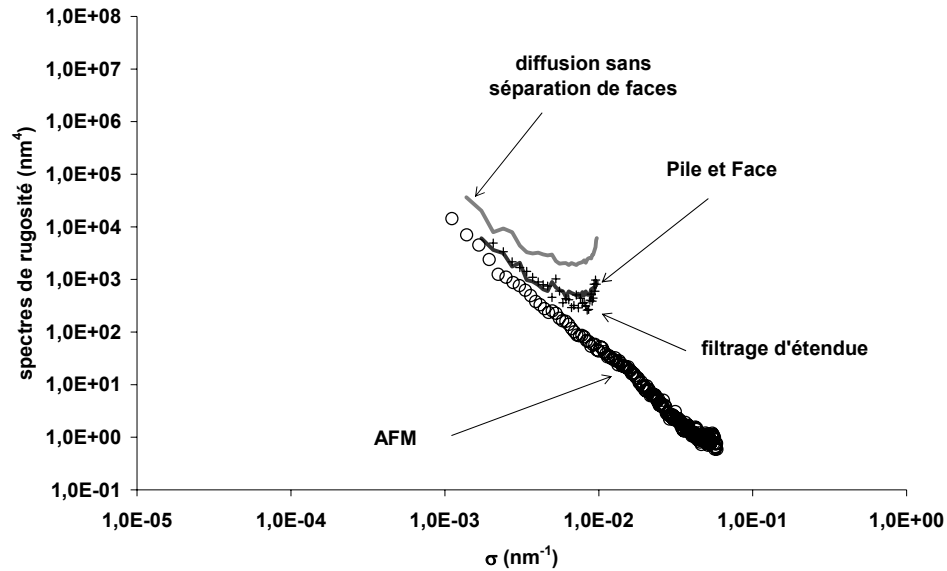


Figure 80 : Comparaison des spectres de rugosité obtenus par microscopie AFM et diffusion lumineuse avec et sans séparation de faces pour la face 0

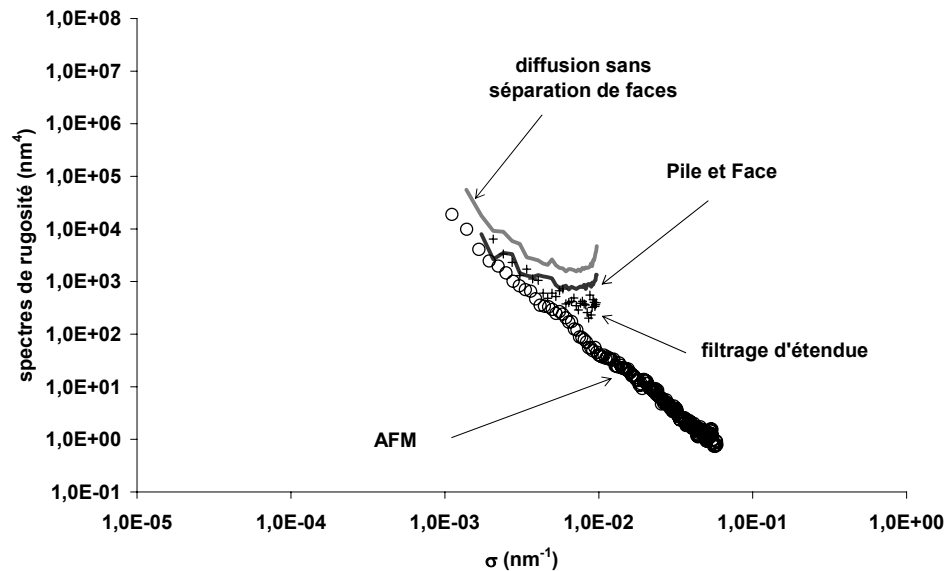


Figure 81 : Comparaison des spectres de rugosité obtenus par microscopie AFM et diffusion lumineuse avec et sans séparation de faces pour la face 1

On constate d'abord que les méthodes optiques de séparation de faces donnent les meilleurs résultats en comparaison avec la méthode AFM. Toutefois, on assiste à un léger désaccord entre les spectres optiques et AFM qui s'accroît avec la fréquence. Nous expliquons ce résultat par un problème de stationnarité de la topographie de l'échantillon. En effet, la méthode AFM ne voit qu'un carré de 16 microns de côté de l'échantillon avec un

échantillonnage $\Delta y = 53$ nm, deux conditions qui ne garantissent pas la détection de défauts isolés sur la surface (défaut, poussière) et distribués en faible densité. À l'inverse, la technique de la diffusion lumineuse utilise un éclairage de 2 mm de diamètre sur l'échantillon et ceci de façon analogique (continue) Dans ces conditions, à la diffusion intrinsèque de la topographie vient se rajouter une contribution des défauts isolés, expliquant ainsi des niveaux mesurés plus élevés à mesure que la pulsation spatiale croît.

Dans le but d'illustrer cette différence, nous avons simulé Figure 82, une surface de type AFM (380 μm de côté), et sur laquelle nous avons ajouté (Figure 83) 30 impuretés en forme de calottes sphériques, de tailles aléatoires et du même indice que la surface considérée. Les spectres de rugosité déduits de ces deux surfaces sont donnés sur le même graphe (Figure 84). Ces résultats montrent clairement que la remontée du spectre aux hautes fréquences est due à la présence de défauts localisés qui ne peuvent être vus avec l'AFM. Ceci explique la différence qui persiste entre la technique AFM et notre méthode de séparation.

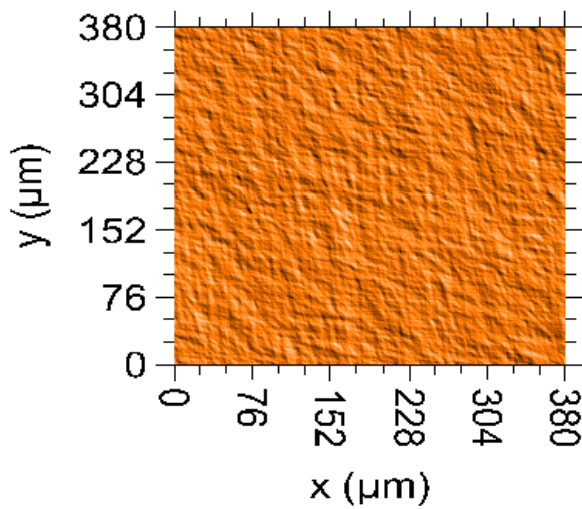


Figure 82

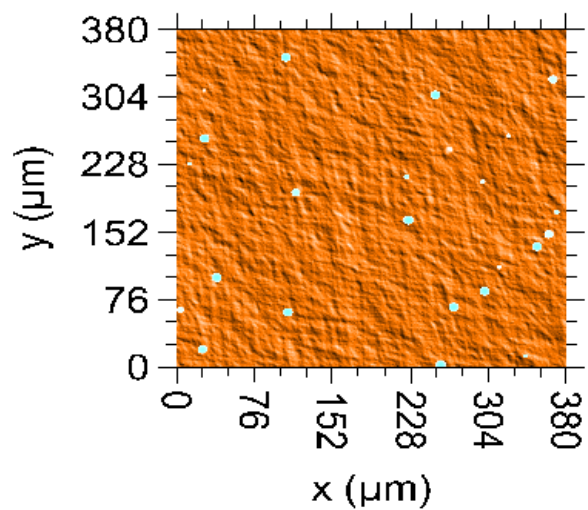


Figure 83

Figures 82 et 83 : Surface simulées. $L = 380 \mu\text{m}$, $N = 1201$ avant et après l'ajout de quelques défauts localisés aux dimensions aléatoires (30 calottes sphériques de rayon $r < 5000$ nm et de hauteur $h < 600$ nm)

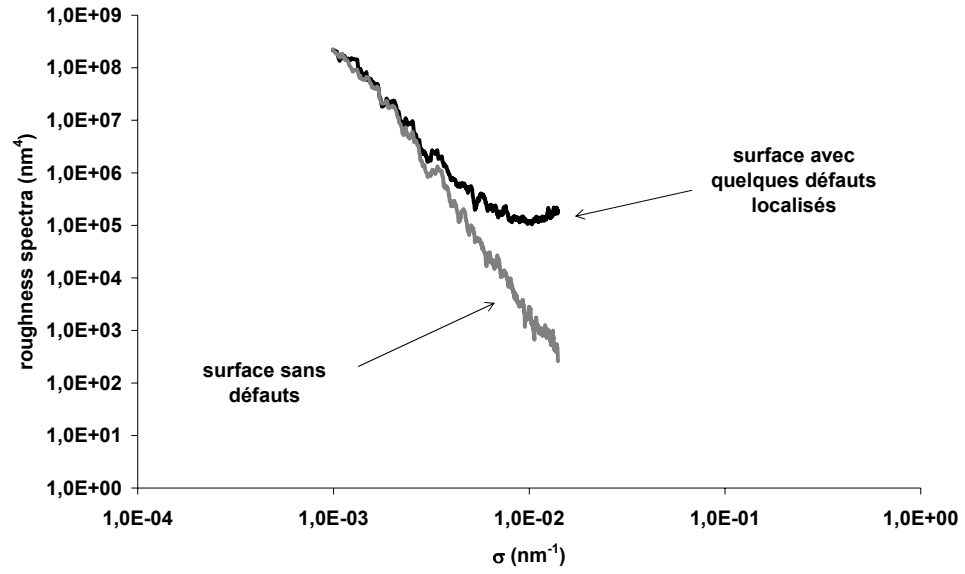


Figure 84: Spectres de rugosité déduits de surfaces simulées avec et sans défauts localisés

Conclusion

Nous venons de mettre en œuvre deux techniques de caractérisation des substrats transparents épais par diffusion lumineuse. La première repose sur un principe de confocalité, et la deuxième, sur un retournement des substrats doublé d'une extension du modèle électromagnétique au cas de la lumière incohérente. Ces deux méthodes donnent des résultats comparables et ont été validées par comparaison avec des mesures faites en microscopie optique et en champ proche. Elles permettent de mesurer séparément, à partir de deux mesures de diffusion lumineuse, la rugosité des deux faces d'un échantillon transparent épais.

Nous avons néanmoins pu voir que si les résultats sont comparables avec ceux obtenus par microscopie, ils ne sont pas identiques. En effet, la présence de défauts localisés sur la surface étudiée fausse la mesure de la rugosité intrinsèque de la surface de l'échantillon. Forts de ce constat, nous avons décidé de développer un appareil de mesure qui nous permettrait de mesurer séparément la rugosité propre de la surface et la contribution d'éventuels défauts ou impuretés en présence. Cette démarche nous a tout naturellement conduit à mettre au point l'analyseur optique de surface dont nous allons maintenant détailler la conception et la réalisation.

Partie B :
***Conception et
réalisation d'un
analyseur optique de
surface***

Sommaire

Introduction	105
Chapitre I : Principe de base ou la combinaison de l'inversion de l'axe mobile avec l'utilisation d'un imageur CCD	107
I. Inversion de l'axe mobile	109
1. Principe	109
2. Approche théorique	109
3. Approche expérimentale	113
a. Calculs photométriques	113
b. Résultats expérimentaux	115
4. Validation numérique	116
II. Pourquoi utiliser un imageur ?	117
III. Simulations numériques	119
1. Méthode	120
2. Applications	122
a. Mesure de diffusion « classique »	122
b. Analyseur optique de surface	126
c. Influence des dimensions du défaut sur l'indicatrice de diffusion : quelques exemples	131
d. Conclusion	135
Chapitre II : D'un point de vue plus pratique	137
I. Choix du matériel	139
1. Voie de détection	139
a. Objectif télécentrique	139
b. Caméra CCD	140
2. Voie d'éclairage	142
a. Système optique d'éclairage	142
b. Source lumineuse	143
3. Évaluation des gammes de fonctionnement et des performances du montage	146
a. Échantillon fortement diffusant	149
b. Échantillon faiblement diffusant	150
II. Premiers résultats expérimentaux	150
1. Diffuseur lambertien	151
a. Acquisitions	151
b. Étalonnage	153
2. Mesures comparatives à différents temps d'intégration	156
3. Échantillons absorbeurs	159
4. Wafer en silicium	160
Chapitre III : Perspectives	163
I. Évolutions matérielles	165
1. Augmentation de la dynamique de mesure	165
2. Augmentation du domaine angulaire de mesure	166
a. Mesures proches du spéculaire	166
b. Mesures en incidence rasante	166
II. Évolutions logicielles	168
1. Cartographie de rugosité	169
2. Étude statistique des défauts en présence	169
III. Évolutions conceptuelles	169
1. Élargissement de la bande spectrale	169
2. Ellipsométrie de Mueller	169
Conclusion	171
Références et bibliographie	249

Introduction

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, une mesure de diffusion lumineuse consiste à éclairer un échantillon avec un laser sous un angle d'incidence fixe (habituellement proche de la normale à sa surface) et à utiliser un détecteur qui effectue une rotation autour de l'échantillon afin d'enregistrer les variations du taux de lumière diffusée par ce dernier dans un large domaine angulaire. Cette méthode nous donne toutefois une information sur la rugosité moyenne de la surface à l'intérieur de la zone éclairée (diamètre typique de quelques millimètres). Le problème est que, dans certains cas, associés notamment à la présence d'impuretés³⁸ ou de défauts localisés dans la zone éclairée, cette information moyenne n'est pas représentative des caractéristiques intrinsèques de la surface. On peut naturellement envisager de réduire la taille du spot d'éclairage, par exemple à l'aide de dispositifs optiques de focalisation adaptés, mais cette démarche se heurte à des impacts négatifs notamment en terme de résolution angulaire. La caractérisation complète d'un échantillon nécessite en outre de réaliser un balayage de cette zone éclairée de dimensions réduites sur l'intégralité de sa surface, ce qui entraîne une augmentation pesante du temps d'acquisition.

Une première solution envisagée pour réduire ce temps d'acquisition est de considérer uniquement la diffusion totale intégrée³⁹ (*TIS*), mais la donnée du *TIS* ne fournit aucune information sur l'origine de la diffusion et ne permet pas de différencier les contributions de la rugosité intrinsèque de celles de défauts localisés. Par ailleurs, s'il est vrai qu'une telle méthode permettrait de localiser un défaut par la mesure d'un *TIS* élevé à une position donnée sur l'échantillon, elle ne donne cependant aucune information sur la géométrie du défaut en question.

Une autre méthode pour réduire le temps d'acquisition d'une indicatrice de diffusion consiste à remplacer le balayage angulaire par la lecture d'un tableau de photodiodes *CMOS* situées dans le plan de détection d'un radio-spectromètre semi-hémisphérique⁴⁰. Mais l'optimisation de l'intégralité du système conduit à des zones éclairées de l'ordre de 200 microns de diamètre et nécessite donc l'utilisation de translations croisées pour permettre une cartographie de l'intégralité de l'échantillon.

Pour résoudre ce problème, nous avons imaginé un procédé entièrement nouveau dans lequel on renverse l'approche expérimentale précédemment décrite en rendant fixe la voie détection (ce qui permet d'imager la surface de l'échantillon sur un détecteur matriciel de type caméra *CCD*) et en rendant mobile la voie illumination. Les gains enregistrés sont multiples, aussi bien en termes de détectivité que de temps global d'acquisition ou encore de résolution spatiale. En effet, l'utilisation d'un imageur *CCD* comme capteur offre le grand intérêt de pouvoir « pixeliser » la surface. Une telle approche permet l'enregistrement simultané de la *BRDF* angulaire pour différents éléments de surface, et à différentes résolutions latérales.

Dans une première étape, nous démontrerons que le renversement d'approche sur laquelle se fonde notre montage donne accès aux mêmes informations que celles que permet

d'obtenir l'approche standard. Nous verrons également ce qu'apportera le nouvel appareillage que nous proposons par rapport à un diffusomètre classique.

Enfin, dans un second temps, nous décrirons de manière détaillée le montage expérimental que nous avons développé et nous présenterons enfin les premiers résultats très prometteurs qu'il nous a permis d'obtenir sur des échantillons représentatifs.

Chapitre I :
***Principe de base ou la
combinaison de l'inversion de
l'axe mobile avec l'utilisation
d'un imageur CCD***

I. Inversion de l'axe mobile

1. Principe

Une mesure dite « classique » de diffusion lumineuse s'effectue en éclairant un échantillon, avec un laser sous un certain angle d'incidence fixe et en utilisant un capteur mobile en rotation autour de l'échantillon afin de mesurer la lumière diffusée par ce dernier dans tout l'espace (Figure 85). Nous proposons ici de faire une mesure de diffusion en utilisant à l'inverse un détecteur fixe et une source mobile comme schématisé Figure 86. La source éclaire la totalité de la surface de l'échantillon avec un faisceau collimaté de faible divergence (typiquement de l'ordre du degré). Le flux diffusé par chaque point de l'échantillon est mesuré à l'aide d'une caméra CCD précédée d'un objectif, dont la focale et la position sont choisies de manière à assurer une conjugaison optique entre la surface de l'échantillon et la matrice de photodétecteurs. L'utilisation d'un objectif télécentrique permet de garantir que l'angle moyen sous lequel on mesure ce flux lumineux diffusé est le même pour tous les points de l'échantillon et il est possible de régler l'angle solide de capture de ce flux en ajustant simplement le diamètre du diaphragme d'ouverture de cet objectif télécentrique. Cette description permet d'appréhender l'un des avantages clés de ce montage, à savoir le caractère massivement parallèle des mesures qu'il permet de réaliser.

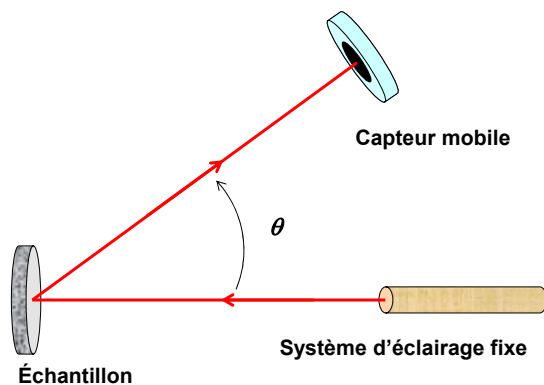


Figure 85 : Mesure de diffusion classique, schéma de principe

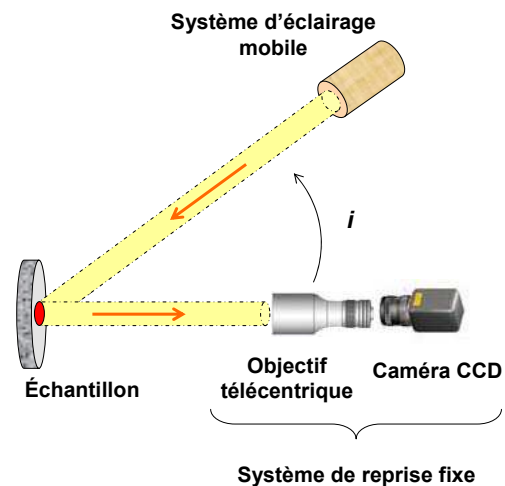


Figure 86 : Schéma de principe du montage proposé

La réalisation d'un tel appareillage n'a rien de trivial, et il est donc nécessaire, avant de le mettre en œuvre, de répondre à une question primordiale quant à sa viabilité, du fait de la mobilité de notre source. En effet, est-on sûr que pour faire l'acquisition d'une mesure de diffusion, le doublet détecteur fixe - éclairage mobile est équivalent au doublet détecteur mobile - éclairage fixe ?

La validation du principe que nous venons de décrire peut être obtenue à l'aide de trois approches complémentaires, respectivement théorique, expérimentale et numérique. Nous allons donc, dans un premier temps, décrire ces trois validations ainsi que les résultats qu'elles ont donnés.

2. Approche théorique

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente (Partie A : Chapitre I :I.1), dans le cas d'une surface présentant des rugosités faibles devant la longueur d'onde incidente, une

relation simple issue d'une théorie vectorielle du premier ordre permet de déduire l'intensité diffusée du profil de la surface considérée. On peut écrire :

$$I(i, \theta, \phi) = C(i, \theta, \phi) \gamma(i, \theta, \phi) \quad (163)$$

Ou encore

$$I(\vec{\sigma}) = C(\vec{\sigma}) \gamma(\vec{\sigma}) \quad (164)$$

où C est un terme issu de la théorie électromagnétique et défini, en incidence normale par :

$$C(\vec{\sigma}) = C(\theta, \phi) = \frac{1}{2} \left(\frac{2\pi n_0}{\lambda} \right)^2 \left[\cos^2 \theta |q_s|^2 + |q_p|^2 \right] \quad (165)$$

avec:

$$\begin{aligned} q_s(\theta) &= j \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) 2n_o (n_o - n_s) (n_o \cos \theta_o + n_s \cos \theta_s)^{-1} \\ q_p(\theta) &= j \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) 2n_o (n_o - n_s) (n_o / \cos \theta_o + n_s / \cos \theta_s)^{-1} \end{aligned} \quad (166)$$

γ le spectre de rugosité de la surface défini par :

$$\gamma(\vec{\sigma}) = \frac{4\pi^2}{S} |\hat{h}(\vec{\sigma})|^2 \quad (167)$$

S la surface éclairée, $\hat{h}(\vec{\sigma})$ la transformée de Fourier du profil de la surface et $\vec{\sigma}$ la pulsation spatiale définie par :

$$\vec{\sigma} = 2\pi \frac{n_0}{\lambda} (\sin \theta - \sin i) \begin{Bmatrix} \cos \phi \\ \sin \phi \end{Bmatrix} \quad (168)$$

avec n_0 , l'indice du milieu incident, λ , la longueur d'onde d'éclairage, i , l'angle d'incidence, θ l'angle de détection et ϕ , l'angle polaire définis figures 87 et 88.

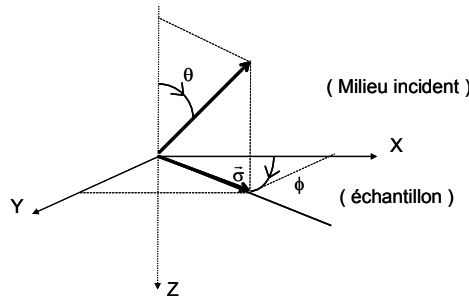
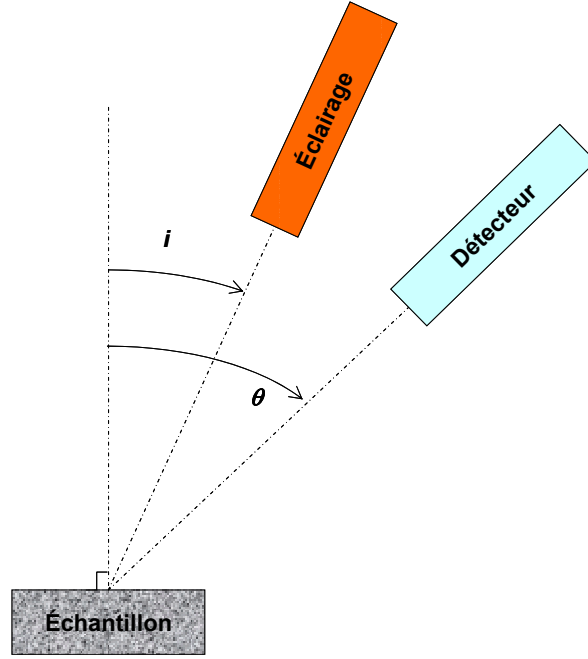


Figure 87 : Définition des angles de diffusion θ et ϕ

Figure 88 : Définition des angles i et θ

Dans le cas d'une mesure de diffusion « classique » (configuration de la Figure 85), l'acquisition est faite à i constant (on a, le plus souvent, $i = 0^\circ$), et θ variant entre 0 et 90° . Nous proposons ici, d'inverser les axes mobiles, autrement dit, de fixer l'angle de détection ($\theta = 0^\circ$) et de faire varier i entre 0 et 90° (configuration de la Figure 86).

Notre but est ici de prouver que cette inversion est possible en montrant que pour toutes valeurs α et β , appartenant à $[0 ; \pi/2]$ et ϕ_0 , appartenant à $[-\pi/2 ; \pi/2]$, on a la relation :

$$I(i = \alpha; \theta = \beta; \phi = \phi_0) = I(i = \beta; \theta = \alpha; \phi = \phi_0) \quad (169)$$

Nous allons pour ce faire, procéder en deux étapes distinctes. D'après la formule (164), l'intensité diffusée est fonction d'une part du spectre de rugosité γ de la surface, et d'autre part, du facteur C . Nous allons donc considérer séparément l'effet de l'inversion des axes statique et mobile que nous proposons sur chacun de ces deux facteurs.

Commençons par le spectre de rugosité de la surface.

Notons $\bar{\sigma}_{Diff}$ la pulsation spatiale correspondant à une mesure de diffusion classique, et $\bar{\sigma}_{AOS}$, celle correspondant à une mesure effectuée dans la configuration inversée. Si on considère que β est l'angle qui reste fixe lors de la mesure et α celui qui varie, on a :

$$\bar{\sigma}_{Diff} = 2\pi \frac{n_0}{\lambda} (\sin \alpha - \sin \beta) \begin{Bmatrix} \cos \phi_0 \\ \sin \phi_0 \end{Bmatrix} \quad (170)$$

et :

$$\bar{\sigma}_{AOS} = 2\pi \frac{n_0}{\lambda} (\sin \beta - \sin \alpha) \begin{Bmatrix} \cos \phi_0 \\ \sin \phi_0 \end{Bmatrix} \quad (171)$$

on a donc :

$$\bar{\sigma}_{AOS} = -\bar{\sigma}_{Diff} \quad (172)$$

d'où :

$$\hat{h}(\vec{\sigma}_{AOS}) = \hat{h}(-\vec{\sigma}_{Diff}) \quad (173)$$

Or, la fonction h décrit le profil de la surface étudiée, c'est donc une fonction réelle. Par conséquent, \hat{h} possède la symétrie hermitienne, et on peut écrire :

$$\hat{h}(-\vec{\sigma}_{Diff}) = \overline{\hat{h}(\vec{\sigma}_{Diff})} \quad (174)$$

où \bar{z} est le complexe conjugué de z .

on peut donc en déduire que :

$$\begin{aligned} |\hat{h}(\vec{\sigma}_{AOS})|^2 &= |\hat{h}(-\vec{\sigma}_{Diff})|^2 \\ &= \left| \overline{\hat{h}(\vec{\sigma}_{Diff})} \right|^2 \\ &= |\hat{h}(\vec{\sigma}_{Diff})|^2 \end{aligned} \quad (175)$$

et a fortiori, d'après la formule (167) que :

$$\gamma(\vec{\sigma}_{AOS}) = \gamma(\vec{\sigma}_{diff}) \quad (176)$$

Nous pouvons donc dire de manière certaine que l'inversion de l'axe mobile ne change rien sur les variations de γ en fonction de l'angle variable α .

Intéressons nous maintenant au facteur C .

En lumière non polarisée, on a :

$$C = \frac{1}{2}(C_{SS} + C_{PP}) \quad (177)$$

Dans le plan d'incidence ($\phi = 0^\circ$), on démontre que¹⁶ :

$$C_{ss}(\phi = 0) = \frac{4n_0^4 k_0^4 (n_s^2 - n_0^2)^2 \cos^2 \theta \cos^2 i}{\left\{ n_0 \cos \theta + n_s \cos \left[\arcsin \left(\frac{n_0}{n_s} \sin \theta \right) \right] \right\}^2 \left\{ n_0 \cos i + n_s \cos \left[\arcsin \left(\frac{n_0}{n_s} \sin i \right) \right] \right\}^2} \quad (178)$$

et :

$$C_{pp}(\phi = 0) = 4n_0^4 (n_s^2 - n_0^2)^2 k_0^4 \frac{\left| \cos \theta \cdot \cos \left[\arcsin \left(\frac{n_0}{n_s} \sin \theta \right) \right] \cos i \cdot \cos \left[\arcsin \left(\frac{n_0}{n_s} \sin i \right) \right] - \cos \theta \cdot \sin \theta \cdot \sin i \cos i \right|^2}{\left\{ n_s \cos \theta + n_0 \cos \left[\arcsin \left(\frac{n_0}{n_s} \sin \theta \right) \right] \right\}^2 \left\{ n_0 \cos \left[\arcsin \left(\frac{n_0}{n_s} \sin i \right) \right] + n_s \cdot \cos i \right\}^2} \quad (179)$$

Les deux formules sont symétriques en i et θ , on peut donc là aussi inverser les axes mobiles.

L'intensité diffusée est donc symétrique en i et θ . Autrement dit, les mesures de diffusion effectuées à incidence fixe avec un détecteur mobile sont équivalentes aux mesures effectuées avec un détecteur fixe, en faisant varier l'angle de détection.

3. Approche expérimentale

Nous utiliserons comme échantillon de référence un échantillon de type lambertien qui est un diffuseur parfait dont nous connaissons parfaitement l'indicatrice de diffusion et qui sert d'étalon pour toutes les mesures de diffusion effectuées au laboratoire. Nous proposons de valider par une mesure de diffusion effectuée sur cet échantillon l'équivalence des deux doublets détecteur mobile - éclairage fixe et détecteur fixe - éclairage mobile. Pour ce faire, nous avons utilisé un montage qui permet de réaliser cette validation expérimentale par simple modification du raccordement de deux fibres optiques. Le schéma de principe de ce montage est donné Figure 89.

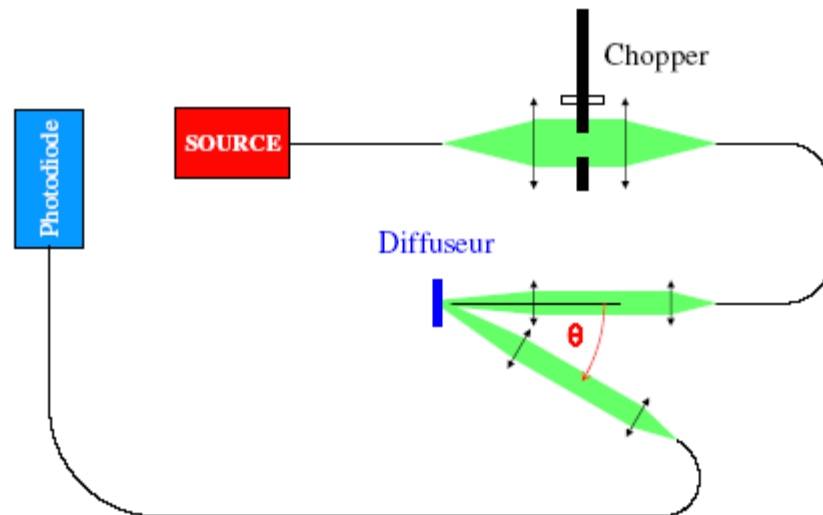


Figure 89 : Schéma de principe du montage de validation de l'inversion de l'axe mobile

a. Calculs photométriques

Le flux émis par une lampe de type quartz-halogène est couplé dans une fibre optique de $200\ \mu\text{m}$ de diamètre de coeur. L'extrémité de cette fibre est placée au foyer d'un système optique télécentrique constitué de deux lentilles ($f_1 = 12\ \text{mm}$, $f_2 = 56\ \text{mm}$) qui en forme une image agrandie dans le plan d'un chopper mécanique. Cette image est ensuite reprise par un système télécentrique de même nature et couplée dans la fibre optique d'éclairage dont le diamètre de coeur est noté $2a_1$ ($200\ \mu\text{m}$).

L'extrémité de cette fibre optique d'éclairage est ensuite imagée à la surface d'un diffuseur lambertien à l'aide d'un nouveau système télécentrique ($f_3 = 10\ \text{mm}$, $f_4 = 190\ \text{mm}$) de grandissement γ ($\gamma = f_4/f_3 = 19$). Un dispositif optique similaire au précédent est utilisé pour collecter le flux diffusé par l'échantillon sous un angle θ . Le diamètre de coeur de la fibre optique utilisée dans cette voie Détection est noté $2a_2$ (à nouveau $2a_2 = 200\ \mu\text{m}$) et son extrémité est reliée à une photodiode au silicium suivie d'un amplificateur de transimpédance et d'une détection synchrone.

i. Voie Éclairage fixe, Voie Détection mobile

Nous considérons dans un premier temps la configuration voie Éclairage fixe, voie Détection mobile. Cette configuration correspond à celle représentée Figure 89, et est représentative de celle utilisée lors d'une mesure de diffusion classique. Si P désigne la puissance couplée dans la fibre optique d'éclairage, l'éclairement E obtenu à la surface de l'échantillon est défini par la relation :

$$E = \frac{P}{\pi(\gamma a_1)^2} \quad (180)$$

La zone éclairée est donc un cercle de diamètre $2\gamma a_1$, et de luminance apparente L définie par :

$$L = \rho \frac{E}{\pi} = \rho \frac{P}{\pi^2(\gamma a_1)^2} \quad (181)$$

où ρ désigne l'albédo du diffuseur.

L'étendue géométrique G associée au système de détection est définie d'une part par l'ouverture numérique $\sin \alpha$ de la fibre (ramenée dans l'espace du diffuseur) et d'autre part par la surface utile de détection S_u observée sous un angle θ . Cette surface utile est constituée par l'intersection entre la surface éclairée (cercle de diamètre $2\gamma a_1$) et la surface apparente de détection (ellipse de petit axe $2\gamma a_2$ et de grand axe $2\gamma a_2/\cos \theta$).

Il vient :

$$G = \pi \frac{\sin^2 \alpha}{\gamma^2} S_u \cos \theta \quad (182)$$

La puissance P_d détectée par la photodiode est donc définie par :

$$P_d = LG = \rho \frac{P \sin^2 \alpha}{\pi a_1^2 \gamma^4} S_u \cos \theta \quad (183)$$

dans notre cas, les fibres d'éclairage et de reprise sont identiques, l'expression de la surface utile S_u prend alors la forme simplifiée suivante :

$$S_u = \pi(\gamma a_1)^2 \quad (184)$$

et la variation de la puissance détectée avec l'angle θ est donc décrite par :

$$P_d = \rho P \frac{\sin^2 \alpha}{\gamma^2} \cos \theta = P_0 \cos \theta \quad (185)$$

ii. Voie Éclairage mobile, Voie Détection fixe

Cette seconde configuration correspond à celle retenue pour la mise en oeuvre de l'Analyseur Optique de Surface à caméra CCD. La zone éclairée est maintenant une ellipse de grand axe $2\gamma a_1/\cos \theta$ et de petit axe $2\gamma a_1$. Si, comme précédemment, P désigne la puissance couplée dans la fibre optique d'éclairage, l'éclairement E obtenu à la surface du lambertien est donc, cette fois, défini par la relation :

$$E = \frac{P}{\pi(\gamma a_1)^2} \cos \theta \quad (186)$$

ce qui correspond à une luminance apparente L donnée par :

$$L = \rho \frac{E}{\pi} = \rho \frac{P}{\pi^2(\gamma a_1)^2} \cos \theta \quad (187)$$

L'étendue géométrique G' associée au système de détection est définie, comme précédemment, par l'ouverture numérique $\sin \alpha$ de la fibre (ramenée dans l'espace du

diffuseur), et par la surface utile de détection S'_u que l'on observe cette fois sous un angle nul. Cette surface utile est constituée par l'intersection entre la surface éclairée (ellipse de grand axe $2\gamma a_1/\cos\theta$ et de petit axe $2\gamma a_2$) et la surface de détection (cercle de diamètre $2\gamma a_2$). Il vient donc :

$$G = \pi \frac{\sin^2 \alpha}{\gamma^2} S'_u \quad (188)$$

La puissance P_d détectée par la photodiode est donc définie par :

$$P_d = LG = \rho \frac{P}{\pi a_1^2 \gamma^4} \sin^2 \alpha S'_u \cos \theta \quad (189)$$

Dans le cas qui nous concerne, c'est à dire, lorsque les fibres d'éclairage et de reprise sont identiques, la surface utile S'_u est donnée par :

$$S'_u = \pi(\gamma a_2)^2 \quad (190)$$

et la variation de la puissance détectée avec l'angle θ est donc décrite par :

$$P_d(\theta) = \rho P \frac{\sin^2 \alpha}{\gamma^2} \left(\frac{a_2}{a_1} \right)^2 \cos \theta = P_0 \left(\frac{a_2}{a_1} \right)^2 \cos \theta = P_0 \cos \theta \quad (191)$$

Le résultat obtenu est donc ici identique à celui établi dans la configuration similaire à éclairage fixe et détection mobile (eq. 185).

Par conséquent, les calculs nous montrent que si on mesure l'indicatrice de diffusion d'un échantillon fortement diffusant dans une configuration classique de mesure (c'est à dire incidence nulle et angle de reprise variable), on obtient la même indicatrice que si on effectue cette même mesure en inversant les axes mobiles (c'est à dire angle de reprise nulle et incidence variable).

Ceci est vrai pour un lambertien, mais est aussi applicable à tout autre type d'échantillon. En effet, il est important de noter que nous avons ici une confirmation de l'approche théorique développée Partie B : Chapitre I : I.2 dans un cas de forte rugosité.

b. Résultats expérimentaux

Pour valider ces résultats, nous avons effectué des mesures de test sur un échantillon lambertien et un verre noir qui nous servira d'échantillon témoin. Les mesures ont été faites avec le banc de validation décrit Figure 89.

Pour chacun des deux échantillons, nous avons fait une mesure dans chacune des deux configurations, à savoir :

- Éclairage fixe, en incidence normale et angle de détection variable (configuration classique d'une mesure de flux diffusé)
- Détection fixe, sur la normale à l'échantillon et angle d'incidence variable. (configuration qui sera utilisée lors de la mise en œuvre de l'Analyseur Optique de Surface)

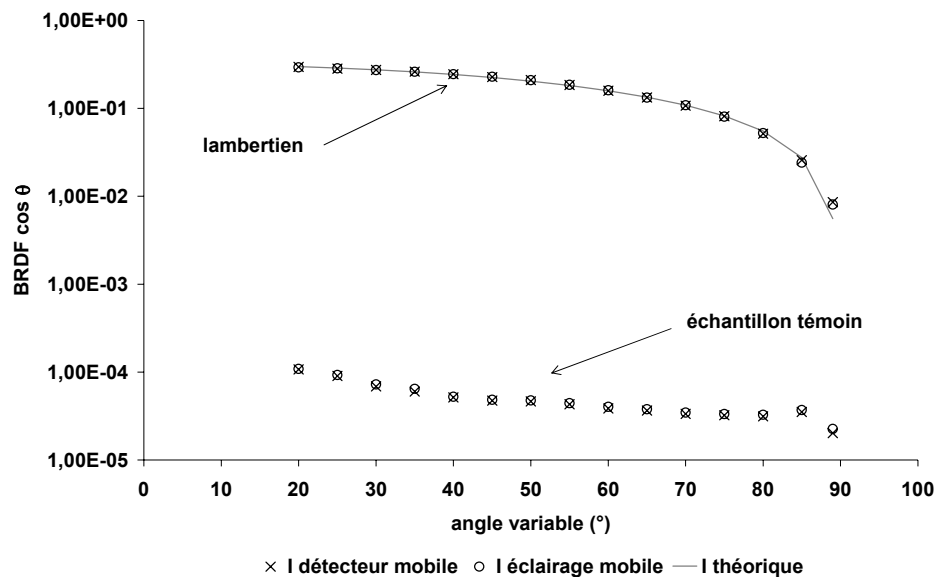


Figure 90 : Mesures de validation de l'inversion des axes mobiles

Les résultats obtenus sont donnés Figure 90, et on peut voir que les indicatrices de diffusion obtenues dans les deux configurations sont confondues pour chacun des deux échantillons. En outre, on peut noter que les courbes obtenues pour le diffuseur parfait de type lambertien correspondent parfaitement à la courbe théorique attendue pour un tel diffuseur, ce qui confirme la cohérence d'ensemble de nos mesures.

On peut donc déduire de l'ensemble de ces vérifications que, pour enregistrer l'indicatrice de diffusion d'une surface, il est parfaitement équivalent de faire varier l'angle de reprise du détecteur à angle d'éclairage fixe ou de faire varier l'angle d'incidence de l'éclairage à angle de détection fixe.

4. Validation numérique

Pour venir compléter les approches théorique et expérimentale que nous venons de décrire au paragraphe précédent, nous avons réalisé des simulations numériques à l'aide d'un programme spécifique développé dans notre équipe et basé sur une modélisation des mécanismes de diffusion. La méthode utilisée sera explicitée plus en détail par la suite (Partie B : Chapitre I : III).

Nous avons considéré une surface carrée de $500 \mu\text{m}$ de côté, présentant une faible rugosité (de l'ordre du nanomètre), et nous avons tout d'abord calculé l'indicatrice de diffusion théorique d'une telle surface, éclairée de manière homogène à une longueur d'onde de 633 nm dans une configuration dite « classique », c'est-à-dire à angle d'éclairage fixe ($i = 0^\circ$) et angle de reprise du capteur variable entre 0 et 90° . Le résultat est représenté Figure 91 (courbe rouge). Puis nous avons appliqué notre modèle au calcul de l'indicatrice de diffusion de cette même surface, mais dans une configuration de mesure renversée, c'est-à-dire à angle de reprise fixe ($\theta = 0^\circ$), et angle d'éclairage variable ($i \in [0, 90^\circ]$). Le résultat est représenté sur le même graphe (Figure 91, courbe bleue).

On constate que les courbes obtenues dans les deux configurations de mesure sont parfaitement superposées. Ceci confirme donc les conclusions de nos approches précédentes.

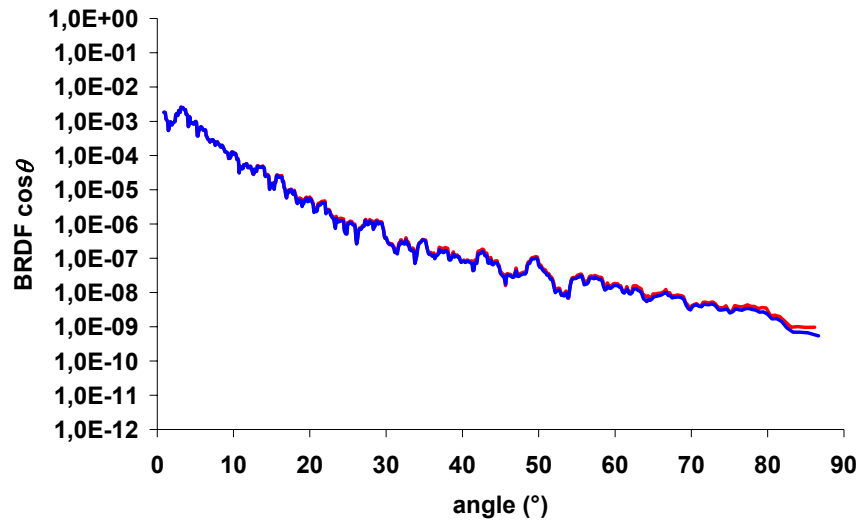


Figure 91 : Indicatrices de diffusion calculées de manière numérique à angle d'éclairage fixe et angle de reprise variable, puis à angle de reprise fixe et angle d'éclairage variable

II. Pourquoi utiliser un imageur ?

Nous venons de voir que le fait d'inverser l'axe mobile lors d'une acquisition n'altère en rien la fiabilité de la mesure. En effet, les courbes d'intensité $I(\theta)$, à i fixe ($i = 0^\circ$) et $I(i)$ à θ fixe ($\theta = 0^\circ$) sont semblables. Nous allons maintenant voir en quoi l'utilisation du système que nous proposons peut compléter une mesure classique de flux diffusé.

Dans une mesure de diffusion classique, on dispose d'un échantillon qu'on éclaire avec un spot de diamètre s (s est de l'ordre de 2 mm), et on effectue une mesure de flux diffusé qui va nous donner une information sur toute la surface éclairée (Figure 92). Les deux problèmes qui se posent alors sont que, d'une part, la surface réellement caractérisée reste petite devant la surface totale de l'échantillon et que, d'autre part, l'information obtenue se trouve moyennée sur toute la surface éclairée. La conséquence première de ceci est qu'en présence de défauts ou d'éléments contaminants sur la surface, l'information donnée par une mesure de $BRDF$ concernera la moyenne de l'ensemble « échantillon + contaminants ». Ce qui veut dire que d'une part, la rugosité déduite de cette mesure de diffusion ne sera pas représentative de la surface étudiée, et d'autre part, il sera très délicat, voire impossible d'en déduire des informations sur la nature des défauts en présence.

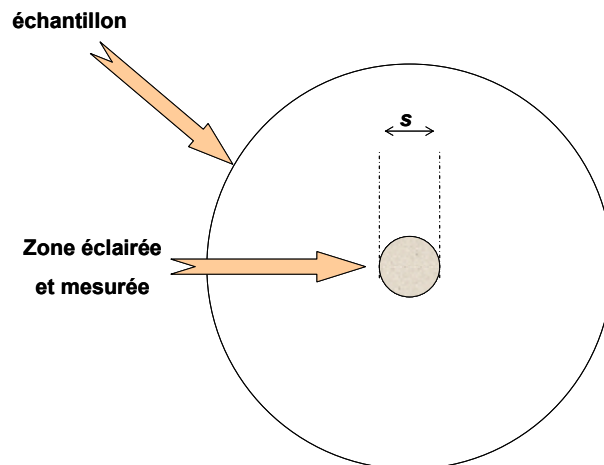


Figure 92 : Zone mesurée par une mesure de flux diffusé classique

L'analyseur optique de surface que nous nous proposons de développer permettrait de résoudre ces deux problèmes. En effet, tout d'abord, nous choisissons d'éclairer une surface plus grande (Figure 93) qui pourra même couvrir l'intégralité de l'échantillon. Ensuite, on image avec une caméra CCD une surface carrée de côté $N_p L$, au sein de la surface éclairée. Cette surface imagée va être elle-même décomposée en N_p^2 surfaces élémentaires de côtés L , les valeurs de N_p et L dépendant directement des caractéristiques de la caméra (N_p étant la résolution de la caméra et L la taille sur l'échantillon de la surface imagée sur un pixel de la caméra). En choisissant une caméra et des optiques adaptées à notre application, nous pourrions aisément mesurer une surface sur l'échantillon nettement plus grande que dans le cas d'une mesure de flux diffusé et imager la totalité de la surface éclairée.

En outre, nous pourrions caractériser séparément les surfaces dites élémentaires imagées par chaque pixel de la caméra. En fait, on pourra viser entre les impuretés pour avoir les caractéristiques intrinsèques de la surface ou à l'inverse sélectionner les éléments de surface qui présentent des défauts pour en connaître la nature.

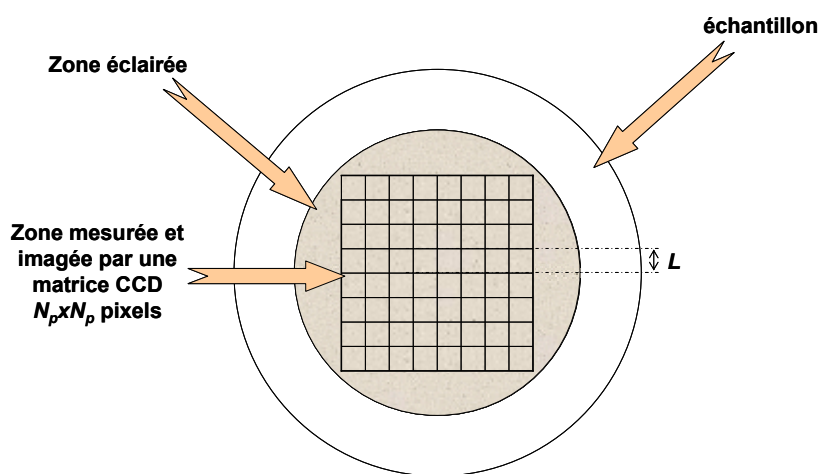


Figure 93 : Zone mesurée par l'analyseur optique de surface

En outre, en cas de présence d'impuretés ou de défauts isolés sur l'échantillon (Figure 94), le fait d'imager la surface étudiée va nous permettre, dans un premier temps de localiser ces défauts et de les compter. Ceci offre l'intérêt de pouvoir faire de manière quasi instantanée une classification des défauts en présence sur la surface. À l'inverse, il sera aussi possible de décider de ne considérer que les pixels imageant des surfaces élémentaires sur lesquelles aucun défaut n'est visible. On obtiendra alors une information sur la rugosité intrinsèque de l'échantillon.

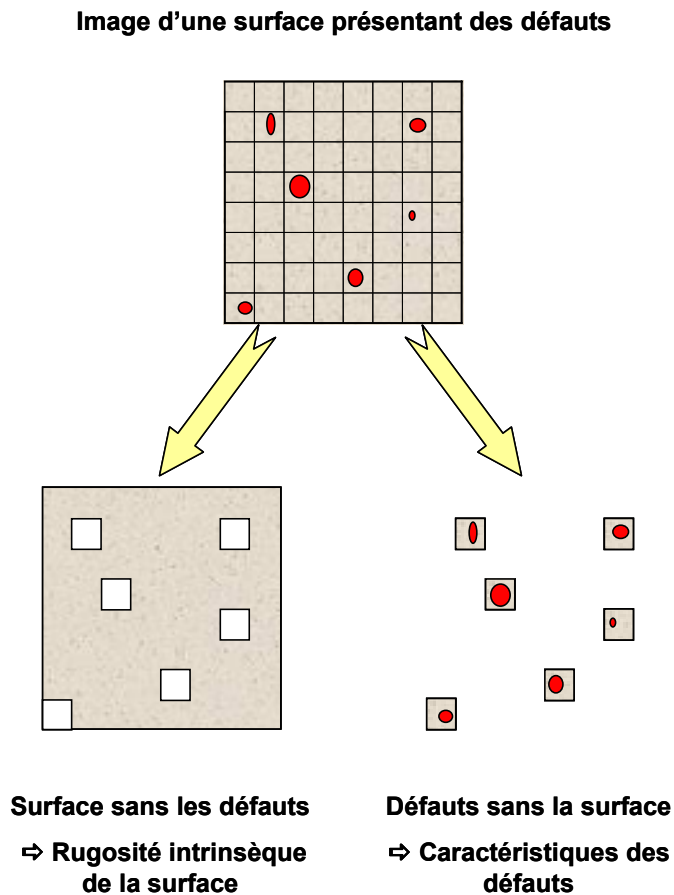


Figure 94 : Intérêt d'un imageur dans le cas d'une surface présentant des défauts.

III. Simulations numériques

Avant de monter le banc de caractérisation, nous avons procédé à quelques simulations numériques nous permettant de prévoir, dans le cas d'un échantillon dont on connaît l'état de surface, les indicatrices de diffusion qui seraient obtenues.

Notre but est de montrer en quoi les informations obtenues grâce à l'analyseur optique de surface que nous voulons réaliser diffèrent de celles que nous donnerait une mesure de diffusion « classique » sur le même échantillon. Pour ce faire nous allons, dans un premier temps, considérer une surface simulée numériquement, d'une taille comparable à la surface analysée lors d'une mesure de diffusion classique. Nous pourrons alors simuler les indicatrices de diffusion qui sont attendues lors de la mesure de cette surface initiale. Puis, dans une seconde étape, nous étudierons cette même surface de la même manière que le ferait l'analyseur optique de surface, autrement dit, nous en extrairons des éléments de surface qui sont de la taille de la surface imagée par chaque pixel du capteur CCD de notre montage.

Donc pour résumer, nous avons choisi d'étudier les indicatrices obtenues dans les 2 cas de figures suivants :

- Surface de côté $N_p * L$ sur l'échantillon imagée par $N_p * N_p$ pixels de la caméra et correspondant à la surface prise en compte lors d'une mesure classique de flux diffusé
- Surface de côté L sur l'échantillon correspondant à la surface élémentaire imagée par un pixel de la caméra

1. Méthode

Nous avons pu voir dans la partie précédente (Partie A :Chapitre V :II) qu'il est possible, si on considère une surface faiblement rugueuse imagée par microscopie et par conséquent, échantillonnée, d'en déduire le spectre de rugosité de cette surface sur une certaine bande passante. Nous allons ici utiliser cette propriété pour calculer les indicatrices de diffusion attendues dans les deux cas de figure cités ci-dessus.

Considérons une surface carrée, de coté L , définie avec une résolution de N points et dont le profil est :

$$h_{ij} = h(i\Delta x; j\Delta y) \quad \text{avec } i, j \in [0, N] \quad (192)$$

Le pas d'échantillonnage est alors $\Delta x = \Delta y = L/N$.

Connaissant ces paramètres, on peut calculer \hat{h} , la transformée de Fourier discrète de notre surface:

$$\hat{h}\left(p \frac{2\pi}{L}, q \frac{2\pi}{L}\right) = \frac{1}{4\pi^2} \frac{L^2}{N^2} \sum_{m,n} h\left(m \frac{L}{N}, n \frac{L}{N}\right) \exp\left(-j \frac{\pi}{N}(mp + nq)\right) \quad (193)$$

On peut en déduire directement, le spectre de rugosité de cette surface qui est tel que:

$$\gamma\left(p \frac{2\pi}{L}, q \frac{2\pi}{L}\right) = \frac{L^2}{4\pi^2 N^4} \left| \sum_{m,n} h\left(m \frac{L}{N}, n \frac{L}{N}\right) \exp\left(-j \frac{\pi}{N}(mp + nq)\right) \right|^2 \quad (194)$$

Contrairement à ce qui a été fait pour la caractérisation des substrats transparents, nous ne ferons pas ici la moyenne polaire du module de la transformée de Fourier de h . En effet, pour l'application qui nous intéresse, les échantillons seront immobiles, l'acquisition se fera dans le plan horizontal, et il en sera de même pour l'éclairage. Ceci se traduit d'un point de vue mathématique en considérant uniquement la transformée de Fourier de h à $\sigma_y = 0$.

Par conséquent, le spectre de rugosité γ que nous calculerons lors des simulations numériques présentées ici est tel que :

$$\gamma(\sigma) = \gamma\left(p \frac{2\pi}{L}, 0\right) \quad (195)$$

Ce spectre est alors défini par $N/2$ points sur la bande passante B_μ (voir partie précédente) telle que :

$$B_\mu = \left[0; \pi \frac{N}{L}\right] \quad (196)$$

On a donc au final :

$$\gamma(\sigma) = \gamma\left(p \frac{2\pi}{L}, 0\right) \quad (197)$$

avec p entier $\in \left[0; \frac{N}{2}\right]$.

Le spectre de rugosité de la surface étant connu et la surface à caractériser faiblement rugueuse, on peut utiliser une approximation du premier ordre⁷ donnée Eq 198 pour connaître l'indicatrice de diffusion $I(i, \theta, \phi)$ qui serait obtenue si on faisait une mesure de diffusion.

$$I(i, \theta, \phi) = C(i, \theta, \phi) \gamma(i, \theta, \phi) \quad (198)$$

La *BRDF* ainsi acquise correspondrait à une mesure faite à la longueur d'onde λ , en fonction de l'angle d'incidence i , de l'angle de reprise du détecteur, θ et de l'angle polaire ϕ . λ étant telle que :

$$\begin{aligned} B_\mu &= \left[\left| \vec{\sigma}_{\min} \right| ; \left| \vec{\sigma}_{\max} \right| \right] \\ &= \left[2\pi \frac{n_0}{\lambda} |\sin \theta - \sin i|_{\min} ; 2\pi \frac{n_0}{\lambda} |\sin \theta - \sin i|_{\max} \right] \\ &= \left[0 ; \pi \frac{N}{L} \right] \end{aligned} \quad (199)$$

Une mesure dite « classique » de diffusion est faite le plus souvent à $i = 0$, pour $\theta \in [0 ; \pi/2]$. Par ailleurs, une mesure effectuée avec l'analyseur optique de surface est faite à $\theta = 0^\circ$ pour $i \in [0 ; \pi/2]$. Donc, dans les deux cas, nous avons :

$$\begin{aligned} |\sin \theta - \sin i|_{\min} &= 0 \\ |\sin \theta - \sin i|_{\max} &= \sin\left(\frac{\pi}{2}\right) = 1 \end{aligned} \quad (200)$$

La longueur d'onde λ pour laquelle nous pourrions simuler l'intensité diffusée dépendra donc directement du pas d'échantillonnage de notre surface initiale de la manière suivante :

$$2\pi \frac{n_0}{\lambda} = \pi \frac{N}{L} \quad (201)$$

En outre, toutes nos mesures seront effectuées dans l'air, nous aurons donc :

$$\frac{2}{\lambda} = \frac{N}{L} \quad (202)$$

Même si nous expliquerons pourquoi de manière plus précise lors de la description de notre prototype, Partie B : Chapitre II : I, nous pouvons d'ores et déjà indiquer que chaque pixel de la caméra verra sur l'échantillon une surface proche de $L = 50 \mu\text{m}$ de côté, et que nous utiliserons un éclairage émettant à $\lambda = 847 \text{ nm}$. Ces deux variables sont donc fixées et, de fait, la résolution N des surfaces échantillonnées l'est aussi.

En effet :

$$\begin{aligned} N &= 2 \frac{L}{\lambda} \\ &= 118 \text{ points} \end{aligned} \quad (203)$$

Tous ces paramètres étant précisément définis, il nous a paru préférable d'utiliser pour nos calculs des surfaces simulées numériquement qui correspondent parfaitement à nos critères de définition plutôt que de prendre des surfaces réelles imagées par microscopie.

Nous utiliserons donc, lors de nos simulations, des surfaces élémentaires de $L = 50 \mu\text{m}$ de côté, correspondant à la surface imagée par un pixel, et définie par $N = 118$ points de côté, ou des surfaces plus grandes de côté kL définies par kN points, k étant entier. Ceci nous permettra de simuler les indicatrices de diffusion obtenues à $\lambda = 847 \text{ nm}$ pour chaque surface avec un échantillonnage de $kN/2$ points définissant les domaines angulaires suivants :

➤ Si $\theta = 0, i \in [0 ; \pi/2]$

➤ Si $i = 0$, $\theta \in [0 ; \pi/2]$

2. Applications

Nous présentons ici les résultats obtenus lors de nos simulations.

a. Mesure de diffusion « classique »

Dans un premier temps, nous considérons une surface de $500 \mu\text{m}$ de coté présentant une rugosité rms de $0,86 \text{ nm}$ définie par 1180 points de coté. La surface simulée est donnée Figure 95.

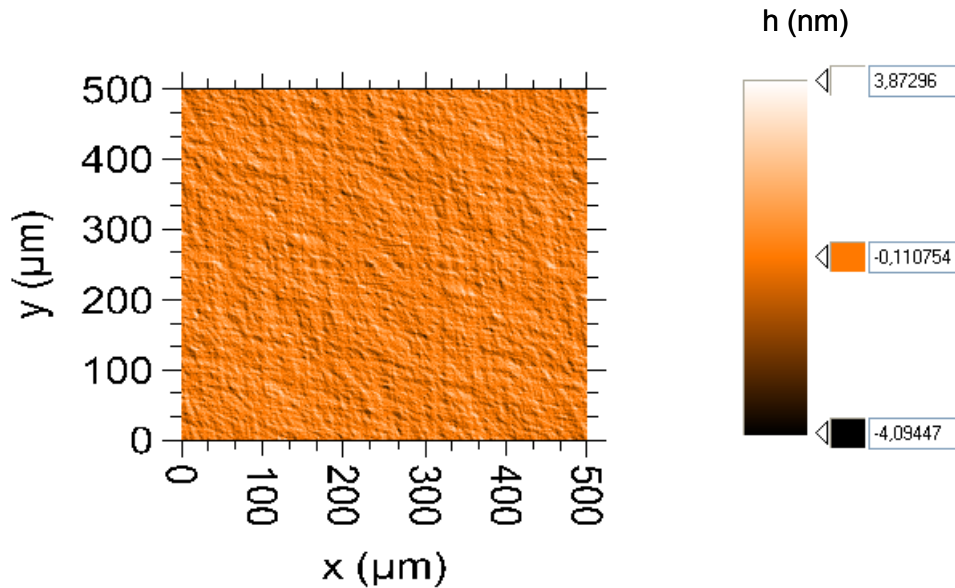


Figure 95 : Surface de « grande » taille ($L = 500 \mu\text{m}$, $N = 1180$ points, $\delta_{rms} = 0,86 \text{ nm}$)

L'indicatrice de diffusion obtenue pour cette surface est donnée Figure 96. Au premier abord, nous pouvons noter que la courbe présente des oscillations de forte amplitude et de fréquence spatiale élevée. En fait, ce phénomène a essentiellement deux causes.

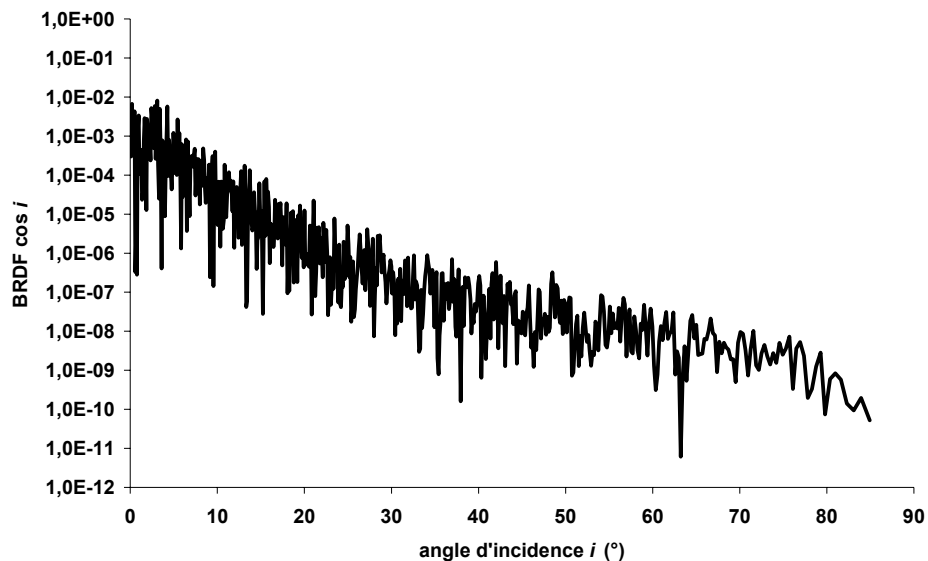


Figure 96 : Indicatrice de diffusion théoriquement obtenue pour la surface donnée Figure 95

La première est qu'ici, contrairement à ce que nous avons fait dans la partie précédente (Partie A : Chapitre V : II), on ne considère plus la moyenne polaire de la transformée de Fourier du profil de la surface, il n'y a donc plus de moyennage des *BRDF* obtenues sous différents azimuths.

La deuxième raison de cet aspect bruité qui est plutôt rarement obtenu en pratique est le nombre de points de définition de l'indicatrice. En effet, la surface étant, définie par 1180 points, la *BRDF* l'est par 590 points qui se répartissent sur une plage angulaire de 90° . De ce fait, les écarts angulaires entre deux points sont de l'ordre de $0,1^\circ$ pour les faibles angles et augmentent progressivement jusqu'à obtenir un écart proche 1° pour les plus grands angles. Pour retrouver une courbe plus lisible et plus proche de celles obtenues expérimentalement, nous avons tracé Figure 97 la même indicatrice en effectuant une moyenne mobile tous les degrés.

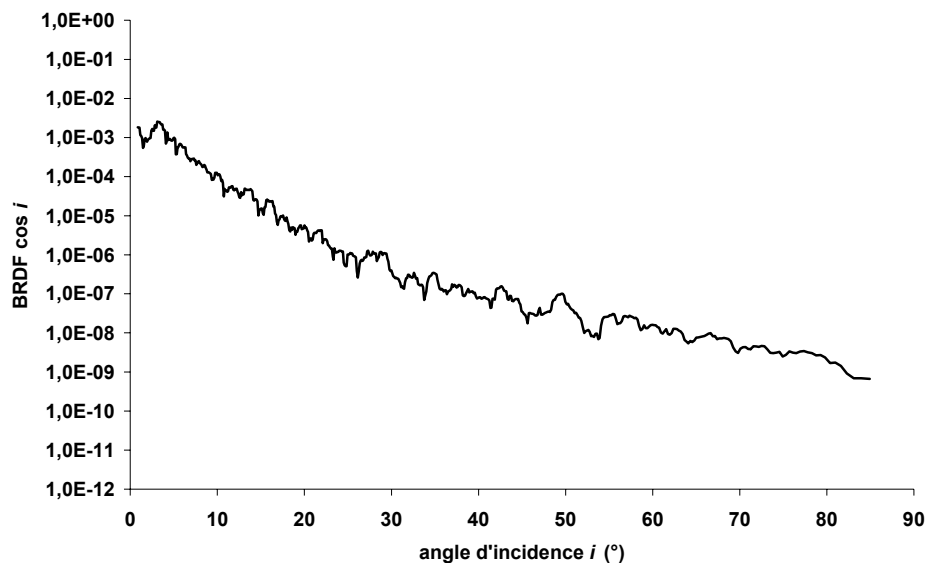


Figure 97 : Indicatrice de diffusion théoriquement obtenue pour la surface donnée Figure 95 intégrée tous les degrés

Par la suite, dans le cas des surfaces présentant un très grand nombre de points, nous présenterons directement le résultat obtenu en faisant une telle moyenne.

Nous venons donc de présenter l'indicatrice de diffusion obtenue dans le cas d'une surface de $500\ \mu\text{m}$ de côté avec un angle de reprise nul ($\theta = 0^\circ$) et un angle d'incidence variant entre 0 et $\pi/2$. Cette courbe qui est celle théoriquement obtenue pour une surface faiblement rugueuse sans aucun défaut nous servira désormais de référence. Il est à noter que cette courbe est également celle qui a été présentée Figure 91 dans le but de valider l'inversion de la mobilité des axes de reprise et d'éclairage du montage.

Nous allons maintenant regarder maintenant ce qui se passe dans le cas où cette surface présente un défaut isolé. Pour ce faire, nous rajoutant numériquement sur la surface initiale donnée Figure 95 un défaut qui a la forme d'une calotte sphérique (Figure 98) de hauteur h et de rayon r .

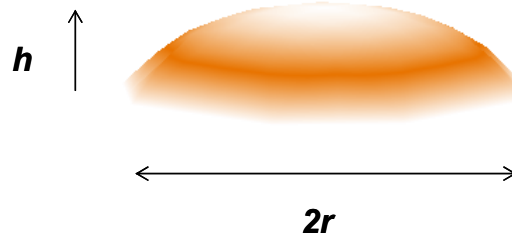


Figure 98: Calotte sphérique de rayon r et de hauteur h

Les indicatrices de diffusion alors obtenues sont données Figure 99 pour $r = 1695$ nm et $h = 100$ nm et Figure 101 pour $r = 2543$ nm et $h = 150$ nm.

On peut voir que la présence d'un unique défaut ne change que très peu la forme et le niveau de l'indicatrice de diffusion et seulement pour les grands angles. Nous avons ensuite augmenté très légèrement le nombre d'impuretés. Dans un premier temps (Figure 100), nous ajoutons à la surface initiale 4 défauts identiques ($r = 1695$ nm et $h = 100$ nm), puis (Figure 102) 4 défauts avec des tailles différentes (toutes inférieures à $r = 2543$ nm et $h = 150$ nm).

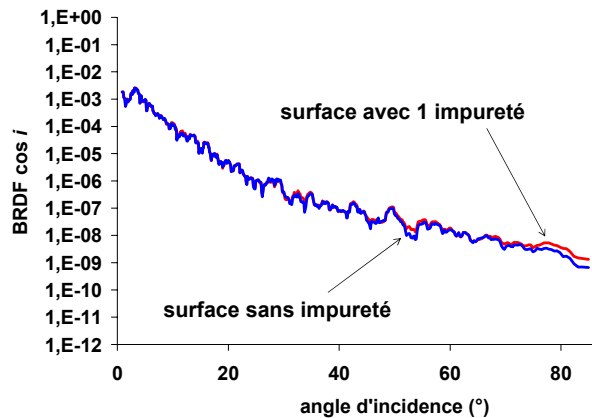


Figure 99 : Indicatrices de diffusion de la surface simple et la surface + une impureté ($r = 1695$ nm, $h = 100$ nm)

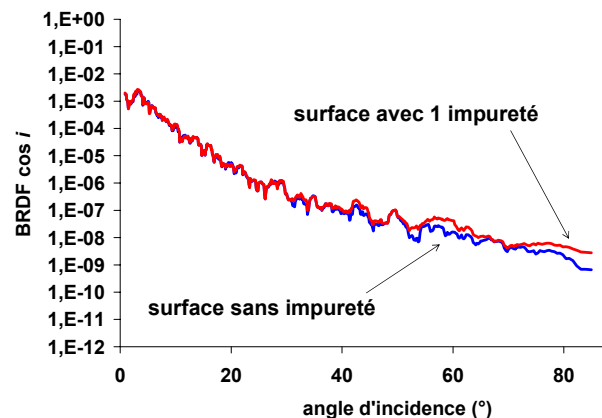


Figure 101 : Indicatrices de diffusion de la surface simple et la surface + une impureté ($r = 2543$ nm, $h = 150$ nm)

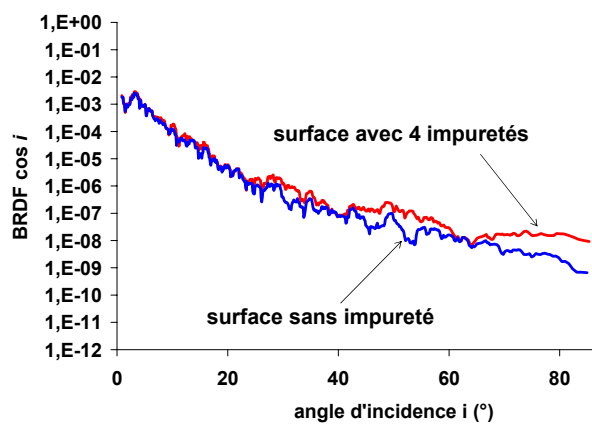


Figure 100 : Indicatrices de diffusion de la surface simple et la surface + 4 impuretés identiques ($r = 1695$ nm, $h = 100$ nm)

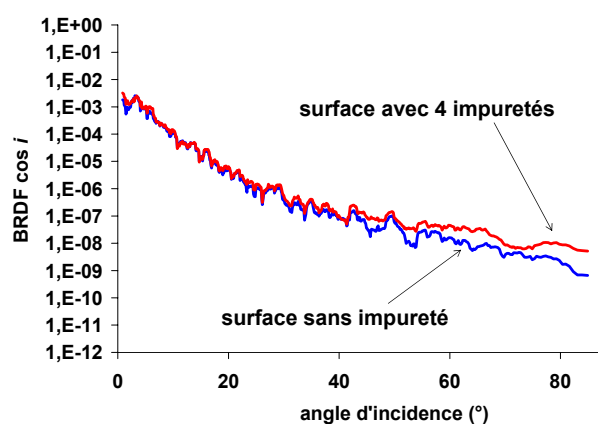


Figure 102 : Indicatrices de diffusion de la surface simple et la surface + 4 impuretés différentes ($r < 2543$ nm, $h < 150$ nm)

On constate que dans le cas où les impuretés ont les mêmes dimensions, on a une légère augmentation du niveau de la courbe pour les grands angles, et on devine un début d'oscillation qui pourrait nous donner une information sur la nature des défauts, ce qui a un sens puisque les défauts sont identiques. En effet, si cette fois, on considère le cas où les défauts sont du même ordre de grandeur, mais différents les uns des autres (Figure 102), on constate, certes, une légère hausse du niveau aux grands angles, mais aussi, l'absence des oscillations naissantes que nous devinions sur la Figure 100.

Or, en pratique, les chances qu'une surface présente des défauts localisés qui ont tous les mêmes dimensions sont, somme toute, assez infimes. Il ne paraît donc pas envisageable d'obtenir des informations sur la forme ou les dimensions des défauts localisés sur une surface à partir d'une simple mesure de diffusion.

Nous allons désormais considérer plus précisément le cas le plus réaliste, qui est celui où les défauts diffèrent les uns des autres et voir ce qui se passe dans le cas où le nombre d'impuretés est plus élevé. Cette fois encore, on considère la surface de base qui est donnée Figure 95 et on y ajoute 10 (Figure 103), 58 (Figure 104) et 130 (Figure 105) défauts de tailles différentes.

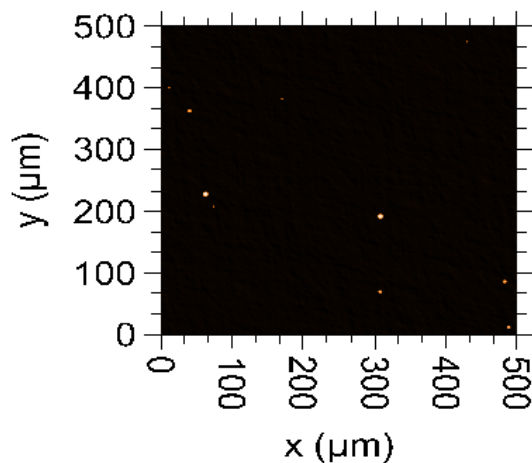


Figure 103 : Surface donnée Figure 95 + 10 défauts

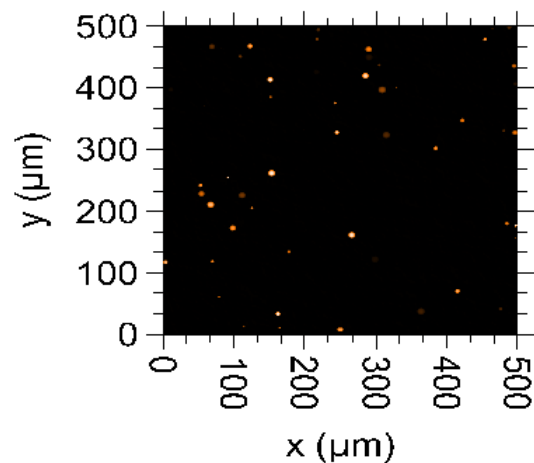


Figure 104 : Surface donnée Figure 95 + 58 défauts de tailles aléatoires

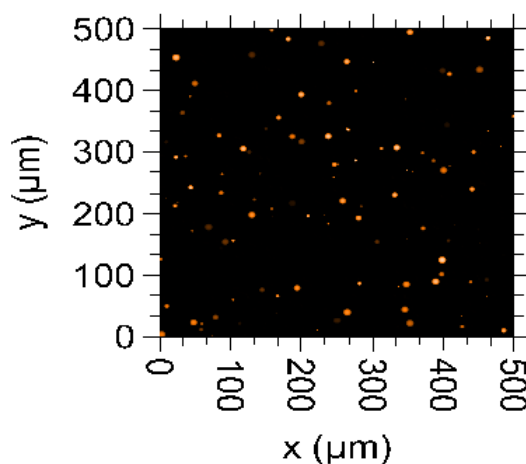


Figure 105 : Surface donnée Figure 95 + 130 défauts de tailles aléatoires

Les indicatrices de diffusion obtenues pour chacune de ces surfaces ont été tracées Figure 106. On constate qu'en cas de présence de défauts le niveau de l'indicatrice est nettement plus élevé et la courbe n'a pas de forme caractéristique. Par conséquent, une mesure de diffusion faite sur un tel échantillon nous donnera une information erronée sur la rugosité de la surface et aucune information sur la nature ou la présence de défauts.

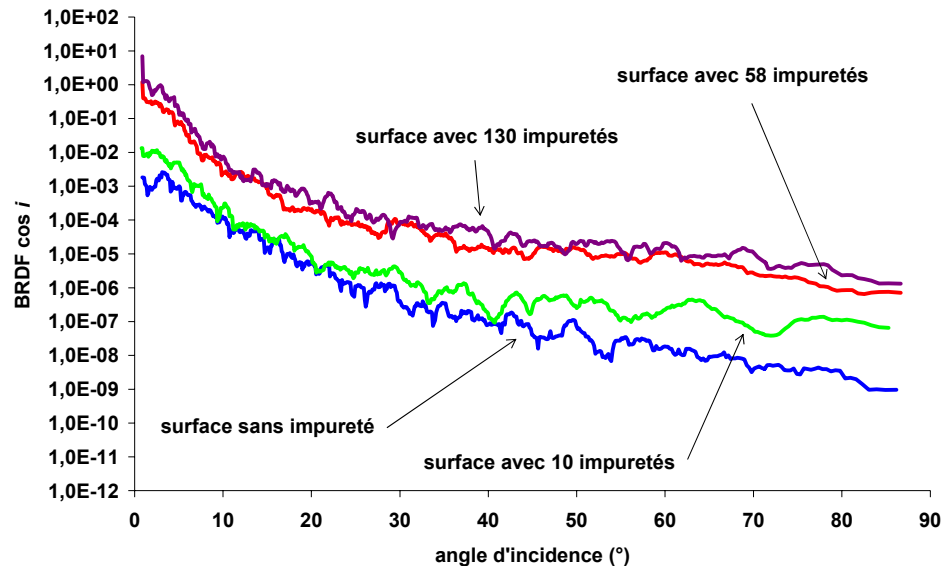


Figure 106 : Indicatrices de diffusion obtenues en cas de présence d'un grand nombre d'impuretés

Pour résumer, si on considère une surface équivalente, en dimensions, aux zones accessibles par une mesure de diffusion classique, la présence de défauts localisés va changer le niveau et la forme de l'indicatrice de diffusion obtenue, mais d'une manière telle que :

- On ne peut la prévoir que si on connaît très exactement les caractéristiques des défauts localisés, ce qui, en pratique, n'est jamais le cas.
- La courbe garde l'allure d'une indicatrice de diffusion standard. Ce qui fait, qu'en l'étudiant comme telle, on a à la fois, une information faussée sur la rugosité intrinsèque de la surface et une absence totale d'information sur la nature des défauts.

Regardons maintenant ce qui se passe si on traite une telle surface comme le ferait l'analyseur optique de surface.

b. Analyseur optique de surface

Nous allons considérer la surface donnée Figure 103. Nous avons donc une surface de $500\ \mu\text{m}$ de côté avec une rugosité *rms* de l'ordre du nanomètre et sur laquelle ont été ajoutés 10 défauts de la forme d'une calotte sphérique répartis comme suit :

- 4 impuretés définies par $r = 1695\ \text{nm}$ et $h = 100\ \text{nm}$
- 4 impuretés définies par $r = 2967\ \text{nm}$ et $h = 150\ \text{nm}$
- 2 impuretés définies par $r = 4238\ \text{nm}$ et $h = 200\ \text{nm}$

Cette surface a déjà été étudiée d'un point de vue global dans la partie précédente, nous allons désormais la traiter comme le ferait l'analyseur optique de surface.

Chaque pixel de la caméra verra une surface de $50\ \mu\text{m}$ de côté, nous allons donc quadriller la surface à étudier en surfaces élémentaires de côté $50\ \mu\text{m}$. Le résultat obtenu est donné Figure 107.

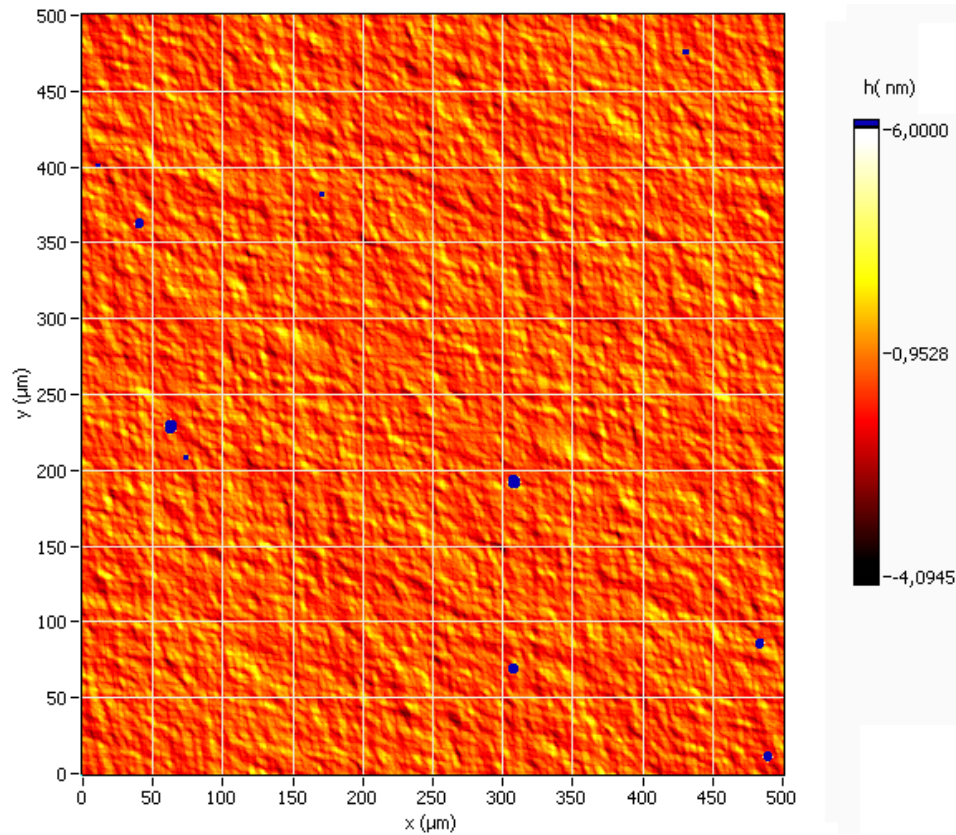


Figure 107 : Quadrillage de la surface étudiée en surfaces élémentaires de $50\ \mu\text{m}$

Ceci étant fait, nous pouvons extraire indépendamment les unes des autres chaque surface élémentaire et calculer l'indicatrice de diffusion attendue si on considère uniquement cet élément de surface.

Commençons par choisir un élément de surface sur lequel aucune impureté n'a été ajoutée. La surface sélectionnée est celle indiquée Figure 108. Elle correspond au pixel numéroté (6-6).

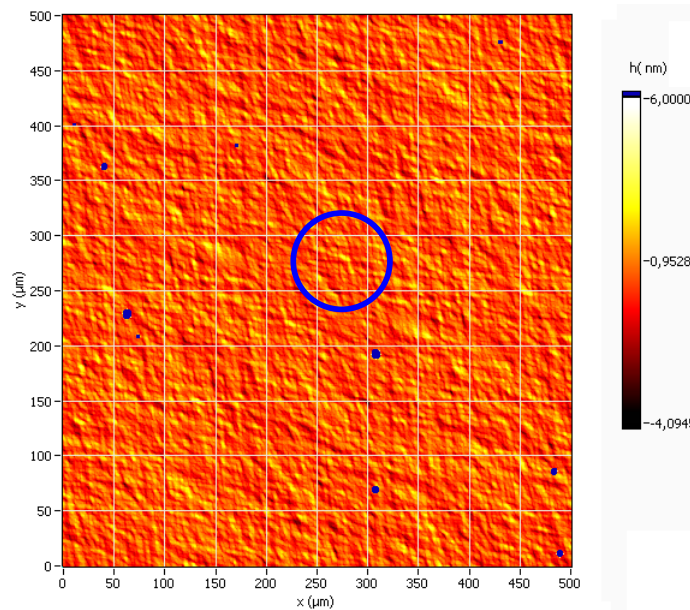


Figure 108 : Pixel sélectionné

L'indicatrice de diffusion obtenue pour cette surface élémentaire est donnée Figure 109. Pour comparaison, nous avons tracé sur le même graphe, l'indicatrice obtenue pour la surface globale avec impuretés. On constate que le niveau du pixel élémentaire est plus bas que celui calculé pour l'intégralité de la surface. On souhaiterait en déduire que l'indicatrice de la petite surface ne tient pas compte de la présence des défauts et ne dépend que de la topographie intrinsèque de l'échantillon. Pour cela, il reste à montrer que l'indicatrice du pixel sans défaut et celles de la surface entière sans défauts présentent le même niveau.

Pour le vérifier, nous avons tracé Figure 110, la *BRDF* calculée pour la surface initiale sans aucun défaut, qui elle ne tient compte que de la rugosité de l'échantillon. On constate que les deux courbes sont approximativement au même niveau. Ce qui confirme que l'indicatrice obtenue pour un pixel unique visant une zone sans défaut est représentative de la rugosité de la surface étudiée malgré la présence de défauts sur les pixels environnants.

Il faut toutefois noter que dans le cas des deux calculs (surface élémentaire ou surface globale), les pas angulaires sont différents parce que les nombre de points de définition des surfaces considérés sont différents. Pour plus de précision, nous avons donc ajusté la moyenne angulaire du calcul de l'indicatrice de la surface globale de manière à obtenir le même pas angulaire et les mêmes angles de définition que pour la surface élémentaire. Les courbes obtenues ont été tracées figures 111 et 112, et on retrouve bien la même hiérarchie dans les niveaux de diffusion que précédemment.

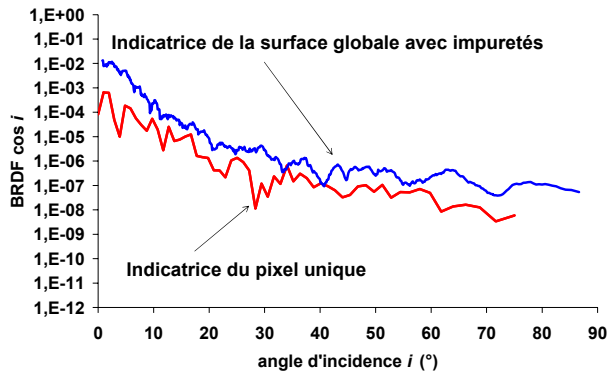


Figure 109: Indicatrices de diffusion du pixel (6-6) et de la surface globale (avec impuretés)

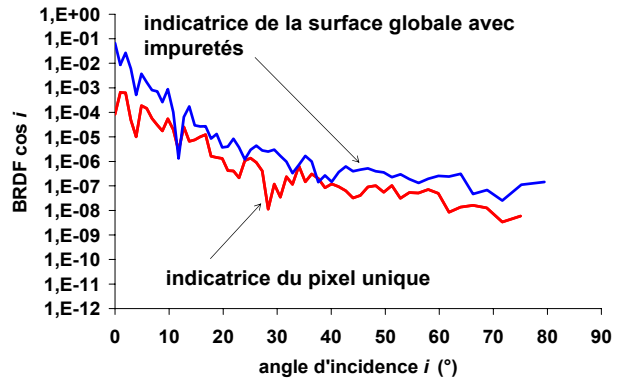


Figure 111 : Indicatrices de diffusion du pixel (6-6) et de la surface globale (avec impuretés) (même pas angulaire)

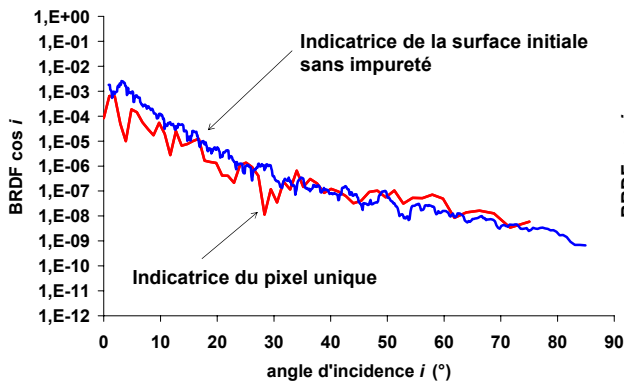


Figure 110: Indicatrices de diffusion du pixel (6-6) et de la surface initiale (sans impureté)

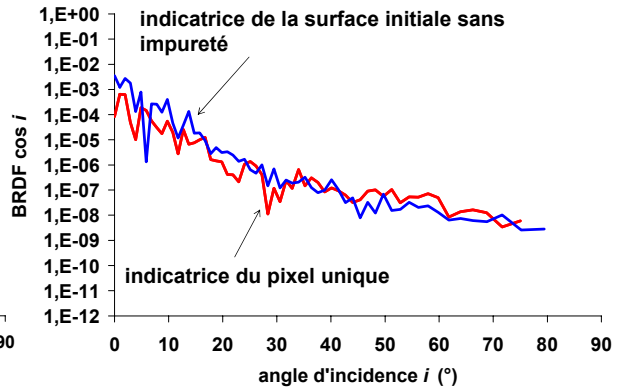


Figure 112 : Indicatrices de diffusion du pixel (6-6) et de la surface initiale (sans impureté) (même pas angulaire)

Choisissons maintenant un pixel qui image une surface présentant une impureté. L'élément de surface sélectionné est donné Figure 113, c'est le pixel numéroté (4-8) qui présente un défaut de dimension $r = 1695$ nm et $h = 100$ nm. L'indicatrice de diffusion attendue pour ce pixel est donnée Figure 114, nous avons dans un premier temps tracé sur le même graphe, l'indicatrice obtenue pour le même élément de surface, mais sans défaut. Nous pouvons ainsi voir le changement que la présence d'un défaut a provoqué sur l'indicatrice correspondante.

À titre comparatif, nous avons également tracé Figure 115, l'indicatrice obtenue pour l'intégralité de la surface, donc celle qui serait obtenue par une mesure de diffusion classique. On constate que les deux indicatrices sont globalement au même niveau, mais n'ont pas la même forme. En effet, pour le pixel qui est à l'évidence associé à une impureté, l'indicatrice obtenue présente une structure angulaire oscillante, ce qui est caractéristique d'un diagramme de diffraction par un obstacle de faibles dimensions transverses. De ce fait, si on compare, l'indicatrice de diffusion obtenue pour ce pixel, au diagramme de diffraction attendu pour un défaut isolé identique à celui présent sur le pixel (c'est à dire une calotte sphérique de dimension $r = 1695$ nm et $h = 100$ nm), on constate, Figure 116, qu'on retrouve des oscillations de même niveau et même période dans les deux cas. On peut donc en déduire que la mesure du pixel présentant un défaut peut nous donner une information précise sur la nature du défaut.

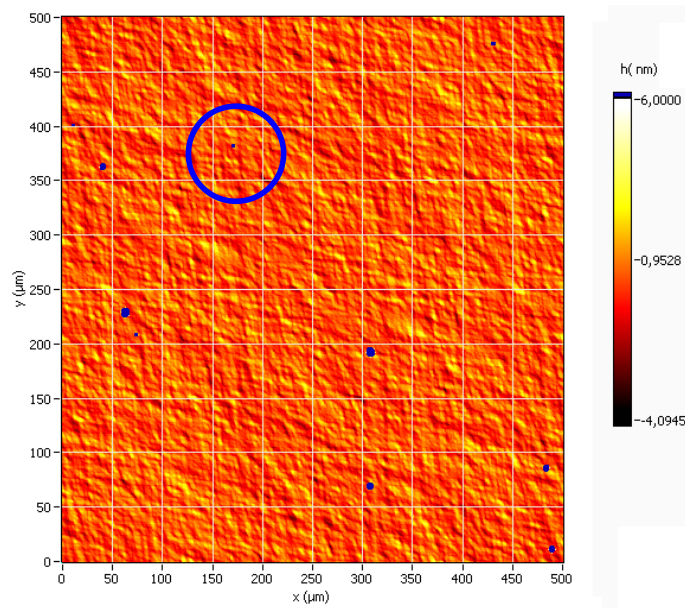


Figure 113 : Pixel imageant une surface élémentaire avec une impureté

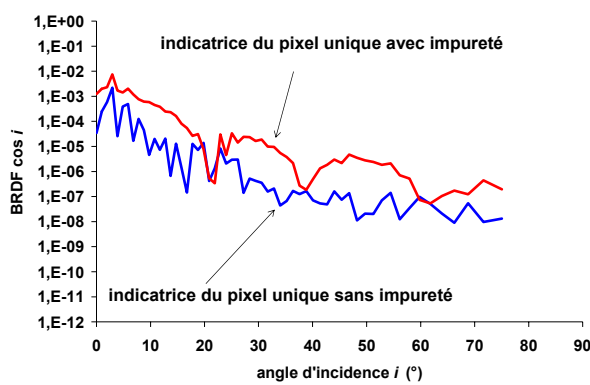


Figure 114 : Indicatrices de diffusion du pixel (4-8) avec et sans impuretés

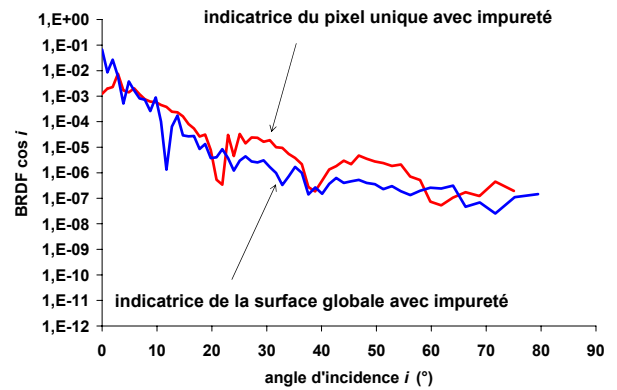


Figure 115: Indicatrices de diffusion du pixel (4-8) et de la surface globale (avec impuretés)

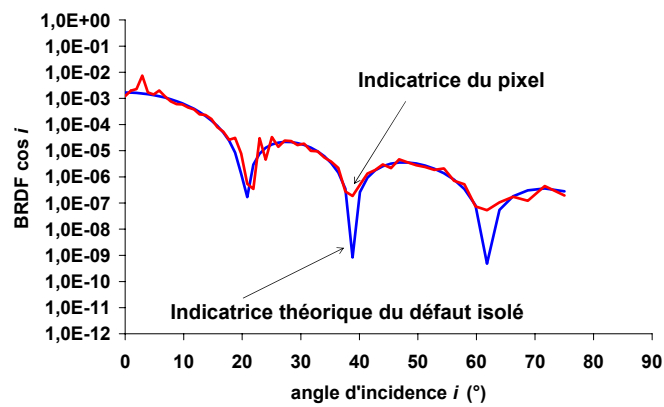


Figure 116 : Indiatrice de diffusion du pixel (4-8) et indiatrice théorique du défaut isolé

Il nous reste à faire une dernière vérification qui concerne les rugosités à proprement parler des surfaces. En effet, la surface initiale dont nous disposons Figure 95, a une rugosité

de 0,86 nm. Si maintenant on considère la surface présentant des impuretés donnée Figure 103, sa rugosité est désormais, 3,93 nm, soit 4,5 fois plus. Nous avons tracé Figure 117 les rugosités obtenues pour chacune des surfaces élémentaires ne présentant pas d'impuretés, soit, 91 surfaces. On constate, que la moyenne de ces 91 rugosités est égale à la rugosité de la surface initiale. Elles nous permettent donc de définir la rugosité intrinsèque de la surface.

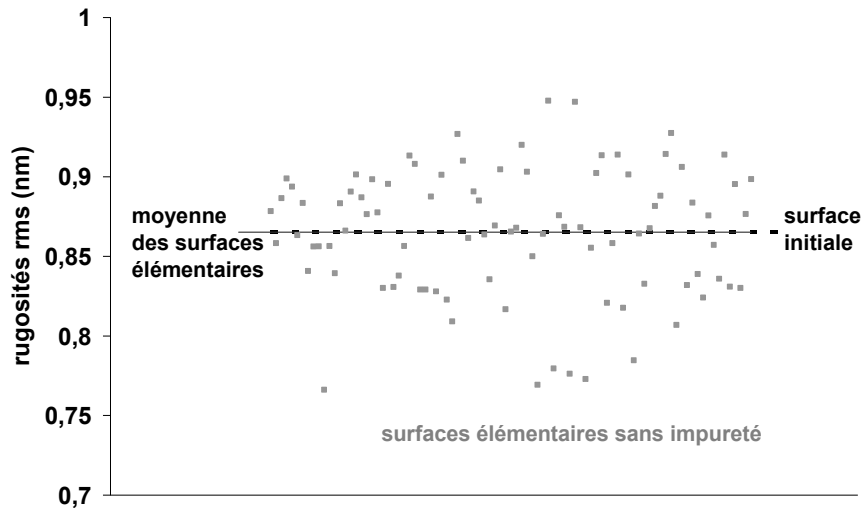


Figure 117 : rugosités des éléments de surfaces ne présentant pas d'impuretés

En conclusion, nous venons de voir, par le biais de simulations numériques que dans le cadre d'une mesure de diffusion classique, la présence de défauts localisés sur la surface à étudier va, d'une part, induire l'obtention d'une information erronée sur la topographie intrinsèque de la surface et d'autre part, ne nous permettra pas d'accéder à la nature ou aux dimensions du défaut. Ces simulations nous ont également permis de montrer que l'analyseur optique de surface dont nous proposons ici le principe rend possible la distinction entre rugosité intrinsèque et défaut lors d'une mesure de diffusion.

En effet, les résultats obtenus indiquent qu'il paraît être possible, avec un tel système, de mesurer la rugosité même de l'échantillon étudié en sélectionnant les pixels qui imagent des zones sans défauts. Et dans un deuxième temps, il est envisageable, en choisissant les pixels qui visent les impuretés, de mesurer l'indicatrice de diffusion caractéristique du défaut présent, ce qui peut nous permettre d'en déduire ses dimensions. Pour mieux nous rendre compte de l'influence des dimensions du défaut sur l'indicatrice de diffusion, quelques simulations ont été faites sur des défauts de différentes tailles.

c. Influence des dimensions du défaut sur l'indicatrice de diffusion : quelques exemples

Notre but n'est pas ici de faire une liste exhaustive des différents types de défauts et des indicatrices de diffusion correspondantes. Nous voulons simplement nous assurer, sur un type de défauts particulier, qu'à chaque dimension de défaut correspond une indicatrice de diffusion précise. Ceci pour confirmer le fait qu'à partir d'une mesure de diffusion, il sera possible, sous réserve d'un traitement des données adapté, de connaître les caractéristiques des défauts.

Nous allons considérer, comme dans les parties précédentes, des défauts de type calotte sphérique de rayon r et de hauteur h . Ce qui nous intéresse est de voir l'indicatrice de diffusion mesurée sur un pixel visant une impureté pour des défauts de différentes dimensions. Nous allons donc, comme précédemment, partir d'une surface de côté $50\ \mu\text{m}$ et

définie par 118 points de coté pour obtenir la $BRDF$ à $\lambda = 847$ nm. Cette fois la surface initiale est parfaitement plane et on y ajoute une impureté. L'indicatrice de diffusion attendue par la mesure d'une telle surface est alors calculée de la même manière que lors des simulations précédentes (Partie B :Chapitre I :III.1). Nous pouvons noter que, dans ce cas précis, les indicatrices obtenues sont directement proportionnelles aux diagrammes de diffraction des défauts considérés.

Par ailleurs, le pas d'échantillonnage des surfaces étudiées est tel que :

$$\begin{aligned}\Delta x = \Delta y &= \frac{L}{N} \\ &= \frac{50000}{118} \\ &= 423,7 \text{ nm}\end{aligned}\tag{204}$$

par conséquent, nous aurons forcément, $r = k\Delta x$, k étant entier. Pour rendre la présentation plus lisible, nous considérerons toujours r égal à $k * 424$ nm.

i. Influence de r à h constant

Nous avons tracé figures 118 à 123 les indicatrices de diffusion attendues pour différentes valeurs de r à $h = 100$ nm.

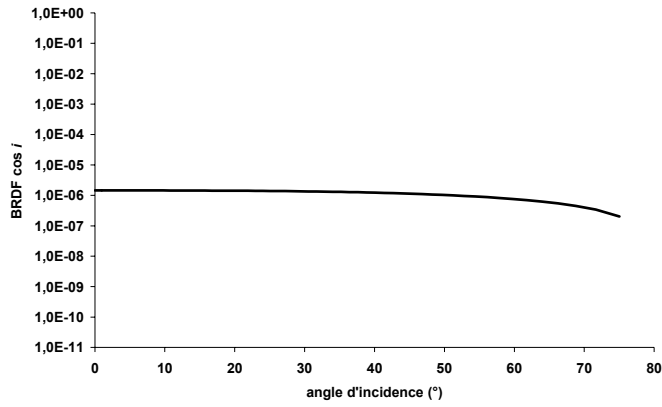


Figure 118 :
 $r = 424 \text{ nm}$ et $h = 100 \text{ nm}$

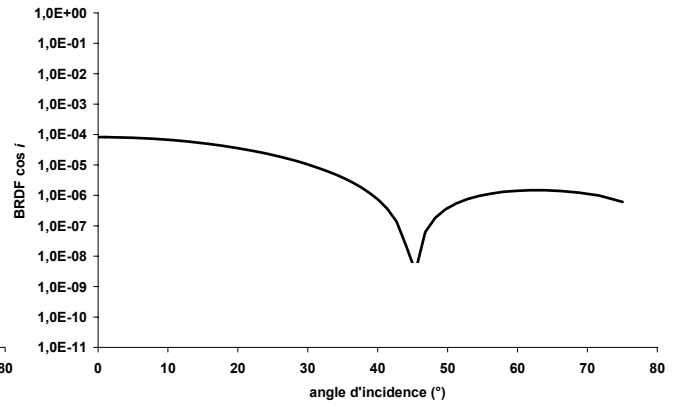


Figure 121 :
 $r = 2 \cdot 424 = 848 \text{ nm}$ et $h = 100 \text{ nm}$

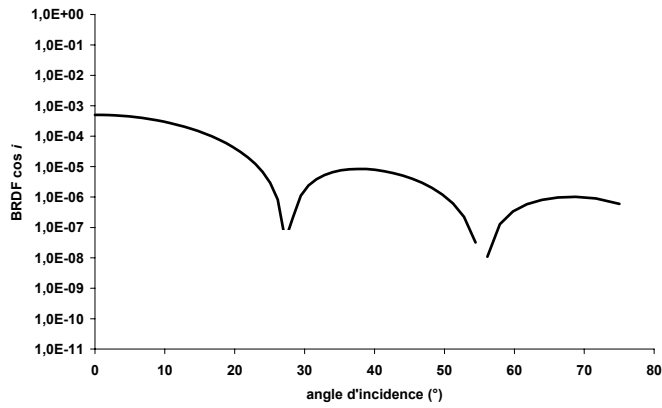


Figure 119 :
 $r = 3 \cdot 424 = 1272 \text{ nm}$ et $h = 100 \text{ nm}$

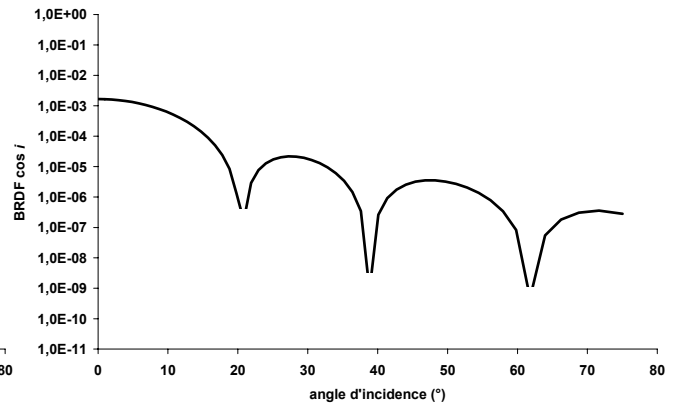


Figure 122 :
 $r = 4 \cdot 424 = 1695 \text{ nm}$ et $h = 100 \text{ nm}$

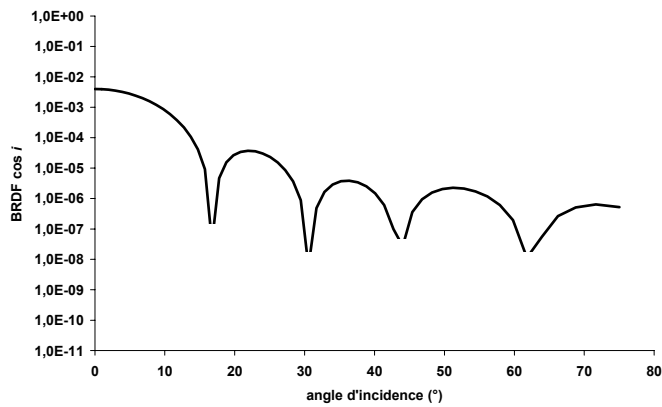


Figure 120 :
 $r = 5 \cdot 424 = 2119 \text{ nm}$ et $h = 100 \text{ nm}$

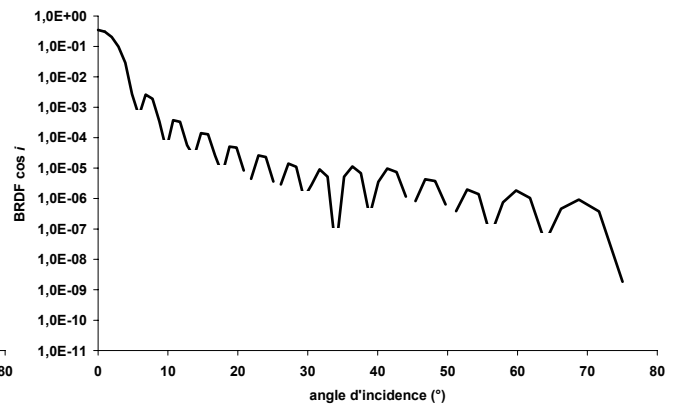


Figure 123 :
 $r = 15 \cdot 424 = 6357 \text{ nm}$ et $h = 100 \text{ nm}$

Figures 118 à 123 : Indicatrice de diffusion calculée pour une surface parfaitement plane ($L = 50 \mu\text{m}$; $N = 118$ points) avec une impureté de dimensions r et h .

On constate que plus r augmente, plus les oscillations sont rapprochées mais que le niveau des courbes reste constant. Les dimensions transverses du défaut imagé sont donc directement liées à la période des oscillations angulaires caractéristiques des indicatrices obtenues sur les pixels présentant des impuretés.

ii. Influence de h à r constant

Nous avons tracé Figure 124 les indicatrices de diffusion calculées pour différentes valeurs de h à $r = 1695$ nm.

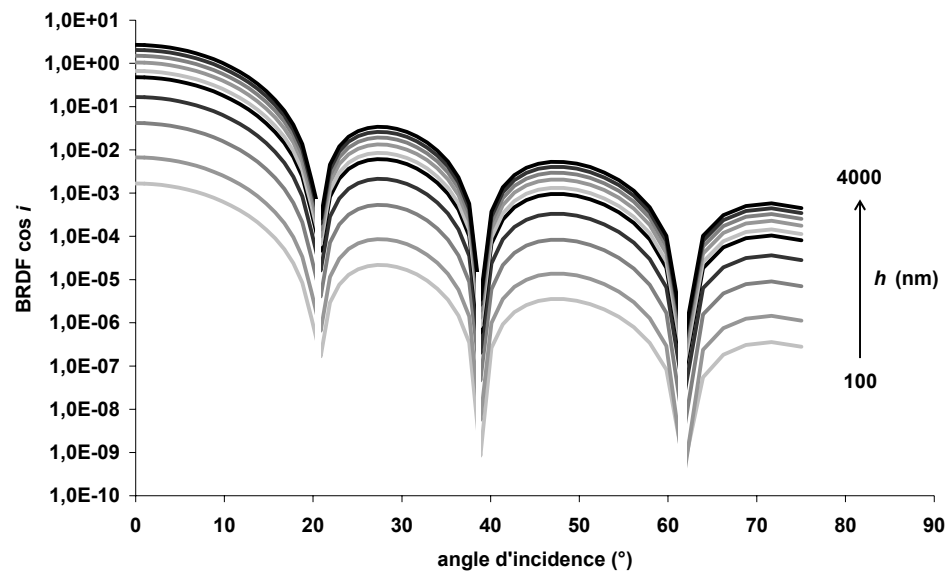


Figure 124: Indicatrice de diffusion calculée pour une surface parfaitement plane ($L = 50 \mu\text{m}$; $N = 118$ points) avec une impureté de dimension $r = 1695$ nm et h variant de 100 à 4000 nm

À l'inverse du cas précédent, ici, seul le niveau de la courbe varie. En effet, plus h augmente, plus le niveau de l'indicatrice augmente, mais la hauteur du défaut ne change en rien la période des oscillations angulaires de la courbe. À titre indicatif, nous avons tracé Figure 125 la variation de l'intensité mesurée pour i proche de 0° en fonction de la hauteur h du défaut présent sur la surface considérée. L'intensité en question est fonction de h sous la forme d'un polynôme du second degré que nous avons également tracé sur ce même graphe.

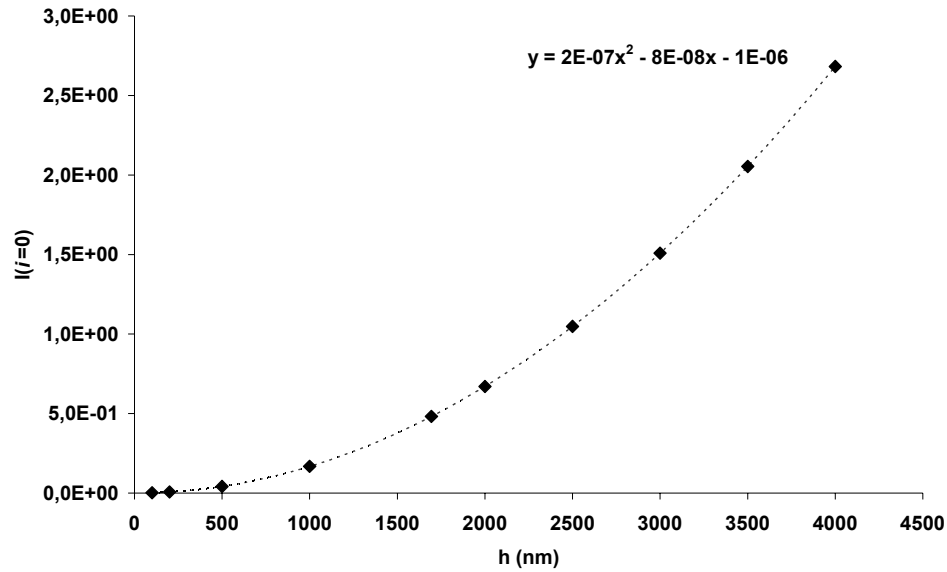


Figure 125 : Intensité calculée pour i proche de 0° en fonction de h avec $r = 1695$ nm

Tout ceci nous montre que si on considère une forme d'impureté donnée, à chaque dimension de défauts, correspond une indicatrice de diffusion précise.

En effet, dans le cas où on sélectionne un pixel imageant un élément de surface qui présente une impureté, les dimensions transverses du défaut vont jouer sur l'allure angulaire de l'indicatrice et la hauteur de la poussière va, quant à elle, modifier le niveau global de la courbe. De la même manière, si on change de forme de défauts, on changera également les caractéristiques de l'indicatrice de diffusion mesurée.

Par conséquent, il semble possible, à partir de la mesure de l'indicatrice de diffusion d'un pixel imageant une surface qui présente une impureté et moyennant un traitement des données adéquat, de déduire de la *BRDF* mesurée les dimensions du défaut considéré.

d. Conclusion

Nous venons de voir que, sur le principe, le dispositif de mesure que nous proposons pour la caractérisation de la rugosité intrinsèque de surfaces optiques présente des avantages importants vis-à-vis des diffusomètres classiques. En effet, il permet, à partir d'une unique acquisition d'étudier un échantillon sous deux angles de vision totalement antagonistes.

D'une part on peut s'affranchir de l'influence sur le résultat de la mesure de la présence de défauts localisés ou de poussières et obtenir ainsi une information sur la topographie intrinsèque de l'échantillon.

D'autre part, on peut, en sélectionnant un pixel qui image une surface élémentaire présentant une poussière, obtenir la réponse angulaire spécifique du défaut en question, ce qui pourra par la suite, nous donner une information sur la forme ou les dimensions du défaut.

L'ensemble des simulations et validations effectuées nous laissent présager de l'intérêt que peut présenter un dispositif expérimental tel que l'analyseur optique de surface que nous nous proposons de mettre en œuvre. Au vu de ces résultats prometteurs, nous avons donc décidé de réaliser le prototype.

Chapitre II :
***D'un point de vue plus
pratique***

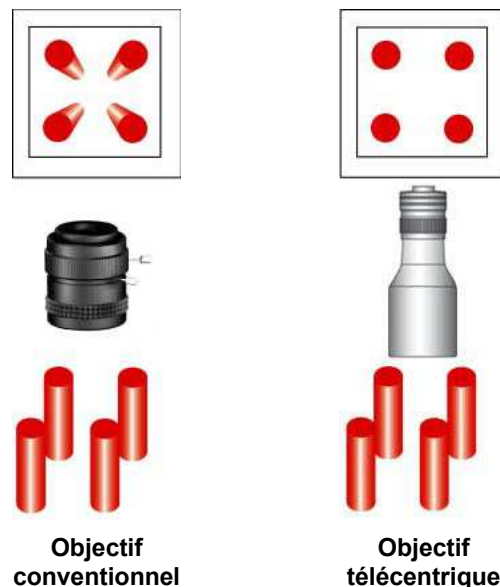
I. Choix du matériel

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, nous voulons mettre en œuvre un dispositif expérimental permettant d'enregistrer les variations angulaires de la lumière diffusée par l'échantillon mesuré. Le dispositif que nous proposons sera différent d'un diffusomètre classique par le fait que, d'une part, la voie d'éclairage sera mobile, et d'autre part, le détecteur restera fixe, ce qui nous permettra d'imager la surface et d'utiliser un capteur de type caméra *CCD*. L'intérêt d'un tel appareillage réside dans la possibilité de mesurer séparément les indicatrices de diffusion des éléments de surfaces présentant des défauts localisés, de celle des surfaces élémentaires sans impureté.

1. Voie de détection

a. Objectif télécentrique

Notre objectif est donc d'arriver à mesurer la diffusion provenant de chaque élément de surface imagé par un pixel du capteur *CCD* de la caméra. Il est important que cette mesure soit réalisée dans des conditions identiques pour chaque pixel, c'est à dire sous le même angle d'observation (ici, proche de 0) et avec le même angle solide de capture du flux diffusé. Si le respect de cette seconde condition n'est pas absolument indispensable à l'obtention d'une mesure de qualité (car la phase de calibration sur un diffuseur parfait lambertien permet d'en annuler les impacts), il est particulièrement important de satisfaire à la première condition, dont les effets ne peuvent être traités par calibration. Le système optique que nous utiliserons pour imager la surface de l'échantillon sur le capteur *CCD* doit donc être télécentrique. En effet, le principe même d'un système télécentrique est d'éliminer toute erreur de perspective lors de l'acquisition d'une image. De ce fait, si on utilise un objectif télécentrique, deux objets identiques apparaîtront identiques sur l'image, même s'ils sont situés en dehors de l'axe, alors que ça n'est pas forcément le cas avec un objectif conventionnel (Figure 126).



schémas tirés du site
www.edmundoptics.com

Figure 126 : Intérêt des objectifs télécentriques

Cette erreur de perspective est annulée par la propriété de base d'un système télécentrique qui est de rejeter la pupille d'entrée de l'instrument à l'infini sur l'axe. C'est ce que schématise la Figure 127, on voit que le diaphragme réel a pour antécédent au travers de L_1 une pupille d'entrée située à l'infini. En outre, on peut voir que la présence de l'élément diaphragmant au foyer commun des deux lentilles va permettre d'imager chaque point de l'objet avec le même angle solide de reprise. Par conséquent, l'utilisation d'un tel système garantit que l'angle moyen sous lequel est mesuré le flux diffusé est égal à zéro pour chaque point de l'échantillon. Il est également possible de régler l'angle de capture du flux diffusé en modifiant le diamètre d'ouverture du diaphragme. Par ailleurs, on peut noter que l'objet est imagé sur le capteur avec un grandissement γ égal au rapport des focales f_1 / f_2 .

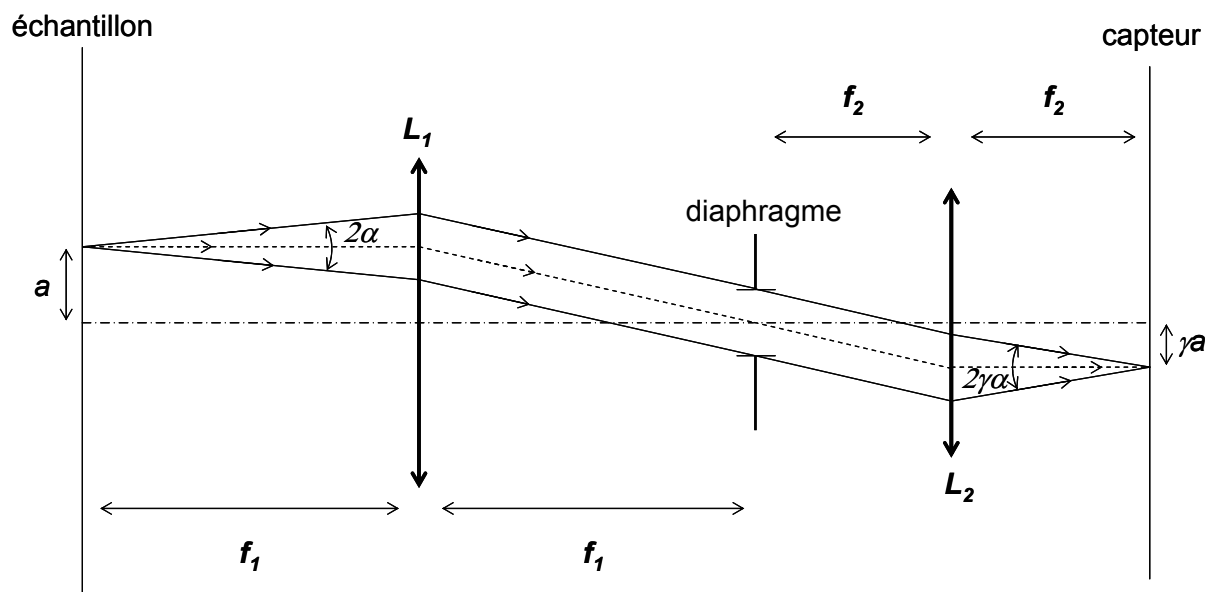


Figure 127 : Système télécentrique de grandissement γ et d'ouverture angulaire α

L'objectif télécentrique que nous utiliserons est un objectif Edmund Optics présentant une distance frontale de 160 mm, une distorsion inférieure à 0,3%, un grandissement de 1/4 et dont le nombre d'ouverture est ajustable entre 6 et 25 à l'aide d'un diaphragme à iris. En outre, le diamètre extérieur de cet objectif est de 48 mm.

b. Caméra CCD

Le plus souvent, au laboratoire, les échantillons caractérisés par le type d'appareillage que nous cherchons à développer sont des empilements multicouches déposés sur des substrats circulaires de diamètre 25 mm, notre prototype doit donc être capable de mesurer des échantillons d'une taille au moins égale à celle-là. Nous allons donc nous fixer comme objectif, dans un premier temps, d'être capable de mesurer deux fois cette surface, soit un cercle de 50 mm de diamètre. Or, les matrices CCD standards sont de forme carrée, il paraît donc plus simple de considérer dès le départ que la zone totale imagée sur la matrice CCD de la caméra sera un carré de 50 mm de côté.

L'objectif télécentrique dont nous disposons et qui va permettre la conjugaison de la face avant de l'échantillon avec le capteur de la caméra a un grandissement de 1/4, l'image d'un objet de 50 mm de côté placé dans le plan frontal de l'objectif sera donc un carré de 12,5 mm de côté. Il nous faut donc un capteur CCD dont la surface totale est d'environ 12,5 mm de côté. Par ailleurs, une résolution de 1024 * 1024 pixels nous permettrait d'avoir

un bon échantillonnage de la surface, sans pour autant atteindre des temps de calculs prohibitifs.

Il est important à ce stade de prendre en compte le fait que nous allons faire des mesures de flux diffusé sur des surfaces présentant de faibles rugosités, par conséquent, les niveaux mesurés risquent d'être extrêmement faibles et donc nécessiter des temps de pose relativement longs. De ce fait, il paraît primordial, d'une part que la caméra puisse atteindre des temps de pose de plusieurs secondes, voire plusieurs minutes, et d'autre part, qu'elle soit refroidie. En effet, l'utilisation d'un système de refroidissement permet de minimiser le courant d'obscurité, qui, sinon, peut devenir très vite prépondérant vis à vis du signal, pour des temps d'intégration longs.

Un autre point important à souligner est que nous voulons mesurer, non seulement des flux diffusés, donc des niveaux très bas, mais aussi des diagrammes angulaires de diffraction d'éventuels défauts localisés, auxquels pourront être associés des niveaux de flux relativement importants. Il paraît donc nécessaire d'avoir une très grande dynamique de mesure lors de l'acquisition. Pour cette raison, il est important que les temps de pose accessibles puissent être très courts (quelques ms) et que la numérisation du signal se fasse sur au moins 16 bits.

Pour respecter l'ensemble de ces critères, nous avons choisi d'utiliser une caméra CCD de type Princeton Instrument - PIXIS 1024 B⁴¹, dont les caractéristiques sont :

- Détecteur CCD : E2V CCD47-10 Back illuminated
- Nombre des pixels : 1024 * 1024
- Taille des pixels : 13 μm * 13 μm
- Gamme spectrale : 320 – 1080 nm
- Cadence de lecture à fréquence minimale : 100 kHz
- Bruit de lecture à fréquence minimale : 4,27 e⁻
- Offset de lecture : 500 coups
- Capacité puits potentiel pixel : 120 000
- Capacité puits potentiel ampli : 240 000
- Numérisation : 16 bits
- Gains : 1, 2 et 4
- Système de refroidissement : Refroidisseur Peltier + air
- Température minimale : -70°C
- Courant d'obscurité : 0,001 e⁻/pixel/s
- Obturateur mécanique
- Temps d'exposition minimal : 50 ms
- Temps d'exposition maximal : jusqu'à saturation des pixels

La dépendance spectrale de l'efficacité quantique du capteur CCD est donnée Figure 128.

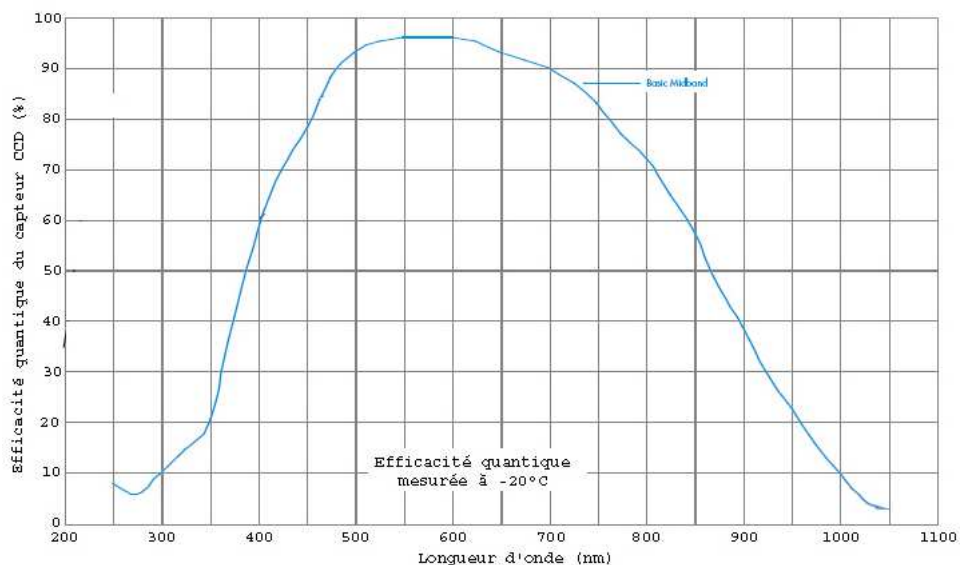


Figure 128 : Efficacité quantique du capteur CCD de la caméra utilisée

Au vu des caractéristiques de la caméra, la taille de l'échantillon imageable est un carré de $13 \mu\text{m} * 1024 * 4 = 53,248 \text{ mm}$ de coté. En outre, l'ensemble de la zone mesurée sera échantillonnée par $1024 * 1024$ pixels, chaque pixel du capteur imagera donc une surface élémentaire de $52 \mu\text{m}$ de coté sur l'échantillon.

Notre voie de détection est désormais complète. Maintenant, il reste à mettre en œuvre une voie d'éclairage adaptée.

2. Voie d'éclairage

Pour le système d'éclairage, trois critères essentiels sont à prendre en compte. Tout d'abord, la zone éclairée doit être suffisamment grande, dans le cas idéal, la totalité de l'échantillon devrait être éclairée. Ensuite, il est important, étant donné l'aspect massivement parallèle des mesures, que l'éclairage soit, comme la voie de détection, télécentrique. Ceci permettant de faire en sorte que l'angle solide sous lequel est éclairé l'échantillon soit le même en tout point de la zone éclairée. Et pour finir, il faut que la puissance d'émission de la source que nous utiliserons soit suffisamment élevée pour avoir une grande dynamique de mesure. Ce dernier point influera directement sur le choix de la source lumineuse, les deux autres critères, quant à eux, joueront sur le choix du système optique par le biais duquel nous illuminerons l'échantillon. Nous commencerons par détailler ce dernier.

a. Système optique d'éclairage

Le système optique d'éclairage que nous proposons est un assemblage de deux lentilles L_1 et L_2 de focales respectives f_1 et f_2 . Le schéma du montage est donné Figure 129. Les foyers des deux lentilles étant confondus, on se retrouve dans une configuration télécentrique. Ce système optique est relié à la source via une fibre optique et le spot obtenu sur la face avant de l'échantillon est en fait l'image de la face de sortie de la fibre par l'ensemble du système. Par conséquent, si $2a$ est le diamètre de cœur de la fibre d'éclairage et γ le grandissement du système, le spot d'éclairage sur l'échantillon est une ellipse de grand axe $2r_{eh}$ et de petit axe $2r_{ev}$. Les dimensions de ce spot varient en fonction de l'incidence de la manière suivante :

$$r_{ev} = \gamma a$$

$$r_{eh} = \frac{\gamma a}{\cos i}$$
(205)

où i est l'angle d'incidence de l'éclairage.

En outre :

$$\gamma = \frac{f_1}{f_2}$$
(206)

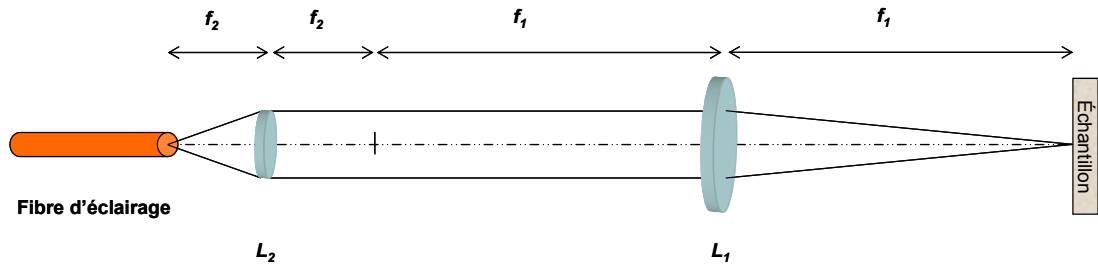


Figure 129 : Système optique d'émission – schéma

Les lentilles que nous utiliserons sont telles que : $f_1 = 189$ mm et $f_2 = 10$ mm. Le grandissement de l'ensemble sera donc $\gamma = 18,9$. Par ailleurs, nous utiliserons pour relier la source lumineuse au système d'éclairage des fibres à saut d'indice, le diamètre de cœur pouvant être au choix, 200 ou 600 μm . De ce fait, la taille du spot sur l'échantillon pourra être respectivement 3,78 ou 11,4 mm de diamètre en incidence nulle et il atteindra les bords de l'échantillon pour un angle d'incidence qui sera respectivement de 80 et 63°.

Il nous reste désormais à choisir le dernier élément du montage qui en est la source lumineuse.

b. Source lumineuse

La source qui viendra compléter ce montage doit posséder certaines caractéristiques. Elle doit tout d'abord être incohérente, pour éviter toute présence de speckle, tout en ayant un spectre d'émission suffisamment étroit pour ne pas conduire à une réponse moyennée sur une trop grande plage spectrale. Et pour finir, elle doit être suffisamment puissante pour permettre de mesurer des échantillons faiblement diffusants.

Nous disposons d'une source de type SUPERLUM - Broadlighter S 840⁴². C'est une diode super radiante, incohérente, centrée à 840 nm, dont la puissance émise est de 15 mW, et la largeur spectrale à mi-hauteur de 50 nm (Figure 130). Cette source répond donc à toutes les conditions que nous nous étions fixées, si ce n'est que son spectre d'émission est centré aux environs de 840 nm, ce qui n'est pas le domaine dans lequel la sensibilité du capteur de la caméra est la plus élevée (Figure 128). Elle reste cependant assez importante sur cette plage spectrale. Nous utiliserons donc cette diode super radiante.

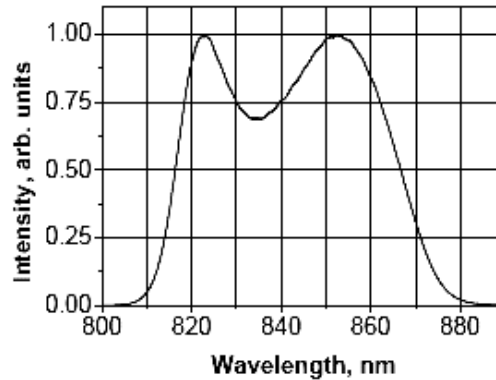


Figure 130 : Spectre d'émission de la source

Cette source présente néanmoins l'inconvénient majeur de n'être pas réglable en intensité. Par conséquent, en utilisant le montage tel que nous le présentons ici, la seule alternative que nous avons pour mesurer des échantillons fortement diffusants est de réduire au maximum le temps de pose de la caméra. Or, ce temps ne peut être réduit en deçà de 50 ms, de ce fait, nous nous voyons contraints d'insérer dans notre montage des filtres atténuateurs permettant de réduire l'éclairement.

La source étant fibrée, nous ne pouvons rajouter de filtre directement en sortie de celle-ci. Nous sommes donc obligés d'insérer cette densité sur le trajet de la lumière entre la source et le système optique d'émission, comme schématisé Figure 131. La lumière issue de la fibre 1 (Figure 131) qui est directement reliée à la source va être imagée sur la densité par le système optique $SO(1)$. Puis, le spot obtenu sur la densité va être, à son tour imagé sur la fibre (2) par le système optique $SO(2)$. La lumière sera ainsi transmise via la fibre (2) au système optique d'émission. Les systèmes optiques $SO(1)$ et $SO(2)$ sont identiques, dans leur principe, au système optique d'émission (Figure 129), mais cette fois, nous avons $f_1 = 59$ mm et $f_2 = 12$ mm. Les densités quant à elles, sont disposées sur une roue à filtre positionnée exactement sur les plans frontaux des deux systèmes optiques. Deux densités différentes (2 et 4) sont ainsi utilisables.

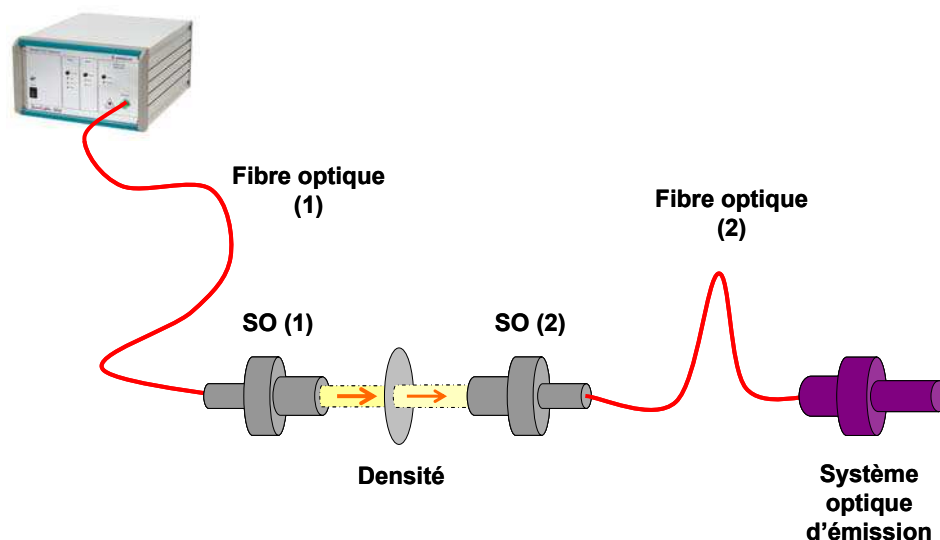


Figure 131 : Voie d'éclairage – Schéma de principe

En outre, en sortie du système optique d'émission, nous ajoutons un diaphragme dans le but de limiter la création de lumière parasite sur le porte-échantillon.

Nous avons donc désormais, choisi et mis en place l'intégralité de notre chaîne de mesure. Le schéma complet du montage et donné Figure 132 et sa photo Figure 133.

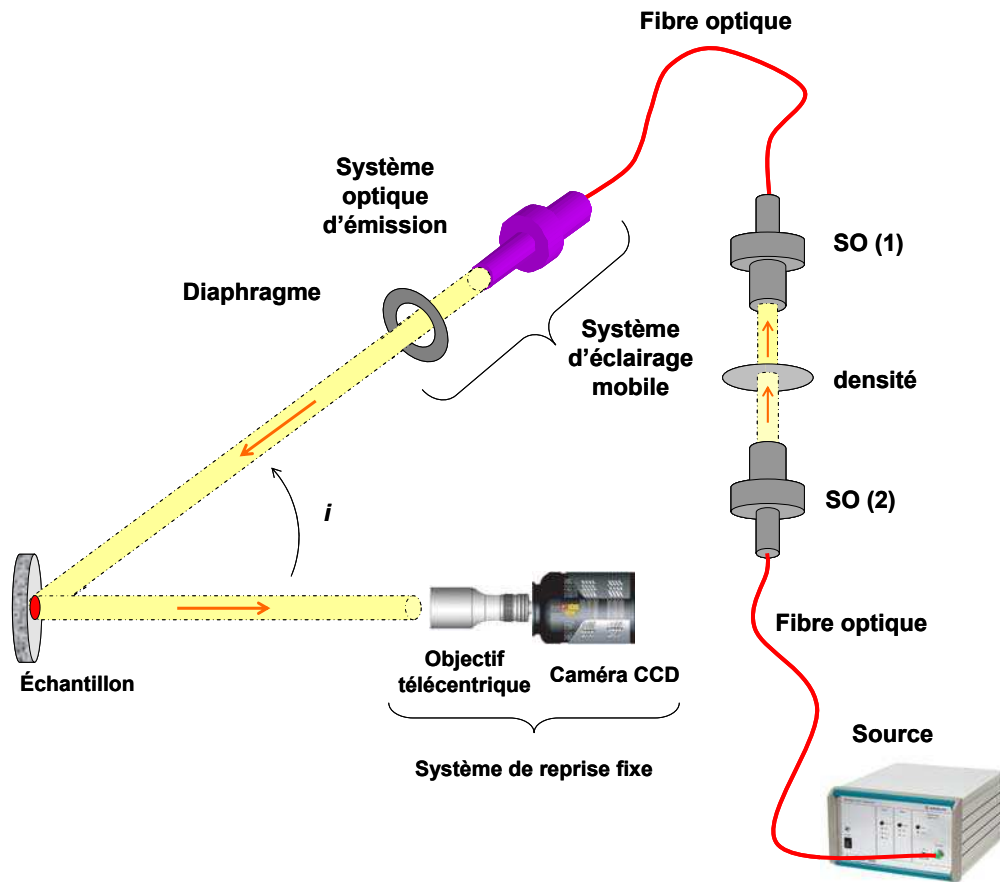


Figure 132 : Analyseur optique de surface – Schéma du montage complet

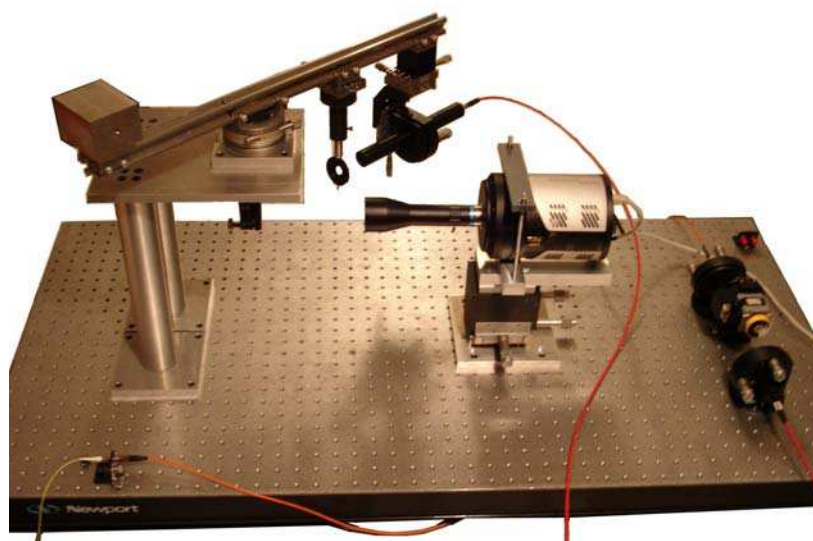


Figure 133 : Analyseur optique de surface - Montage complet

Nous allons donc, maintenant évaluer, par un rapide calcul de photométrie, quel est l'ordre de grandeur des niveaux de diffusion qui seront accessibles par l'analyseur optique de surface.

3. **Évaluation des gammes de fonctionnement et des performances du montage**

Pour ce faire, nous allons déterminer le flux reçu par le capteur CCD en fonction de la puissance de la source lumineuse.

Nous considérerons le cas où il n'y a pas de densité.

Nous nous retrouvons alors dans la configuration décrite Figure 134.

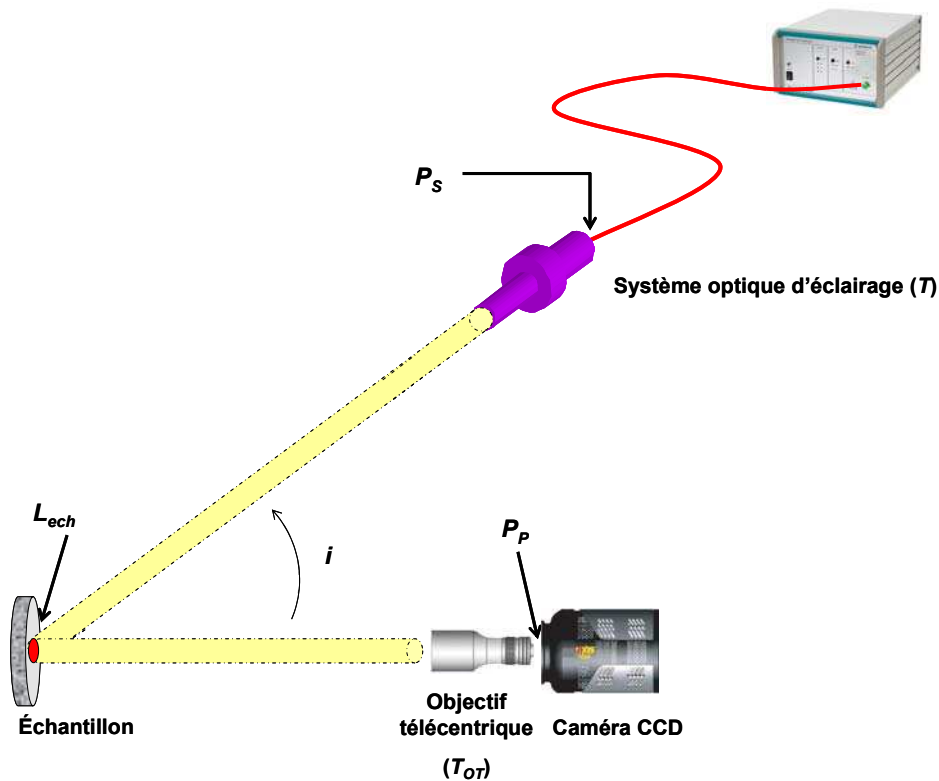


Figure 134 : Configuration de mesure en l'absence de densité

Notons P_s la puissance émise par la source et couplée dans la fibre d'éclairage.

Le flux lumineux P_{ech} arrivant sur l'échantillon est alors :

$$P_{ech} = TP_S \quad (207)$$

où T est le facteur de transmission du système optique d'émission.

On peut alors en déduire directement l'éclairement E_{ech} sur la face avant de l'échantillon :

$$\begin{aligned}
 E_{ech} &= \frac{P_{ech}}{\pi r_{ev} r_{eh}} \\
 &= \frac{TP_S}{\pi \gamma \alpha \frac{\gamma \alpha}{\cos i}} \\
 &= \frac{TP_S}{\pi \gamma^2 a^2} \cos i
 \end{aligned} \tag{208}$$

Nous venons donc de définir l'éclairement de la totalité du système d'éclairage sur l'échantillon. Par conséquent, nous pouvons désormais considérer l'échantillon comme une source secondaire de luminance L_{ech} telle que :

$$L_{ech} = \frac{\rho}{\pi} E_{ech} \tag{209}$$

où ρ est l'albédo de l'échantillon.

Sachant cela, on peut en déduire la puissance reçue par le capteur de la caméra. En effet, si on désigne par E l'éclairement obtenu dans le plan du capteur de la caméra, on a :

$$E = \pi T_{OT} L_{ech} \sin^2 \alpha \tag{210}$$

avec T_{OT} , le facteur de transmission de l'objectif télécentrique et α , son ouverture numérique image.

L'ouverture angulaire nominale de l'objectif est définie par :

$$\tan \alpha = \frac{1}{2N} \tag{211}$$

où N est le nombre d'ouverture donné par le fabricant. Dans notre cas, $N = 6$.

Il ne nous reste donc plus qu'à calculer la puissance lumineuse P_p reçue par un pixel de la caméra.

Si p est le coté d'un pixel, alors :

$$P_p = Ep^2 \tag{212}$$

donc, au final, on a:

$$\begin{aligned}
 P_p &= Ep^2 \\
 &= \pi T_{OT} L_{ech} \sin^2 \alpha p^2 \\
 &= \pi T_{OT} \frac{\rho}{\pi} E_{ech} \sin^2 \alpha p^2 \\
 &= \pi T_{OT} \frac{\rho}{\pi} \frac{TP_S}{\pi \gamma^2 a^2} \cos i \sin^2 \alpha p^2
 \end{aligned} \tag{213}$$

soit:

$$P_p = T T_{OT} \rho \frac{P_s}{\pi \gamma^2 a^2} \cos i \sin^2 \alpha p^2 \quad (214)$$

Si on intègre pendant un temps τ , le nombre moyen \bar{n} de photons reçus par le pixel est alors :

$$\bar{n} = \frac{P_p \tau}{hc} \lambda \quad (215)$$

Si η est l'efficacité de la caméra, alors \bar{m}_s le nombre de photo-électrons accumulés dans le puits pendant le temps τ est :

$$\bar{m}_s = \eta \bar{n} \quad (216)$$

Le nombre de photo-électrons accumulés par un pixel de la caméra pendant le temps τ est donc :

$$\bar{m}_s = \eta \frac{P_p \tau}{hc} \lambda$$

$$\bar{m}_s = \eta \frac{\tau}{hc} \lambda T T_{OT} \rho \frac{P_s}{\pi \gamma^2 a^2} \cos i \sin^2 \alpha p^2 \quad (217)$$

Il nous reste donc désormais à identifier puis quantifier les différentes sources possibles de bruit.

La caméra dont nous nous servons est sensible à différentes sources de bruit :

- Le bruit de photons (σ_s)
- Le bruit quantique associé au courant d'obscurité (σ_D)
- Le bruit de lecture (σ_R)

Soit σ_T le bruit *rms* total engendré par ces sources. σ_T^2 est la variance de ce bruit et est définie par :

$$\sigma_T^2 = \sigma_s^2 + \sigma_D^2 + \sigma_R^2 \quad (218)$$

Le bruit de photons dépend directement du signal mesuré et suit une statistique de Poisson. On a :

$$\sigma_s = \sqrt{\bar{m}_s} \quad (219)$$

Le bruit d'obscurité est tel que :

$$\sigma_D = \sqrt{\bar{m}_D} \quad (220)$$

où \bar{m}_D est le nombre moyen de photons - électrons générés par le courant d'obscurité pour chaque pixel.

Notons i_D est le courant d'obscurité du capteur. On a alors :

$$\bar{m}_D = i_D \tau \quad (221)$$

σ_R est le bruit de lecture du capteur tel qu'il est donné par le constructeur.

Le rapport signal à bruit de notre montage est alors :

$$RSB = \frac{\bar{m}_S}{\sigma_T}$$

$$= \frac{\bar{m}_S}{\sqrt{\sigma_S^2 + \sigma_D^2 + \sigma_R^2}}$$

Soit :

$$RSB = \frac{\bar{m}_S}{\sqrt{\bar{m}_S + i_D \tau + \sigma_R^2}} \quad (222)$$

Nous avons désormais toutes les cartes en main pour évaluer les performances attendues sur notre montage.

Afin de déterminer la dynamique de mesure dont nous disposerons, nous allons dans un premier temps calculer le temps de pose nécessaire à la mesure d'un échantillon fortement diffusant, puis, dans un second temps, évaluer le plus faible niveau de diffusion accessible dans des conditions standards d'utilisation.

Avant toutes choses, il faut rappeler que la numérisation des signaux mesurés par chaque pixel se fait sur 16 bits, de ce fait, le niveau de saturation de chaque pixel est à $2^{16} = 65536$ coups. Nous avons choisi de faire la conversion analogique numérique avec un taux de conversion de $2e^-/\text{coups}$, ce niveau de saturation correspond donc à 131072 photo-électrons par pixel. Or, la capacité du puits potentiel de chaque pixel est inférieure à ce niveau. En effet, elle est de 100000 photo-électrons. C'est donc cette valeur qui sera le seuil de saturation du système.

➤ **Application numérique :**

Les valeurs numériques dont nous disposons sont les suivantes :

$$\lambda = 840 \text{ nm}$$

$$h = 6,62 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$$

$$c = 3 \cdot 10^8 \text{ ms}^{-1}$$

$$2a = 600 \text{ } \mu\text{m}$$

$$\sin \alpha \approx \tan \alpha = 1/12$$

$$p = 13 \text{ } \mu\text{m}$$

$$T = 52\%$$

$$T_{OT} = 25\%$$

$$P_S = 15 \text{ mW}$$

$$i_D = 10^{-3} \text{ e}^-/\text{pixel/s}$$

$$\sigma_R = 4,27 \text{ e}^-$$

a. Échantillon fortement diffusant

Nous allons tout d'abord considérer le cas d'un échantillon fortement diffusant. Nous prendrons pour cela un échantillon de type lambertien d'albédo $\rho = 1$.

Le temps de pose minimale accessible par la caméra est $\tau = 50 \text{ ms}$, sans utilisation de densité, le nombre \bar{m} de photo-électrons attendus sur le pixel est alors supérieur à 100000. Le

pixel sature. Nous ne pourrions donc pas mesurer de lambertien sans insérer de filtre atténuateur sur le trajet du faisceau.

Si maintenant, nous insérons une densité dans le système d'éclairage, nous en tiendrons compte dans nos calculs en considérant que le flux émis par la source est $T_d P_s$ où T_d est la transmission de la densité.

Considérons le cas où nous insérons une densité 2, on a alors $T_d = 10^{-2}$. Le nombre moyen de photo-électrons attendus sur un pixel du capteur est donné Tableau 1 pour le temps de pose minimal de la caméra $\tau = 50$ ms. Ces valeurs sont données pour deux angles d'incidence qui sont les angles limites accessibles par notre montage. En effet, compte tenu de l'encombrement des système d'éclairage et de reprise, on ne peut aller en deçà de 20° d'incidence, et d'après ce que nous avons vu Partie B :Chapitre II :I.2.a, passé 60° , le spot produit par le faisceau incident est plus large que l'échantillon. Nous avons également donné sur le même tableau le rapport signal à bruit correspondant. Ces résultats nous montrent qu'une densité 2 nous permettrait de mesurer un échantillon lambertien sans saturer le capteur, tout en gardant un bon rapport signal à bruit.

Tableau 1 : Nombre moyen de photo-électrons et rapport signal à bruit prévu pour un pixel du capteur à $\tau = 50$ ms avec une densité 2

i ($^\circ$)	\bar{m}	Rapport signal à bruit
20	27018	164
60	14376	120

b. Échantillon faiblement diffusant

Nous allons maintenant chercher à déterminer la limite basse de détectivité de notre système. Pour cela, nous allons déterminer l'albédo le plus faible qui soit mesurable par notre système, pour un temps de pose permettant de faire des mesures dans un temps acceptable.

Tout d'abord, nous considérerons un échantillon comme mesurable si le rapport signal à bruit correspondant aux conditions expérimentales que nous définissons est au moins égal à 1.

Ensuite, ce que nous appelons un temps de pose acceptable est un temps de pose qui nous permettra de faire une acquisition sur l'intégralité du domaine angulaire dans un temps qui reste raisonnable, c'est à dire au maximum 20 minutes. Si on considère une mesure faite de 20° à 90° avec une résolution angulaire de 1° , un temps d'acquisition de 15 s nous permettra de faire en 18 min l'intégralité de la mesure sur un cercle de 11,3 mm de diamètre avec une résolution de spatiale de $52 \mu\text{m}$ sur l'échantillon. Nous prendrons donc $\tau = 15$ s pour notre simulation.

Pour un angle d'incidence de 20° , un temps de pose de 15 s, l'albédo limite pour lequel le rapport signal à bruit vaut 1 est $\rho = 5,93 \cdot 10^{-9}$, ce qui en terme de *BRDF* correspond à un niveau de diffusion de $1,89 \cdot 10^{-9}$.

II. Premiers résultats expérimentaux

Une fois le montage réalisé, nous avons effectué un certain nombre de mesures sur des échantillons représentatifs de notre application, à savoir un diffuseur parfait de type lambertien, un verre noir, un échantillon absorbeur à 845 nm et un wafer en silicium de faible rugosité.

1. Diffuseur lambertien

Un diffuseur lambertien est un diffuseur parfait dont la loi de diffusion est connue et qui, pour cette raison, est utilisé pour calibrer tout dispositif de scattérométrie : c'est l'une des raisons pour laquelle il nous a servi de premier échantillon d'évaluation.

a. Acquisitions

Avant toute chose, il est nécessaire de savoir que les images que nous présentons ici ainsi que toutes celles qui seront présentées par la suite sont affranchies du courant d'obscurité. En fait, sur chacune de ces images le niveau $S_{Affiché}$ affiché par un pixel est le niveau mesuré lors de l'acquisition ($S_{Mesuré}$) auquel on a soustrait le niveau S_{Noir} obtenu pour une acquisition faite dans le noir total (obturateur de la caméra fermé) avec le même temps d'intégration. Nous avons donc :

$$S_{Affiché} = S_{Mesuré} - S_{Noir} \quad (223)$$

Nous présentons Figure 135 les images obtenues lors de la mesure d'un échantillon lambertien. Nous avons ici utilisé une fibre de 600 μm de diamètre, le diamètre du spot obtenu sur l'échantillon à la plus faible incidence ($i = 20^\circ$) est donc 11,4 mm. Les acquisitions sont faites avec un temps d'intégration de 80 ms, en utilisant une densité 2 et nous voyons ici les images obtenues pour chacun des angles d'incidence.

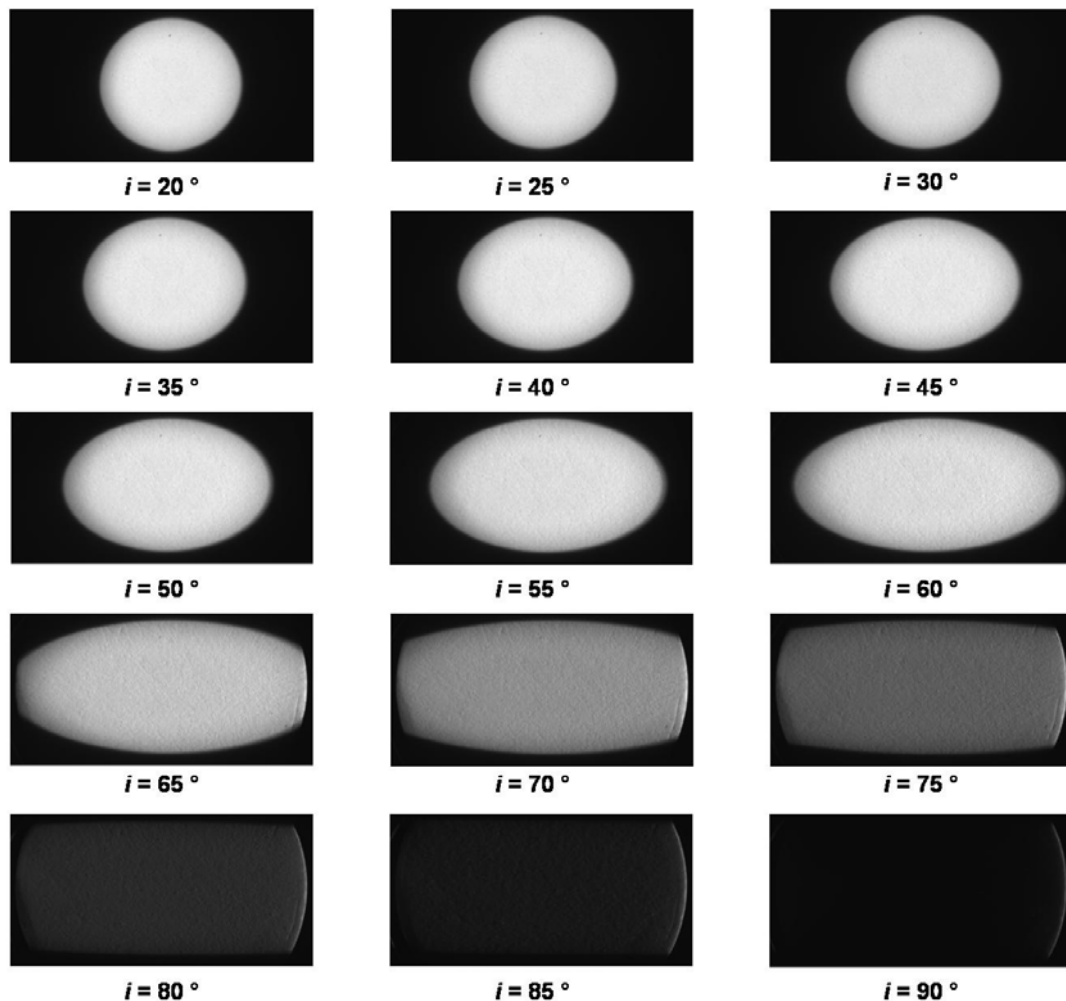


Figure 135 : Photos acquises lors de la mesure d'un échantillon lambertien

Dans un premier temps, on note que l'intensité lumineuse diminue lorsque l'angle d'incidence augmente, ce qui correspond à ce que l'on s'attend à avoir sur un échantillon de type lambertien.

Ensuite, on peut voir que le spot sur l'échantillon est, aux petits angles, un cercle dont le centre est aussi le centre de l'échantillon. Le système d'éclairage effectue une rotation centrée sur la face éclairée du substrat. De ce fait, la zone éclairée sur l'échantillon est l'intersection du faisceau de lumière avec le plan de la face avant du lambertien. Pour cette raison, pour de faibles angles d'incidence, la zone éclairée est un cercle, puis, lorsque i augmente, cette surface s'étire sous la forme d'une ellipse tout en restant centrée sur le centre de l'échantillon. Cette ellipse va, passé 60° , excéder la surface effective de l'échantillon.

Par conséquent, nous ne considérerons pour nos mesures que la partie de l'échantillon qui est illuminée pour l'ensemble des angles d'incidence. Nous ne pourrions donc considérer que la surface de l'échantillon éclairée à $i = 20^\circ$.

Nous allons maintenant regarder comment nous pouvons déduire de ces images les indicatrices de diffusion correspondantes.

L'image obtenue lorsque la direction d'éclairage est proche de l'axe de reprise ($i = 20^\circ$) est donnée Figure 136. A l'intérieur de la zone éclairée, nous avons sélectionné au hasard deux pixels particuliers et nous allons tracer, pour chacun de ces deux pixels, l'évolution du signal détecté en fonction de l'angle d'incidence. Pour que ces niveaux soient comparables à des niveaux mesurés dans les mêmes conditions expérimentales mais avec un autre temps d'intégration, nous n'allons pas utiliser directement les niveaux donnés en nombre de coups, mais les ramener à un nombre de coups par seconde.

Nous allons donc tracer les niveaux mesurés par la caméra divisés par le temps d'intégration du signal. Les niveaux en question sont tracés Figure 137 en fonction de l'angle d'incidence pour chacun des pixels sélectionnés.

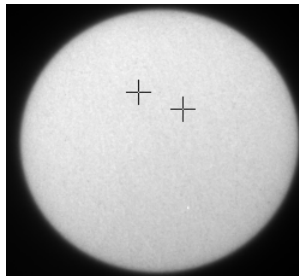


Figure 136 : Image obtenue à $i = 20^\circ$ et pixels dont les indicatrices sont tracées par la suite

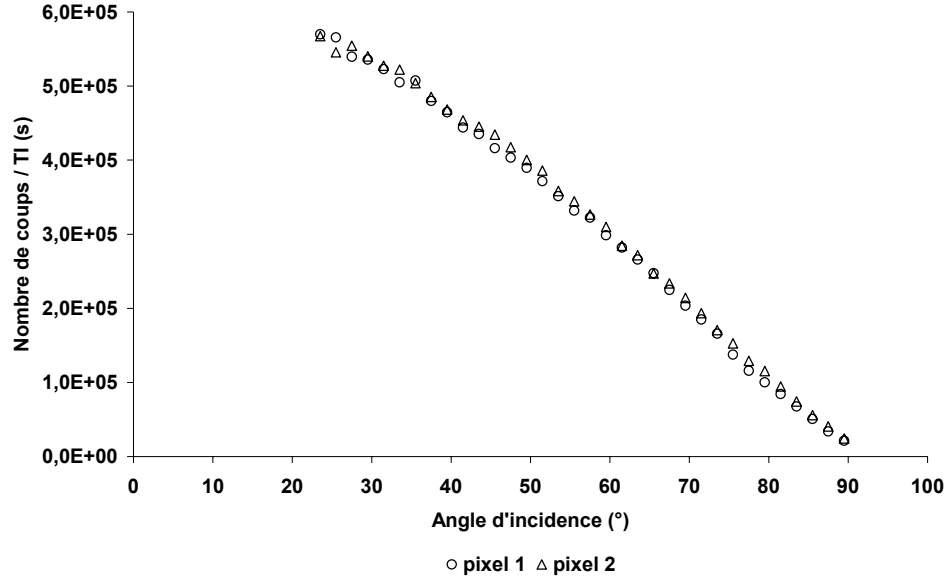


Figure 137 : Niveaux des pixels / temps d'intégration des deux pixels sélectionnés

Ces mesures ne sont pas utilisables telles quelles. En effet, elles nous donnent une indication sur les variations des signaux mesurés ainsi que sur les niveaux relatifs des différentes mesures, mais aucune information sur le niveau absolu de l'intensité diffusée. Il est nécessaire pour cela d'étalonner notre système, c'est à dire déterminer le facteur de conversion qui permet de passer du signal mesuré à l'intensité diffusée. Ce facteur est appelé constante d'étalonnage et noté C_e .

b. Étalonnage

Pour calculer cette constante, on mesure un échantillon dont on sait modéliser l'indicatrice de diffusion et on la retrouve en faisant le lien entre la mesure et le modèle théorique. On utilise pour cela un échantillon lambertien, nous pourrions donc nous servir de la mesure présentée Figure 135.

Le signal mesuré $S_M [p, q]$ par chaque pixel indexé $[p, q]$ du capteur CCD de la caméra est proportionnelle à la puissance détectée de sorte que, pour un échantillon lambertien, le signal mesuré est de la forme $K \cos i$, où K désigne une constante fonction des caractéristiques optiques du montage et i l'angle d'incidence.

Sachant cela, on mesure la lumière diffusée par un lambertien dans le cas où l'angle de reprise est nul, et l'angle d'incidence est variable. La première étape consiste à rechercher la valeur numérique de la constante K qui fasse que le modèle mathématique et le signal réel soient les plus proches possibles. On utilise pour cela une procédure d'ajustement par méthode des moindres carrés (minimisation de l'écart quadratique moyen entre le signal mesuré en unités arbitraires et un signal théorique de la forme $K \cos i$ dans notre cas).

On sait de plus que le signal théorique S_T , obtenu avec un lambertien pour le pixel $[p, q]$ est de la forme :

$$S_T(p, q, i) = \frac{1-A}{\pi} C_e \cos i = \frac{\rho}{\pi} C_e \cos i \quad (224)$$

où A désigne l'absorption du lambertien et où C_e la constante d'étalonnage de l'appareil.

On peut donc écrire :

$$K(p, q) = \frac{1}{\pi} C_e(p, q) \rho \quad (225)$$

L'albédo ρ du diffuseur lambertien est connu, et K a été déterminée par la méthode des moindres carrés définie plus haut. Par conséquent, on peut en déduire C_e pour chaque pixel, à l'aide de la relation :

$$C_e(p, q) = K(p, q) \cdot \frac{\pi}{\rho} \quad (226)$$

On peut alors calculer l'intensité I diffusée par le lambertien

$$I(p, q, i) = \frac{S_M(p, q, i)}{C_e(p, q)} \quad (227)$$

La constante d'étalonnage C_e ainsi utilisée pour le lambertien est alors valable pour tous les échantillons mesurés dans les mêmes conditions expérimentales.

Donc, une fois la constante d'étalonnage calculée, on détermine, pour chaque échantillon, l'indicatrice de diffusion en appliquant la relation générale :

$$I(p, q, i) = \frac{S_M(p, q, i)}{C_e(p, q)} \quad (228)$$

Maintenant que nous avons vu comment, déduire des images obtenues lors de la mesure une intensité diffusée absolue, nous allons pouvoir étalonner toutes les mesures effectuées avec l'analyseur optique de surface qui pourront ainsi être comparées à des mesures effectuées dans d'autres conditions expérimentales.

Nous allons donc, dans un premier temps, calculer la constante d'étalonnage déduite de la mesure de l'échantillon lambertien présentée Figure 135.

En fait, nous n'allons pas calculer une constante unique, mais notre objectif étant d'obtenir une *BRDF* pour chaque élément de surface imagée par chaque pixel du capteur *CCD* de la caméra, nous allons plutôt calculer une constante d'étalonnage par pixel. La méthode est exactement la même que celle décrite plus haut, nous l'appliquerons juste séparément à chaque pixel du capteur.

En outre, ce calcul n'a de sens que s'il est effectué sur les pixels sur lesquels l'intégralité de la mesure a pu être effectuée. Nous ne l'effectuerons donc que sur la zone définie Figure 138.

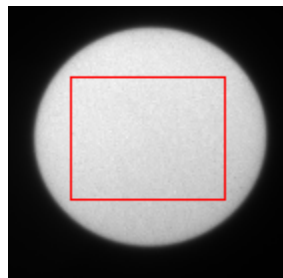


Figure 138 : Zone où seront calculées les constantes d'étalonnage

Les constantes alors obtenues sont données Figure 139 pour chaque pixel de la zone sélectionnée. On constate, que contrairement à ce à quoi l'on s'attendait, la valeur de cette

constante n'est pas uniforme sur toute la zone considérée. Ceci nous indique un problème qui n'était pas visible au premier abord, lors de la mesure du lambertien, c'est à dire, que l'éclairage sur l'échantillon n'est pas parfaitement uniforme. Ce sera donc un des points qu'il sera nécessaire d'optimiser par la suite. Mais, en attendant, cela ne gênera en rien les mesures que nous pourrons effectuer, puisque nous calculons une constante d'étalonnage par pixel imagé. De ce fait, la non uniformité de l'éclairage est compensée par la constante d'étalonnage.

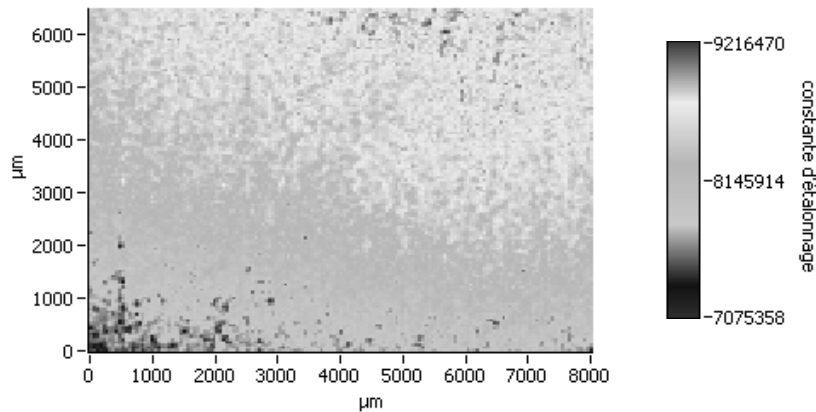


Figure 139 : Constantes d'étalonnage calculées sur la zone sélectionnée Figure 138

Connaissant désormais la constante d'étalonnage associée à chaque pixel, nous pouvons déduire des courbes données Figure 137 les indicatrices de diffusion des pixels choisis Figure 136. Les courbes obtenues sont données Figure 140.

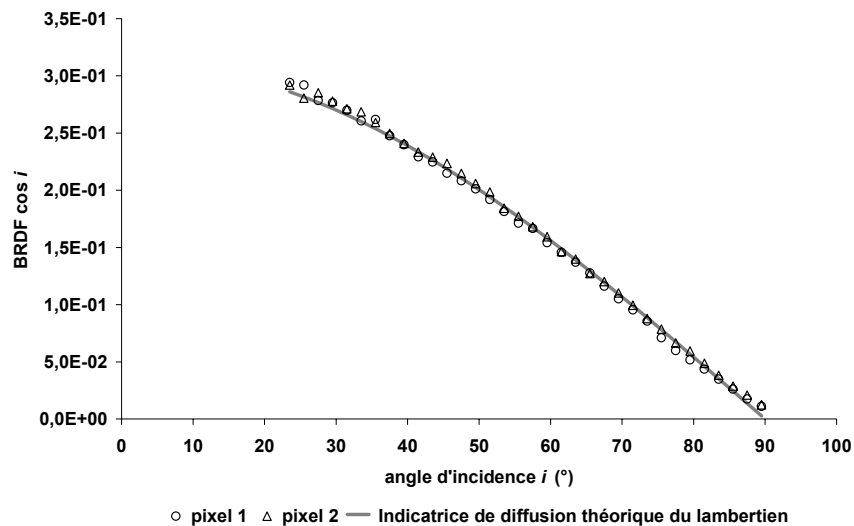


Figure 140 : Indicatrices de diffusion du lambertien : courbe théorique et indicatrices mesurées pour deux pixels particuliers

L'indicatrice théorique associée à ce lambertien est également représentée sur ce même graphique. On constate que les courbes théoriques et expérimentales sont parfaitement superposées. Nous pouvons donc en déduire que nous mesurons bien l'indicatrice de diffusion du lambertien, pour chaque pixel de la zone éclairée de l'image.

Nous pouvons donc désormais utiliser notre analyseur optique de surface complété par la procédure d'étalonnage que nous venons de décrire pour caractériser les indicatrices de diffusion de différents échantillons.

Malgré tout, il nous reste à faire une dernière validation. En effet, la série de mesures que nous venons d'effectuer, a été faite à un unique temps d'intégration. La question est donc : que se passe-t-il lorsqu'on change le temps de pose de la caméra ?

2. Mesures comparatives à différents temps d'intégration

Il peut être intéressant dans certains cas de faire des acquisitions d'un même échantillon, mais avec différents temps de pose. En effet, si un certain temps d'intégration nous permet de voir nettement une impureté présente sur l'échantillon, il se peut qu'un temps de pose plus long soit nécessaire pour caractériser une zone sans impureté. Mais est-on sûr que les résultats ainsi obtenus sont comparables ?

Pour le vérifier, nous avons effectué sur un même échantillon deux séries de mesures. Le temps de pose τ de la caméra était, pour la première série, de 200 ms, et pour la deuxième, de 2 s. Pour l'ensemble des mesures, le diamètre du spot est cette fois de 3,8 mm et aucune densité n'a été utilisée.

L'échantillon témoin est un verre noir de suprasil, les images obtenues sont données Figure 141 pour un temps d'intégration de 200 ms et Figure 142 pour un temps d'intégration de 2 s.

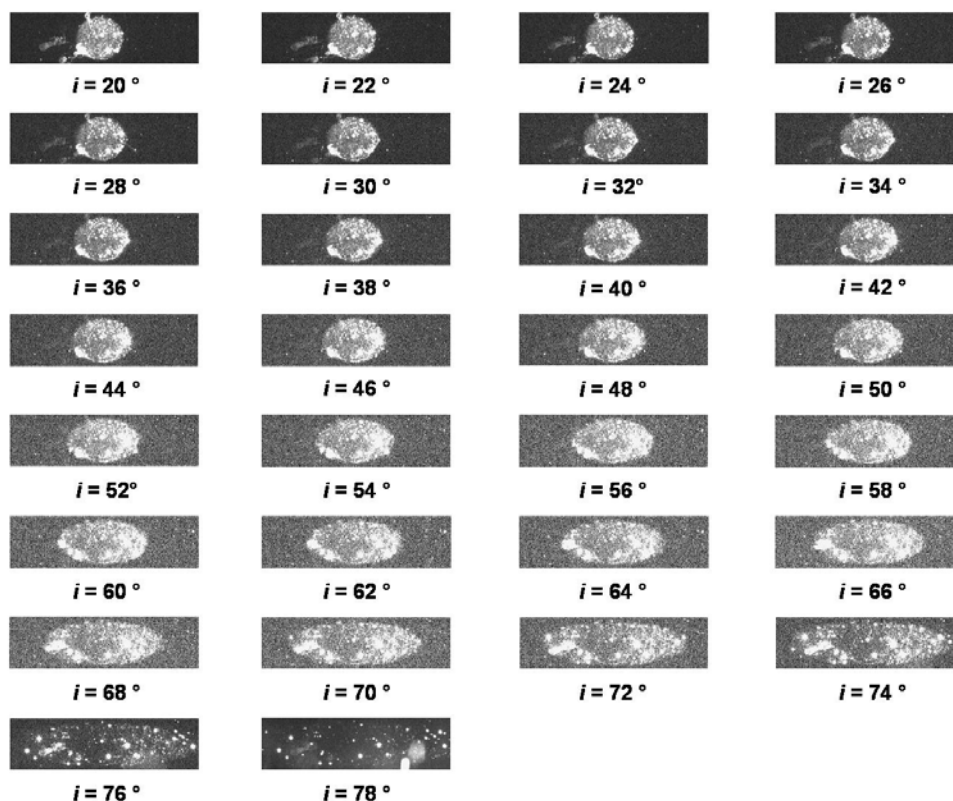


Figure 141 : Images obtenues lors de la mesure d'un verre noir (temps d'intégration : 200 ms)

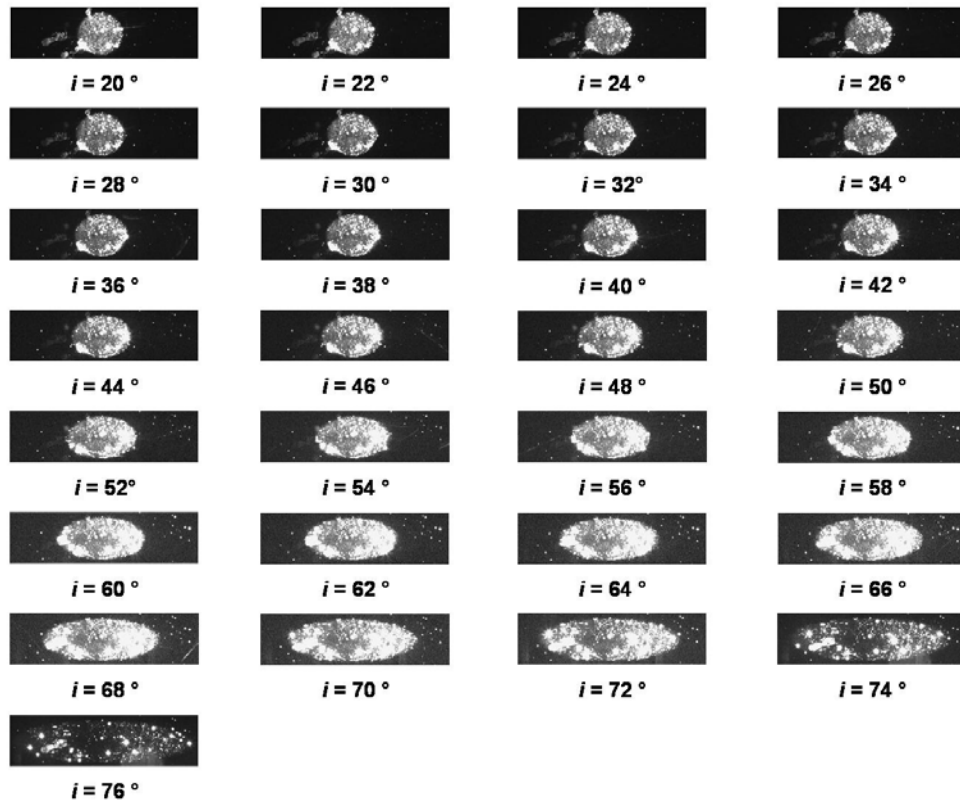


Figure 142 : Images obtenues lors de la mesure d'un verre noir (temps d'intégration : 2s)

Figure 143, nous pouvons voir un zoom effectué sur une zone de 3,5 mm de coté des images obtenues à $i = 20^\circ$ avec chacun des deux temps de pose. On peut voir que certaines impuretés qui ne sont pas visibles à $\tau = 200$ ms, le sont à $\tau = 2$ s (plus particulièrement sur la partie droite de l'image) et d'autres qu'on devine à $\tau = 200$ ms, sont nettement plus visibles à $\tau = 2$ s (pixel 2), d'où l'intérêt d'utiliser un temps d'intégration plus long. Par contre, dans le cas où les impuretés étaient déjà visibles à $\tau = 200$ ms (pixel 3), le pixel concerné sature à $\tau = 2$ s et déborde sur les pixels avoisinants, sur cette zone-ci, il paraît donc plus approprié d'utiliser un temps de pose plus court.

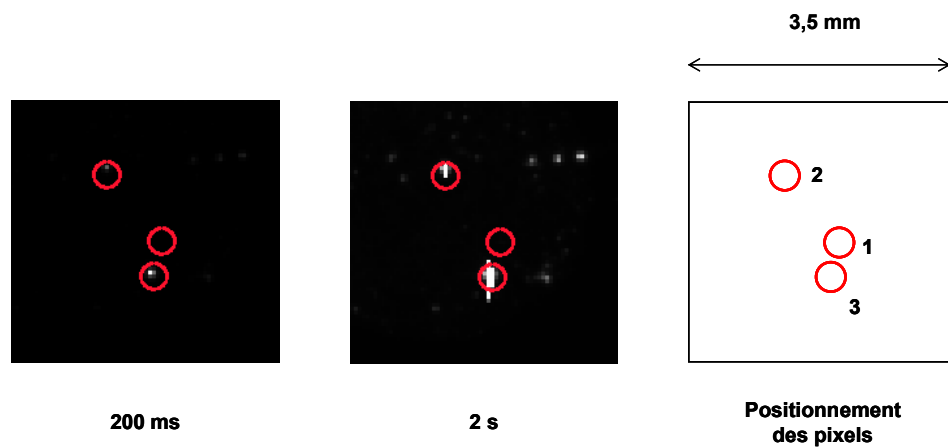
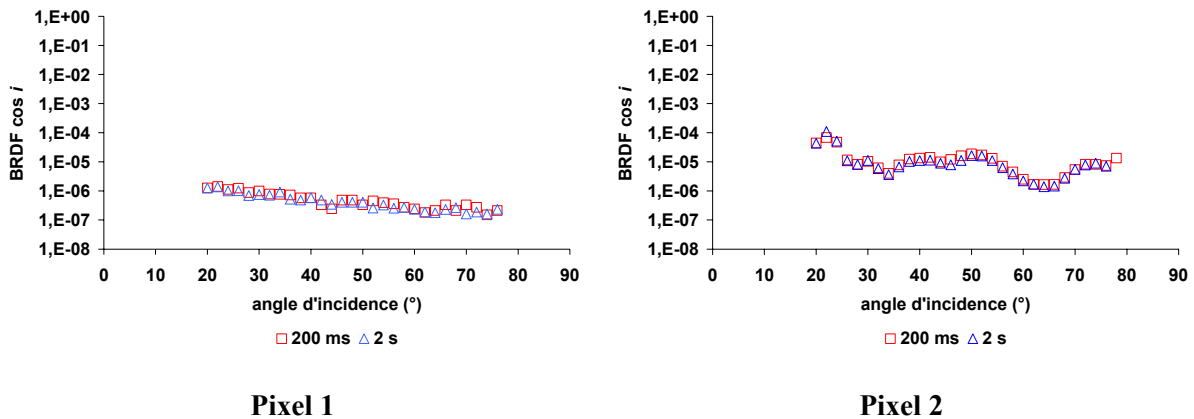


Figure 143 : Images à $i = 20^\circ$ pour deux temps d'intégration (200 ms et 2 s) et localisation des pixels mesurés

Regardons maintenant les indicatrices de diffusion obtenues pour chacun des trois éléments de surface sélectionnés Figure 143. Tout d'abord, considérons le pixel (1) pour lequel on ne voit aucun défaut avec chacun des deux temps de pose. On constate Figure 144 que les indicatrices obtenues avec les deux temps d'intégration sont confondues. De même, si on considère le pixel (2), les deux indicatrices données Figure 145 sont aussi confondues. On peut donc en déduire que les mesures faites avec des temps d'intégration différents sont comparables.



Figures 144 et 145 :Indicatrices mesurées avec les deux temps d'intégration

Si on regarde maintenant ce qui se passe pour le pixel (3), on peut voir que, à $\tau = 2$ s, nous avons bien atteint le niveau de saturation du pixel, comme l'image Figure 136 nous le laissait penser. Par contre, à $\tau = 200$ ms, on mesure bien une indicatrice, d'où l'intérêt de caractériser cette zone avec un temps de pose plus faible.

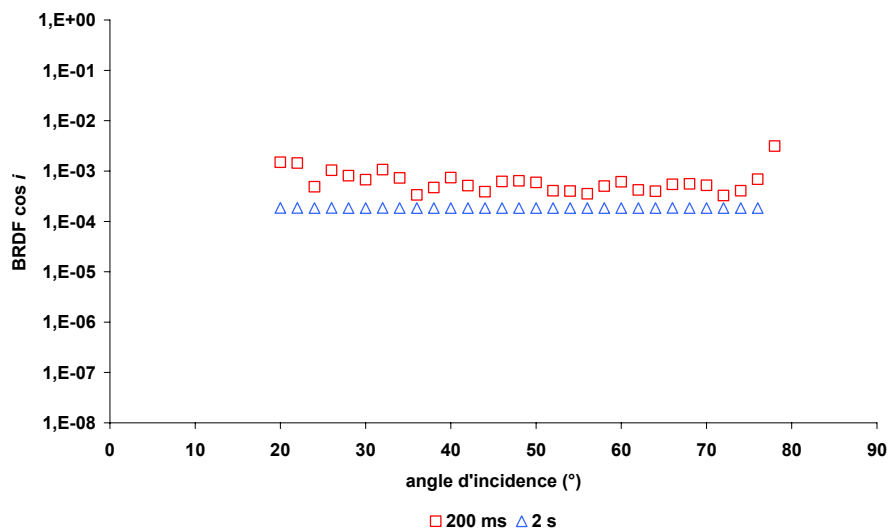


Figure 146 : Indicatrices mesurées sur le pixel 3 avec les deux temps d'intégration

Nous venons donc de confirmer que des mesures effectuées avec différents temps de pose sont parfaitement équivalentes. Il paraît donc possible de caractériser les zones de faible rugosité en utilisant un temps d'exposition relativement long, et à l'inverse, les zones présentant des défauts avec un temps de pose plus court. Ceci étant fait, nous pouvons désormais nous intéresser à la caractérisation de différents échantillons.

3. Échantillons absorbeurs

Le premier échantillon que nous allons tester est un échantillon multicouche traité pour être absorbeur à la longueur d'onde de 850 nm. Les mesures ont été effectuées avec un temps de pose de 10 s, sans densité, et avec une fibre de 600 μm de diamètre, ce qui fait que la taille du spot sur l'échantillon est de 11,4 mm de diamètre. Les images obtenues lors de l'acquisition sont données Figure 147. On constate ici que l'inhomogénéité de l'éclairage est beaucoup plus visible que dans le cas de l'échantillon lambertien. On peut, en outre, constater qu'un très grand nombre d'impuretés sont visibles au premier coup d'œil, du simple fait de la haute détectivité de la caméra.

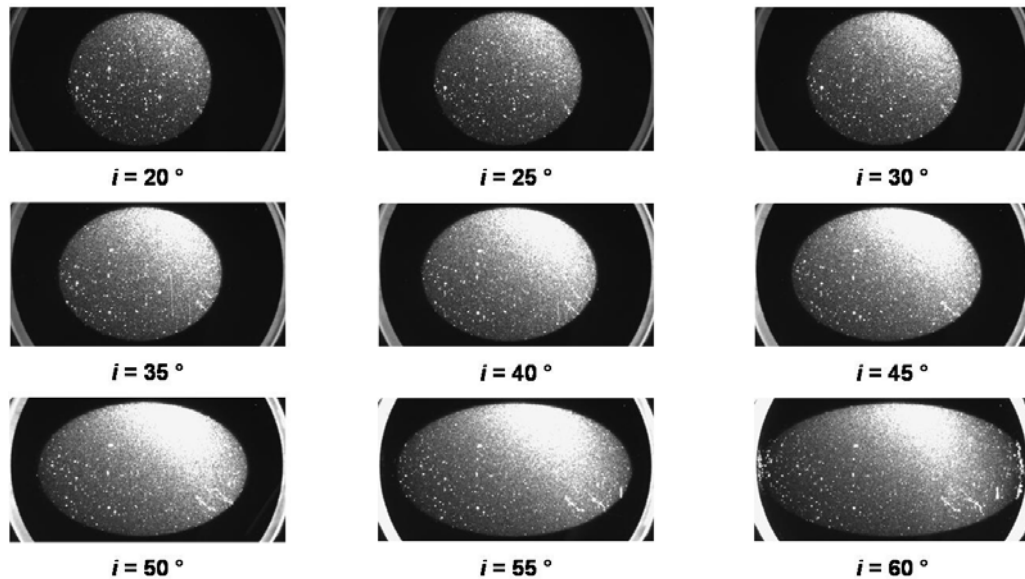


Figure 147: Photos acquises lors de la mesure d'un échantillon absorbeur

Nous avons tracé Figure 149 les indicatrices de diffusion des deux surfaces élémentaires sélectionnées Figure 148 (les pixels concernés étant en fait le centre des cercles utilisés pour les visualiser). On peut voir que, pour le pixel sélectionné dans une zone sans impureté, l'indicatrice de diffusion obtenue est quasiment constante sur la totalité du domaine angulaire balayé. Par contre, pour le pixel qui est à l'évidence associé à une impureté, l'indicatrice obtenue présente une structure angulaire oscillante, ce qui est caractéristique d'un diagramme de diffraction par un obstacle de faibles dimensions transverses.

Nous avons également tracé, sur cette même Figure 149, l'indicatrice de diffusion obtenue en faisant la moyenne de toutes les indicatrices enregistrées avec notre montage sur la zone carrée de 2 millimètres de côté définie Figure 148 : ce résultat est en effet équivalent à ce que l'on aurait pu obtenir dans le cas d'une mesure de diffusion « classique ».

On constate que le niveau de cette dernière indicatrice est supérieur à celle mesurée sur un pixel sans impureté. Ceci signifie que, dans le cas d'une mesure de diffusion « classique », la présence d'impuretés localisées dans la zone éclairée de l'échantillon va affecter la mesure et augmenter le niveau apparent de diffusion.

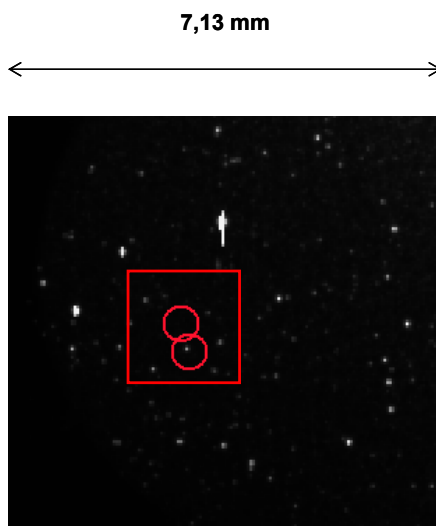


Figure 148 : Image obtenue à $i = 20^\circ$ sur un échantillon absorbeur

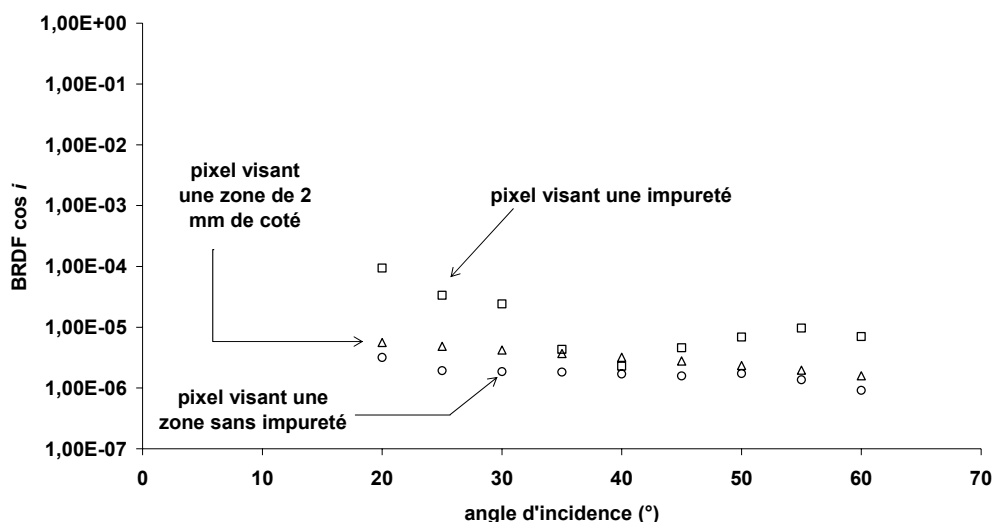


Figure 149 : Indicatrices de diffusion mesurées sur les trois pixels sélectionnés Figure 148

Sur cet échantillon, le niveau de rugosité est assez élevé par rapport à la taille des défauts pour que la mesure effectuée dans une configuration classique ne soit que très légèrement faussée. Pour être plus conscient de l'erreur que cela peut occasionner, et pour nous rendre compte de la détectivité de l'analyseur optique de surface, nous avons décidé de tester notre système sur un échantillon très faiblement rugueux. Nous avons donc choisi de mesurer un wafer de silicium qui est un échantillon habituellement très difficile à caractériser en diffusion « classique », parce que trop peu diffusant.

4. Wafer en silicium

La mesure du wafer a été effectuée avec un temps de pose de 15 s et sans densité. Le diamètre du spot sur l'échantillon est 11,4 mm. Les images obtenues sont données Figure 150.

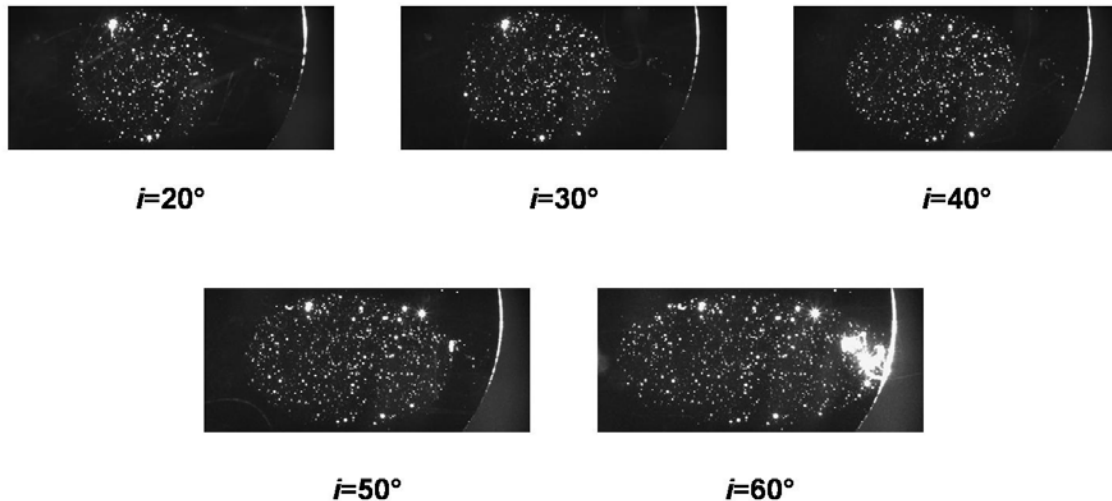


Figure 150 : Photos acquises lors de la mesure d'un wafer de silicium

Dans un premier temps, on peut noter que bien que le temps de pose soit plus long que pour l'absorbeur testé auparavant (Figure 148), le fond de l'échantillon paraît plus sombre. Ce qui laisse présager d'un niveau de diffusion plus faible que celui de l'absorbeur.

Regardons maintenant la zone mesurée de plus près. Pour cela, nous effectuons un zoom sur la partie centrale du spot (Figure 151).

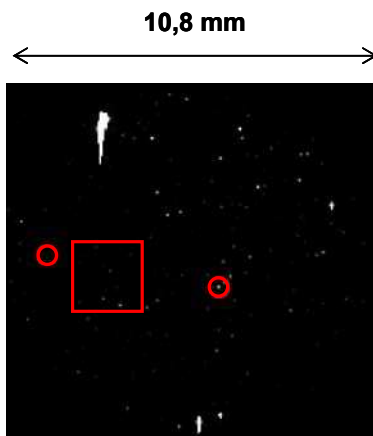


Figure 151 : Image du wafer en silicium à $i = 20^\circ$ et pixels sélectionnés

Deux pixels sont sélectionnés sur la zone étudiée, l'un visant une zone sans impureté et l'autre pointant un défaut. Ces pixels sont localisés Figure 151 par les centres des cercles. Les indicatrices de diffusion de chacun des deux pixels sont tracées Figure 152. On constate que, comme pour les échantillons précédents, l'indicatrice du pixel visant une impureté présente des oscillations angulaires. En outre, l'indicatrice du pixel visant la zone sans impureté est plate.

Pour comparer ces indicatrices à celles qui auraient été obtenues avec une mesure classique, nous avons également tracé Figure 152 l'indicatrice mesurée sur une zone de 2 mm de côté, localisée par le carré dessiné Figure 151.

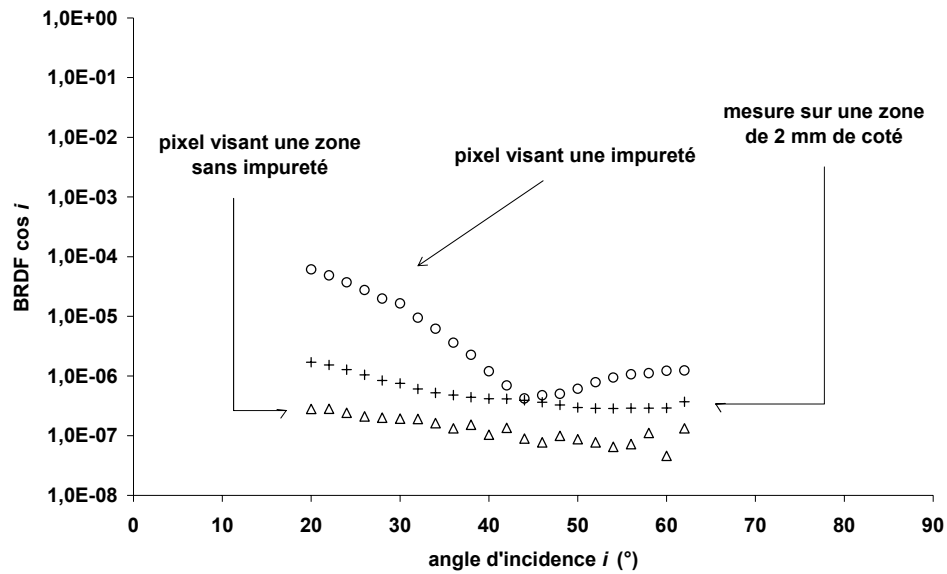


Figure 152 : Indicatrices de diffusion des pixels sélectionnés Figure 151

On peut noter cette fois que le niveau de diffusion mesuré sur une zone correspondant à celle traitée par une mesure de diffusion dite « classique » est nettement plus haut que celui obtenu en visant une zone sans impureté qui, lui, nous donne le niveau de diffusion généré par la rugosité intrinsèque de la surface. Ceci nous permet de voir l'erreur occasionnée par la présence de défauts localisés lors d'une mesure de diffusion classique dans le cas des échantillons très faiblement rugueux.

Intéressons nous plus spécifiquement à l'indiatrice mesurée sur le pixel visant une impureté. Elle présente des oscillations. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente (Partie B : Chapitre I : III), la période de ces oscillations et le niveau de l'indiatrice sont caractéristiques respectivement de la dimension transverse et de la hauteur du défaut visé. De ce fait, dans une première approche, on constate, Figure 153, que l'unique « zéro » de l'indiatrice mesurée est à $i = 44^\circ$, ce qui est très proche de l'indiatrice théorique obtenue pour une impureté de type calotte sphérique de rayon $r = 824$ nm et de hauteur $h = 100$ nm (Figure 154). De plus, les niveaux des deux indiatrices sont comparables. Ceci nous laisse donc penser que les dimensions de l'impureté présente sur le pixel mesuré sont de cet ordre de grandeur.

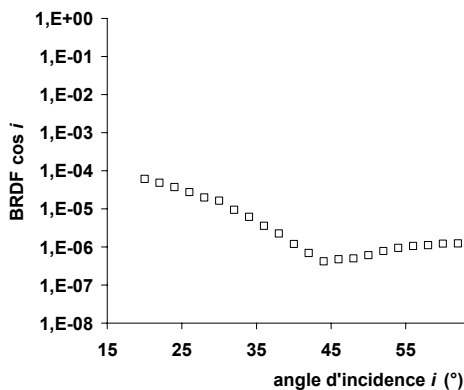


Figure 153 : Indiatrice mesurée pour une impureté

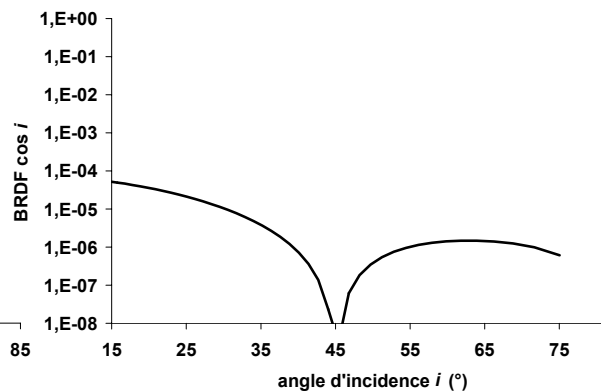


Figure 154 : Indiatrice théorique d'une impureté de dimensions $r = 848$ nm et $h = 100$ nm

Chapitre III :
Perspectives

Nous venons de mettre au point et de valider par les premiers résultats expérimentaux un analyseur optique de surface. Ce montage présente d'ores et déjà des résultats très prometteurs. En effet, nous venons de voir qu'il permet de mesurer des échantillons faiblement diffusants tout en dissociant les contributions respectives de la rugosité intrinsèque de la surface étudiée et celle d'éventuels défauts ou impuretés. Toutefois, ce système n'est qu'un prototype et peut encore être optimisé. Nous allons maintenant présenter les différentes modifications prévues pour une optimisation du montage déjà existant ainsi que certaines des perspectives qu'il offre pour de prochaines évolutions.

I. Évolutions matérielles

Un premier travail consistera à optimiser le montage existant afin d'augmenter ses performances. On procédera pour cela en deux étapes indépendantes. La première consistant à augmenter la dynamique de mesure du montage et la deuxième à étendre le domaine angulaire accessible lors d'une mesure.

1. Augmentation de la dynamique de mesure

Pour augmenter la dynamique de mesure du montage, nous envisageons dans un premier temps de limiter toute présence de lumière parasite qui pourrait être créée par le montage en lui-même ou par son environnement.

Cela peut se faire tout d'abord en baffleant l'intégralité des optiques du montage, puis en limitant au maximum la lumière parasite provenant d'une réflexion par le support de l'échantillon. En effet, si on regarde, Figure 155, l'intégralité de l'image acquise sur l'échantillon faiblement diffusant testé Partie B : Chapitre II : II.3, on constate que l'élément le plus diffusant est le porte échantillon. C'est donc visiblement un élément du montage limitant fortement l'augmentation du temps de pose lors d'une acquisition. Pour remédier à cela, il est prévu de remplacer le porte échantillon visible sur la Figure 155 par un système permettant de fixer l'échantillon par l'arrière sans qu'aucune fixation ne soit visible par l'avant. Une première solution possible consiste à mettre en place un tube rigide à l'arrière de l'échantillon sur lequel sera connecté un système d'aspiration qui maintiendra l'échantillon plaqué contre le tube. Avec un tel appareillage, l'échantillon apparaîtra en « lévitation » du point de vue de la caméra. Ceci permettra de réduire fortement la lumière parasite et de ce fait, d'augmenter les temps de pose accessibles. Cette solution est particulièrement bien adaptée à la caractérisation de substrats opaques et faiblement rugueux.

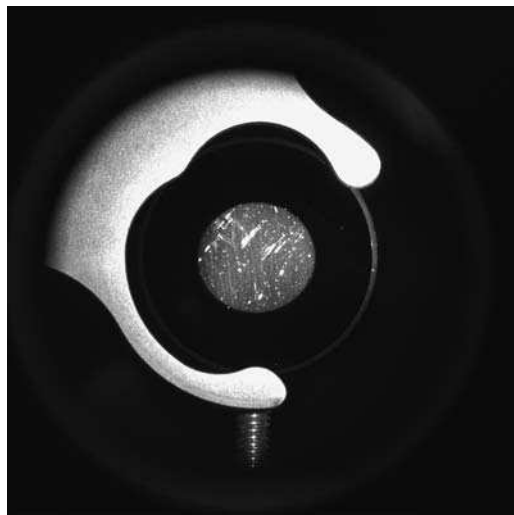


Figure 155 : Échantillon absorbeur, $i = 20^\circ$, image non recadrée

Une deuxième solution pour diminuer la contribution du support consisterait à disposer l'échantillon dans un anneau noir mat (par exemple en carbone) maintenu rigidement à l'aide de deux fils en tension respectivement fixés en partie haute et en partie basse de cet anneau. Une telle solution permettrait de minimiser la section efficace de diffusion du support en toute configuration, et notamment lors de la caractérisation de substrats transparents. Dans un deuxième temps, il sera intéressant d'augmenter la puissance d'éclairage. Nous reparlerons de ce point spécifique au paragraphe III.2 de cette section.

2. Augmentation du domaine angulaire de mesure

L'analyseur optique de surface tel que nous l'avons présenté permet de faire des mesures angulaires pour un angle d'incidence i allant de 20° à 60° . Il paraît donc nécessaire d'étendre ce domaine de mesure autant que faire se peut. Deux transformations sont envisagées dans ce but, l'une ayant pour objet d'accéder aux petits angles d'incidence (proches de l'incidence nulle) et l'autre aux grands angles.

a. Mesures proches du spéculaire

L'accès aux petits angles d'incidence ($i < 20^\circ$) est limité par l'encombrement du système d'émission et de l'objectif télécentrique. Il est prévu, pour y remédier, d'utiliser un nouvel objectif télécentrique de frontale 400 mm et de 55,9 mm de diamètre hors tout, ce qui permettra d'abaisser l'angle minimal de mesure à $i = 5^\circ$.

Le grandissement de cet objectif est en outre de 0,5 ce qui aura pour effet d'augmenter la résolution spatiale à la surface de l'échantillon et de diminuer la taille de la surface imagée à chaque acquisition. Ce changement de la valeur du grandissement permettrait donc de ne plus imager le porte-échantillon sur la partie sensible de la caméra CCD.

b. Mesures en incidence rasante

La mesure est actuellement limitée à $i = 60^\circ$. En effet, lorsque l'angle d'incidence augmente, le spot d'éclairage visible sur l'échantillon qui est circulaire à $i = 0^\circ$ s'étire en prenant la forme d'une ellipse. Or, lorsque cette ellipse atteint les bords de l'échantillon, il y a le plus souvent un phénomène de diffraction par le bord de l'échantillon, ce qui, comme on peut le voir Figure 156 peut faire saturer un grand nombre de pixels et provoque l'arrêt de la mesure.

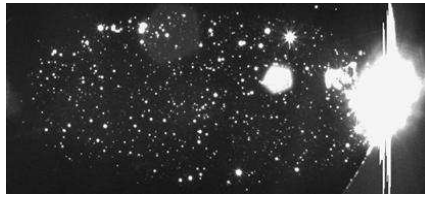


Figure 156 : Wafer en silicium $i = 62^\circ$

Nous proposons, pour remédier à cela, d'ajouter, en lieu et place du diaphragme déjà existant sur le montage (Figure 132), un diaphragme situé dans le plan d'une image intermédiaire de l'extrémité de la fibre optique et qui tournerait avec un angle exactement inverse à l'angle d'incidence dans le but de compenser par anamorphose l'étirement du spot d'éclairage sous forme d'une ellipse (Figure 157). Le spot resterait ainsi constamment circulaire pour toutes les valeurs de l'angle d'éclairage, ce qui nous permettra d'accéder aux grands angles proches de l'incidence rasante lors de la mesure.

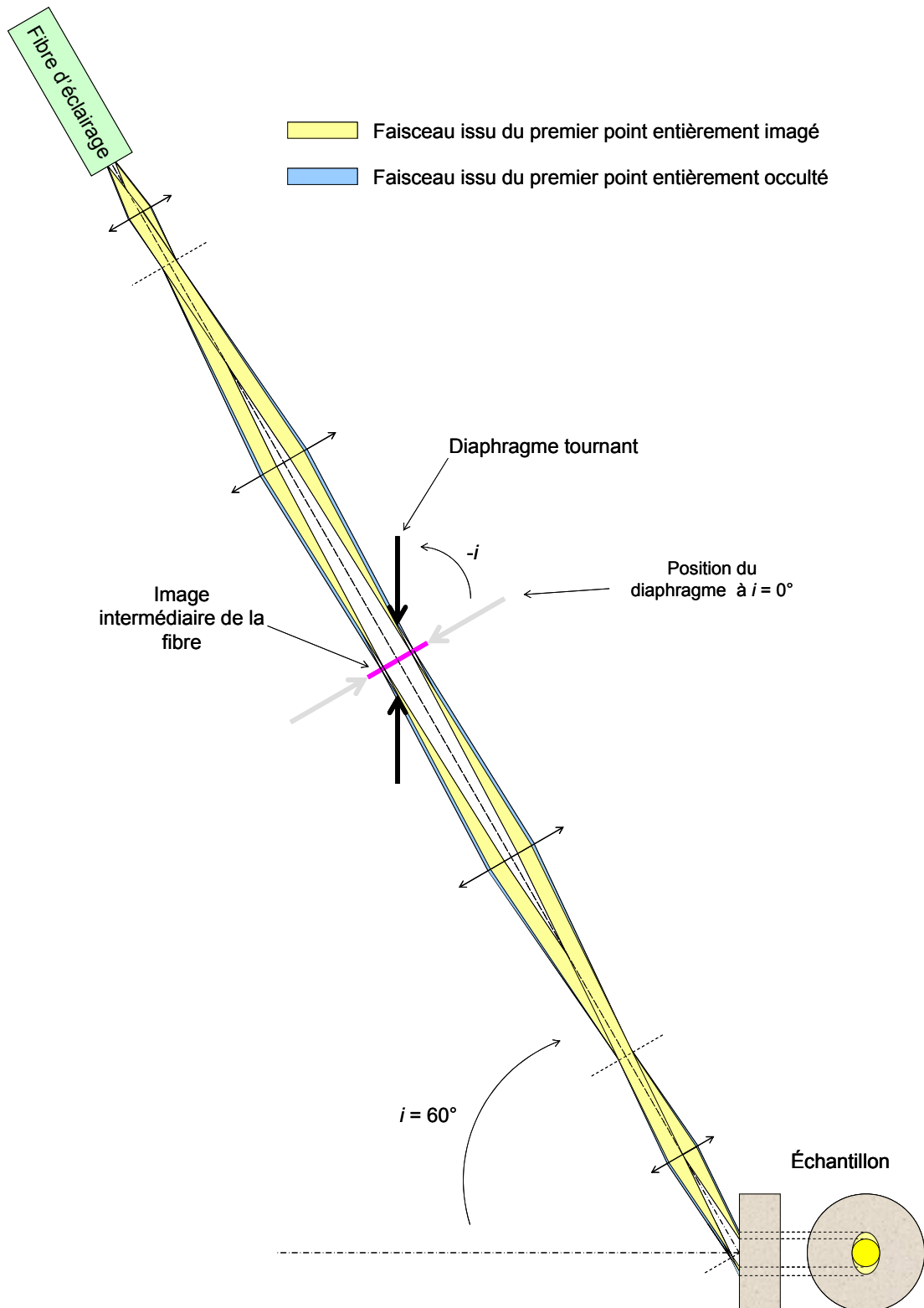


Figure 157 : Configuration proposée pour compenser l'étirement du spot sous forme d'une ellipse

II. Évolutions logicielles

En parallèle de ces améliorations, un certain nombre d'évolutions sont envisagées au niveau des logiciels de traitement des données. Leur but sera de permettre de tirer profit au

mieux de la quantité importante d'informations fournies par chaque mesure à l'aide un traitement des données adéquat et systématique. Deux axes d'études ont été dégagés.

1. Cartographie de rugosité

Il est envisagé dans un premier temps de déduire directement de chaque acquisition, en temps réel une cartographie de rugosité. Il serait ainsi possible pour chaque échantillon d'obtenir une cartographie donnant la rugosité *rms* de chaque surface élémentaire sur l'intégralité de la zone mesurée.

2. Étude statistique des défauts en présence

Dans un second temps, une étude plus approfondie sera menée, son objectif est de développer un logiciel qui permettra tout d'abord de déduire de la réponse angulaire d'un pixel visant une impureté, les dimensions et la forme du défaut considéré. Cela demandera un grand travail de classification des différents types de défauts et des diagrammes de diffraction correspondants. Une telle étude permettra d'obtenir pour chaque échantillon mesuré la répartition précise des différents types d'impuretés en présence ainsi que leur localisation. L'application première d'une telle étude sera d'optimiser les différentes techniques de nettoyage utilisées.

III. Évolutions conceptuelles

Tout en gardant le même principe de base, différentes évolutions sont envisagées.

1. Élargissement de la bande spectrale

Il est prévu d'adapter l'analyseur optique de surface à la caractérisation spectrale de composants. L'avantage d'une telle expansion serait de permettre de faire des études de composants avec différentes longueurs d'onde d'éclairage. Elle donnera ainsi accès à différentes dimensions de défauts, le diagramme de diffraction caractéristique des défauts mesurés étant directement lié à la longueur d'onde du faisceau incident.

Pour ce faire, l'acquisition d'une source à super continuum de type laser blanc est envisagée. Une telle source permettrait d'éclairer avec une puissance de plus de 1 W répartie sur un large spectre d'émission (typiquement 450 nm à 1750 nm). Son plus grand avantage est de permettre le choix de la largeur de la bande spectrale d'émission, la puissance émise restant la même. Autrement dit, on pourra choisir avec une seule source d'éclairer avec une forte puissance sur un spectre étroit ou sur un spectre plus large avec une puissance moindre, l'éclairage étant dans tous les cas incohérent.

2. Ellipsométrie de Mueller

A cette étude spectrale viendra s'ajouter une extension permettant une étude polarimétrique des échantillons. Il est en effet envisagé de coupler l'analyseur optique de surface avec un ellipsomètre de Mueller. Ceci sera fait en intégrant, d'une part, dans la voie d'éclairage un système permettant de fixer l'état de polarisation du faisceau incident et d'autre part, dans la voie de détection un analyseur qui nous donnera l'état de polarisation de la lumière mesurée par chaque pixel de la caméra. Il sera alors possible de calculer la matrice de Mueller de chaque élément de surface de l'échantillon mesuré. Ceci donnant cette fois accès à des informations sur la nature même des échantillons caractérisés, que ce soit l'indice du matériau ou, dans le cas d'empilement de couches minces, l'épaisseur et l'indice des différentes couches.

Conclusion

Nous venons de montrer que l'analyseur optique de surface mis en œuvre dans le cadre de cette étude permet de faire une caractérisation complète d'une surface optique par diffusion lumineuse. En effet, nous avons pu voir dans un premier temps que son utilisation rend possible la séparation de la contribution de la rugosité intrinsèque de l'échantillon de celle d'éventuels défauts localisés. Elle permet également l'obtention d'informations sur les caractéristiques géométriques ou la localisation des défauts.

Par ailleurs, l'instrument de mesure que nous présentons ici permet d'obtenir, en une seule acquisition, la *BRDF* d'une grande quantité de surfaces élémentaires (plus de 40 000 sur le prototype présenté ici et plus d'un million sur l'évolution prévue). Le grand avantage qu'offre cette approche matricielle est de permettre l'acquisition d'une *BRDF* résolue spatialement. Autrement dit, il est possible d'avoir avec une seule acquisition des *BRDF* correspondant à des éléments de surface de tailles différentes, ce qui donne accès à d'autant plus d'informations.

En outre, nous avons pu voir que l'analyseur optique de surface décrit ici n'est qu'une première version d'un appareil de mesure qui offre de nombreuses possibilités d'évolution. En effet, il est envisagé, dans un premier temps, d'accroître la taille de la zone étudiée sur l'échantillon, le domaine angulaire de mesure et la bande spectrale accessible. Le couplage de l'appareil avec un ellipsomètre est également prévu. Pour finir, la déduction d'une unique mesure de diffusion d'une cartographie de rugosité de l'échantillon ainsi que d'un histogramme et d'une classification des défauts en présence et fait également partie des évolutions envisagées sur le montage à court terme.

Ce nouvel appareil viendra donc désormais compléter les outils expérimentaux dont dispose l'activité « Diffusion lumineuse » du laboratoire. L'ensemble de ces outils permet la caractérisation de composants faiblement diffusants, mais aussi de matériaux fortement hétérogènes. C'est à l'étude de ces derniers et plus précisément à la mise au point d'une méthode de caractérisation des composants colorés qu'est dédiée la dernière partie de ce manuscrit.

Partie C :
***Caractérisation par
diffusion lumineuse
de matériaux colorés***

Sommaire

Introduction	179
Chapitre I : Activité microsphères multicouches	181
I. Rappels de quelques résultats théoriques : diffusion par des sphères multicouches	183
II. Réalisation de microsphères	185
Chapitre II : Quantification des effets visuels	189
I. Mise au point d'un appareil de mesure plus adapté ou spectrodiffrusomètre	191
II. Interprétation des mesures	193
1. Espaces colorimétriques	194
a. Le système CIE 1931	194
b. Le système $L^*a^*b^*$	196
c. Le système Luv	198
d. Le système HSL	199
2. À chaque espace son application	200
3. Comment déduire des coordonnées colorimétriques d'une mesure de diffusion	200
Chapitre III : Applications à des programmes d'étude spécifiques	203
I. Caractérisation des sphères multicouches réalisées au laboratoire	205
II. Caractérisation de poudres photochromiques	208
Conclusion	217
Annexes	223
Poudres interférentielles : Première étude	237
Références et bibliographie	249

Introduction

Dans les paragraphes précédents, nous avons présenté des améliorations de la technique de diffusion lumineuse pour l'étude de composants de très grande qualité, et donc peu diffusants. Toutefois, toute une partie de l'activité de l'équipe s'est orientée dans ces dernières années vers l'étude de composants colorés, et en particulier de poudres. Dans ce cas, la lumière est intégralement diffusée et absorbée par les composants. Il n'existe pas de faisceaux spéculaires réfléchis ou transmis, et le laboratoire s'est intéressé au développement de techniques basées sur l'interprétation des mesures de diffusion pour extraire les propriétés optiques des poudres^{43,44}.

Le laboratoire a ensuite mis à profit ses compétences dans le domaine des empilements multicouches pour étudier théoriquement et expérimentalement la possibilité de réaliser des poudres interférentielles, pour des applications liées aux effets colorés²⁴. Dans ce contexte, des études théoriques ont été menées^{45,46}, et un bâti spécifique d'évaporation a été réalisé, en collaboration avec l'équipe RCMO du laboratoire.

Une fois la procédure d'évaporation mise au point, il a fallu, pour l'affiner, améliorer les techniques de caractérisation. Celles-ci étaient basées initialement sur les installations disponibles dans l'équipe, et en particulier le diffusomètre, largement présenté dans les parties précédentes. Cet instrument, présentant une grande sensibilité, nous a servi de référence. Toutefois, il fonctionne avec des sources laser de longueurs d'onde discrètes, et ne permet pas une approche précise de la quantification des effets colorés. Un spectrodiffractomètre avait été développé récemment dans le cadre d'une activité contractuelle. Je me suis alors largement investi dans l'exploitation de tous ces instruments, en adaptant la configuration au cas de l'étude de poudres colorées. J'ai alors introduit les représentations des mesures de diffusion dans les espaces colorimétriques, et plus particulièrement les représentations dans des espaces permettant des interprétations visuelles des effets colorés obtenus.

Tous ces résultats sont présentés dans les chapitres suivants.

Chapitre I :
***Activité microsphères
multicouches***

La définition et la réalisation de structures périodiques et (ou) aléatoires pour le contrôle électromagnétique de la lumière sont des spécialités de l'Institut Fresnel. Les composants étudiés peuvent être structurés latéralement (cas des réseaux de diffraction) ou verticalement (cas des multicouches interférentiels), ou encore bénéficier d'une structuration hybride (micro-réseaux sub-longueur d'onde à motif multicouche) pour offrir les meilleurs outils dans le domaine du filtrage optique en particulier. Les cristaux photoniques permettront à terme d'enrichir encore les possibilités de contrôle de la propagation de la lumière.

Pour explorer de nouvelles possibilités, le laboratoire a souhaité étudier en 2000 la possibilité de recouvrir des micro-sphères par des empilements de couches minces optiques concentriques. Le composant finalisé serait ainsi constitué d'une collection de microbilles multicouches interférentielles qui permettraient, entre autres applications, le filtrage et le contrôle de la lumière dans des conditions jusqu'ici inaccessibles. On peut citer de façon générale :

- Le filtrage optique en lumière diffuse, avec filtrage sélectif en milieu liquide, les actions liées aux produits cosmétiques...
- Le cristal photonique, avec tous les degrés de liberté offerts par les nanosphères multicouches...
- La synthèse de matériaux à propriétés contrôlées...

L'objectif de cette étude était à la fois de mettre en place les outils de calcul permettant de prédire les comportements diffusant des sphères multicouches (théorie de Mie), et de les utiliser afin de réaliser ces sphères, en développant un procédé d'évaporation original. Il s'agissait alors de constituer un bâti d'évaporation spécifique, dans lequel les sphères sont mises en mouvement pendant leur traitement. La technique de dépôt choisie est la pulvérisation par faisceau d'ions (IBS, Ion Beam Sputtering). Ce travail a nécessité une véritable rupture technologique du point de vue de la conception du système de dépôt. Il a été initié avec l'aide de l'équipe RCMO du laboratoire, spécialisée dans les techniques de dépôt. Ces travaux ont été réalisés durant la thèse de P. Voarino et ont été complétés à mon arrivée au laboratoire par la finalisation de la mise au point de la procédure de dépôt. Ceci étant fait, nous nous sommes concentrés sur les aspects de caractérisation a posteriori des poudres réalisées, afin de disposer à terme d'une chaîne de réalisation et caractérisation complète qui permettra à cette activité de progresser encore.

I. Rappels de quelques résultats théoriques : diffusion par des sphères multicouches

Ces travaux ont été réalisés durant la thèse de P. Voarino. Ils ont été publiés, et nous ne reprenons ici que quelques résultats clés, permettant d'illustrer la suite de cette présentation^{24,45,47}.

La première étape de ce travail a été l'étude de l'influence du dépôt d'une couche mince ou d'un empilement sur une sphère. Nous représentons pour chacun des calculs la diffusion angulaire et spectrale, puis les variations des coordonnées colorimétriques en fonction de l'angle de diffusion, ou bien la diffusion globale intégrée dans le demi-espace réfléchi (R) ou dans le demi-espace transmis (T). La Figure 158 illustre le cas du dépôt d'une seule couche haut indice (épaisseur 50 nm) sur une sphère de diamètre 100 nm.

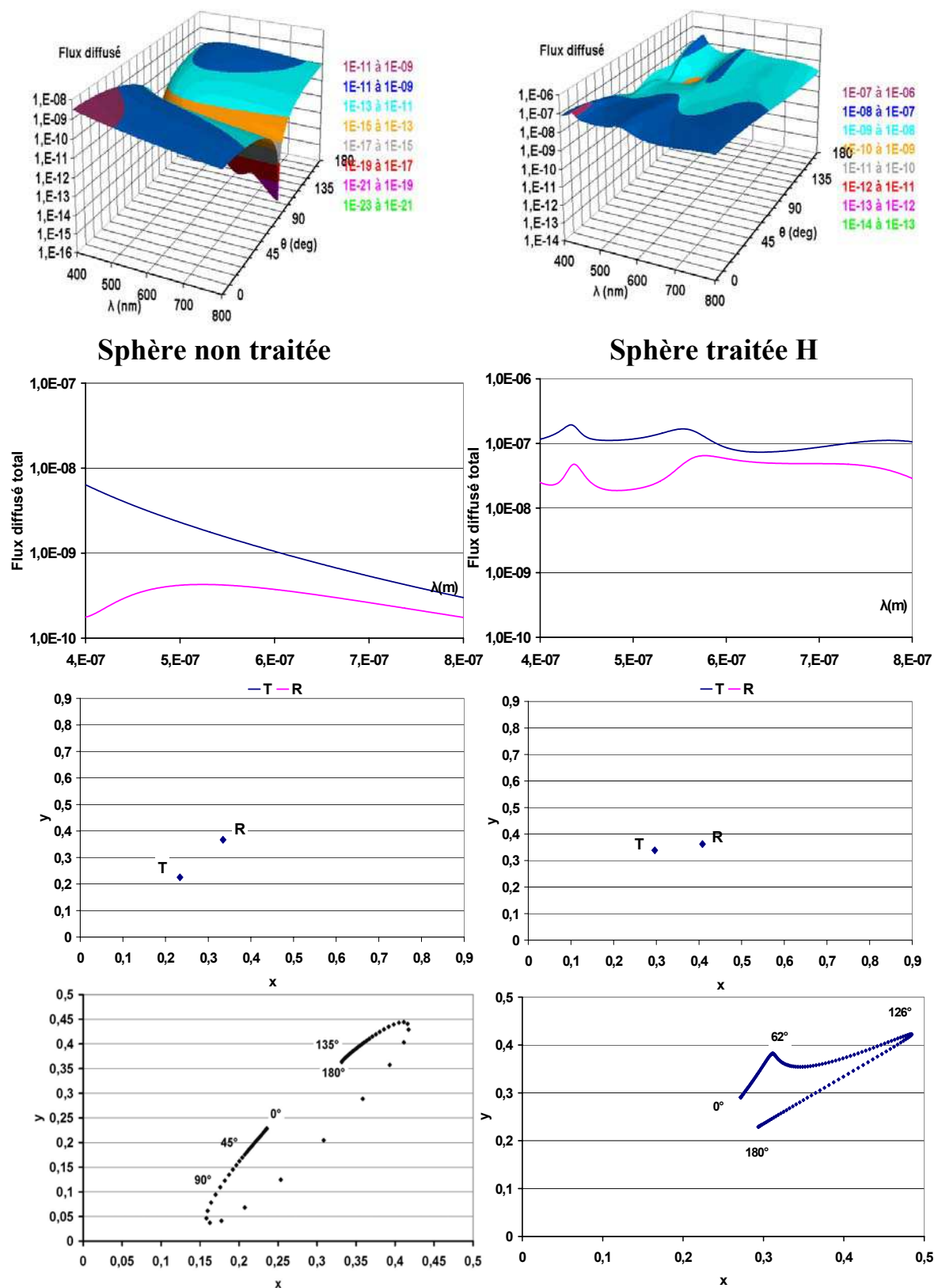


Figure 158 : Influence du dépôt d'une couche haut indice (50 nm) sur une sphère de silice de diamètre 100 nm^{24}

Toutefois, il est important de noter à ce stade qu'il faut étudier non seulement l'effet de la couche mince déposée, mais aussi l'effet de taille qui pourrait simplement modifier la diffusion, indépendamment du matériau déposé, comme schématisé en Figure 159. Nous

avons vérifié qu'il fallait que la taille de la sphère soit significativement supérieure à l'épaisseur totale de l'empilement pour que la réponse spectrale obtenue soit fixée par le traitement et non par le paramètre de taille²⁴.

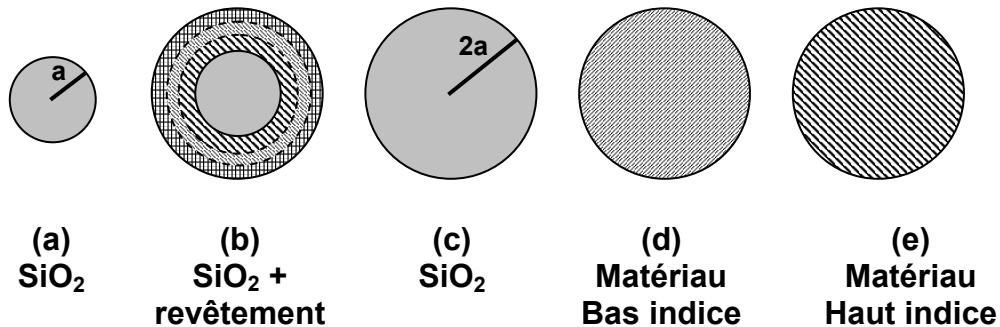


Figure 159 : Influence du paramètre de taille sur la diffusion par une sphère recouverte : lorsque l'on conçoit un empilement, on doit comparer les effets de la taille (a) de la sphère initiale (fig a), à ceux de l'empilement (fig b), ou à celui de la taille finale de la sphère recouverte, la sphère équivalente étant dans un des matériaux de l'empilement (fig c, d, e).

Ces résultats montrent l'influence du dépôt d'une couche sur la réponse angulaire et spectrale de la diffusion. Les possibilités sont donc nombreuses, si l'on exploite les différents matériaux à notre disposition pour le dépôt de couches minces, et les empilements de systèmes multicouches. Toutefois, pour des aspects liés au contrôle de la réalisation et de la synthèse des empilements multicouches, il faut s'intéresser au cas particulier des couches quart d'onde. Les résultats de ces travaux ont été publiés^{45,46} et ne sont pas présentés ici.

II. Réalisation de microsphères

Comme rappelé en introduction, un bâti spécifique d'évaporation a été mis au point^{24,48}. Le schéma de principe est représenté en Figure 160.

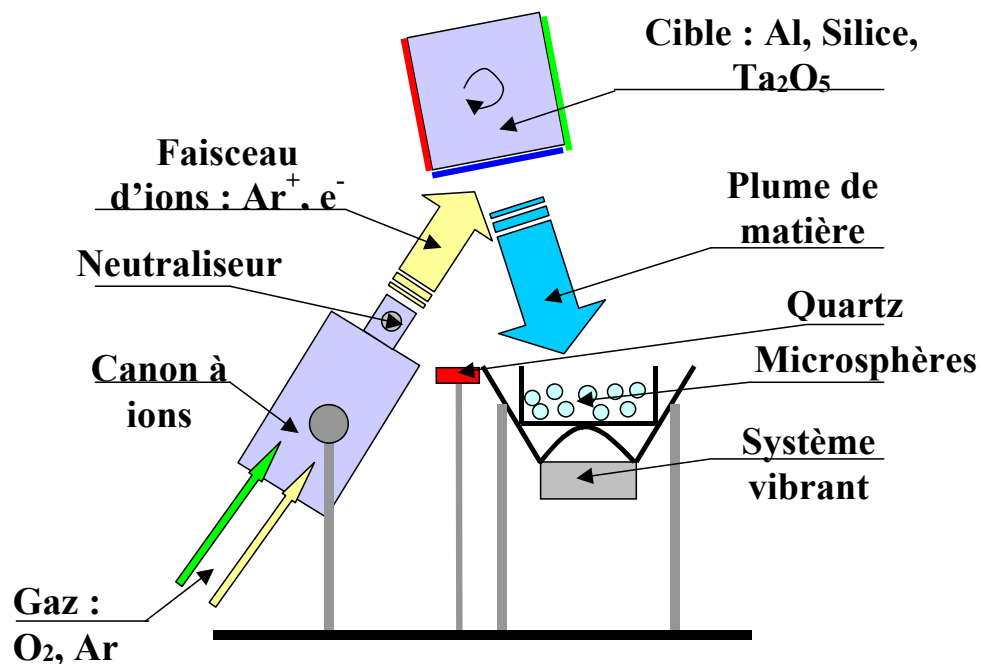


Figure 160: Schéma de principe du bâti d'évaporation développé spécifiquement.

Lors de la conception de ce système, nous nous sommes attachés à plusieurs points :

- Les sphères doivent être agitées pendant le dépôt. Un système primaire constitué d'un haut parleur permet de réaliser cette fonction sous vide.
- La surface des sphères doit être accessible pendant l'évaporation, de manière à prévoir un contrôle optique pour le futur. Le haut parleur sera donc renversé, et les sphères placées dans un panier ouvert.
- Suite au choix de la configuration indiquée dans le point précédent, la matière évaporée doit arriver par le haut. Nous avons alors choisi la pulvérisation ionique, la cible de matière étant positionnée en partie haute du bâti.
- L'enceinte d'évaporation mise à notre disposition était un modèle de marque VEECO avec une cloche métallique amenée par le dessus. Nous avons alors dû choisir une configuration mécanique permettant de réaliser les réglages de positions et d'angles de manière fonctionnelle.
- Le bâti étant ancien, il a fallu refaire l'équipement au complet, ne conservant que l'enceinte à vide. Cela signifie le remplacement de la pompe à vide, des arrivées de gaz et des systèmes de régulation automatique, du système de refroidissement de la cible...

Des photos du bâti réalisé sont données en figures 161 et 162.



Figure 161 : Dispositif d'évaporation

Avec ce nouveau dispositif, nous avons commencé par tester la qualité des matériaux évaporés, en configuration classique, afin d'ajuster les paramètres d'évaporation.

De mon côté, en complément des travaux de P. Voarino, je me suis attachée à tester la qualité de la tenue des matériaux sur les billes agitées en cours d'évaporation, ainsi que leur uniformité. Par exemple, on peut voir Figure 164 la photo d'une bille recouverte en utilisant la procédure spécialement développée pour l'évaporation sur les microsphères. On constate que

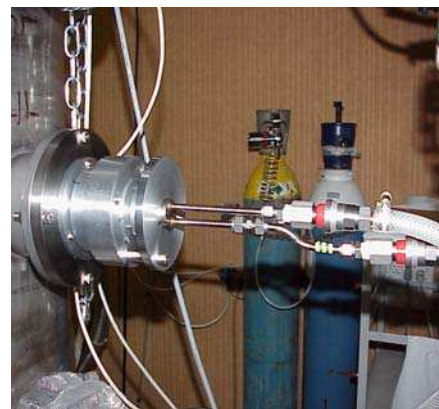


Figure 162 : Porte cibles et système de refroidissement

le dépôt est uniforme. A titre comparatif, la photo d'une bille ayant subi le même dépôt, mais dans la même configuration que les substrats plans (immobile) est donnée Figures 163. Ces photos illustrent bien le fait que notre système d'agitation des billes permet d'avoir un dépôt uniforme sur l'intégralité de la bille.



**Bille immobile pendant le dépôt :
Partiellement recouverte**



**Bille agitée pendant le dépôt :
Uniformément recouverte**

Figures 163 et 164 : Billes ayant subi un dépôt de 30 min de Al et 30 min de Ta_2O_5

Nous avons ensuite choisi de déposer deux oxydes utilisés par ailleurs couramment au laboratoire : SiO_2 et Ta_2O_5 , ainsi que de l'aluminium. Nous avons traité des microsphères, et les résultats obtenus sont présentés dans les figures suivantes :



Figure 165 : Microsphères de silice non traitées **Figure 166 : Microsphères de silice recouvertes d'Aluminium**



Dépôt: 1h Al + 3h Ta_2O_5



Dépôt : 1h Al + 1h30 Ta_2O_5

Figures 167 et 168 : Microsphères de silice aluminées recouvertes de deux épaisseurs différentes de Ta_2O_5

Ces résultats ont permis de valider le principe du dépôt dans cette configuration. Nous avons également obtenu les premiers effets colorés (Figures 167 et 168). Il nous est alors apparu indispensable d'être capable de quantifier les variations de couleur des microsphères, que ce soit pour comparer les différents types de dépôts ou pour mesurer les variations angulaires de couleur des poudres. C'est dans cette optique que nous avons décidé de

concentrer nos efforts sur la caractérisation a posteriori des composants réalisés. Nous nous sommes, pour cela, appuyés sur les installations usuellement utilisées pour l'étude de la diffusion de la lumière, et largement exposées dans les parties précédentes et nous les avons fait évoluer dans le but d'aborder la quantification d'aspects visuels.

Chapitre II :
Quantification des effets
visuels

I. Mise au point d'un appareil de mesure plus adapté ou spectrodiffusomètre

Le diffusomètre présenté dans les parties précédentes (Figure 2) permet d'enregistrer l'indicatrice de diffusion d'un échantillon pour un ensemble de longueurs d'ondes discrètes comprises entre la partie bleue du spectre visible et l'infra rouge moyen. Une source accordable (autour de $1,55 \mu\text{m}$) a été utilisée pour analyser les répartitions angulaire et spectrale fine de composants *WDM*⁴⁹. Toutefois, pour répondre à des applications liées à l'étude de comportements colorés, l'analyse spectrale doit être réalisée sur l'intégralité du domaine visible. Un nouvel instrument de mesure spécifiquement dédié aux mesures spectrales a été développé dans cette optique. Le principe en est le même que le diffusomètre décrit Partie A : Chapitre I : I.2 mais l'éclairage se fait en lumière blanche et le détecteur utilisé est un spectromètre. Cet instrument est présenté en Figure 169.

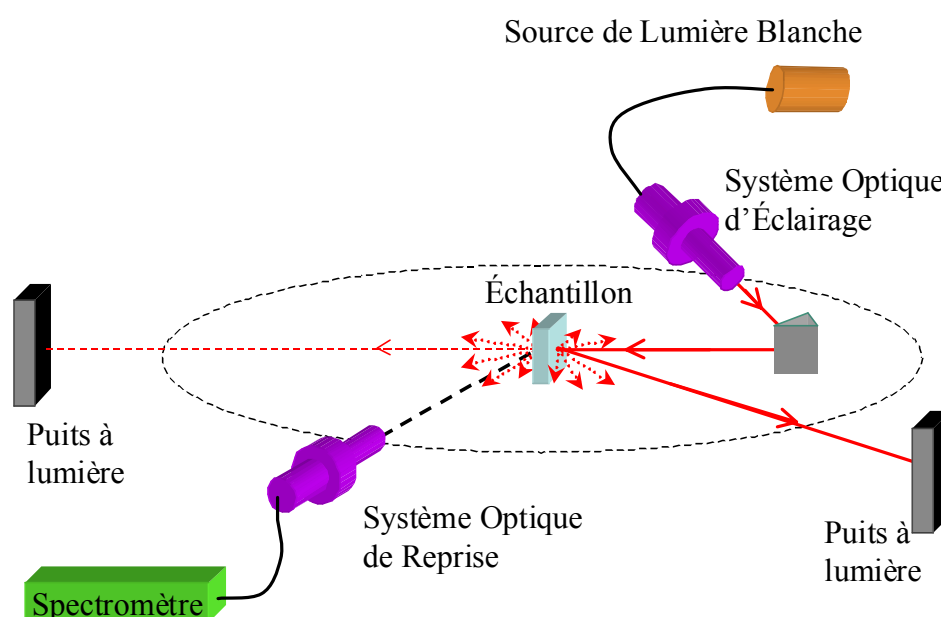


Figure 169 : Spectrodiffusomètre

La source utilisée est à spectre large (360 à 2000 nm) et le photodétecteur est une barrette linéaire de photodiodes placée dans le plan focal d'un spectromètre. Cette source à spectre large est en outre de grande étendue, ce qui impose d'employer un système optique spécifique pour faire en sorte que les caractéristiques géométriques du faisceau d'éclairage soient en accord avec les objectifs recherchés (dimensions transverses de la zone éclairée, divergence intrinsèque du faisceau d'éclairage).

Pour ce faire, l'éclairage se fait par l'intermédiaire d'un système optique d'éclairage (SOE) ainsi que d'un système optique de reprise (SOR). Ces deux systèmes sont identiques dans leur principe au système optique d'émission utilisé pour la voie d'éclairage de l'analyseur optique de surface et décrit Figure 129. Ils sont reliés à la source dans un cas et au spectromètre dans l'autre cas par des fibres optiques.

En outre, ces deux systèmes étant symétriques par rapport à la face de l'échantillon dont on veut mesurer l'indicatrice de diffusion, le montage est parfaitement symétrique par rapport à l'échantillon. En l'absence d'échantillon, tout le flux lumineux émis par la fibre

d'éclairage en entrée du système est récupéré par la fibre de reprise en sortie de ce même système.

De plus, les deux systèmes optiques, sont conçus de manière à être dans une configuration télécentrique. La pupille de sortie du SOE est alors rejetée à l'infini et les caractéristiques angulaires du faisceau d'éclairage sont parfaitement homogènes à l'intérieur de la surface éclairée.

D'un point de vue mécanique, le montage a été conçu avec du matériel léger et avec des pièces standards, contrairement au diffusomètre de base qui avait requis un gros travail en atelier de mécanique. Il est ainsi beaucoup plus flexible, et peut permettre des mesures dans des conditions particulières. Par exemple, dans le cas de mesures de poudres, il est possible de modifier le montage afin que le bras de mesure soit situé dans un plan vertical, comme représenté en Figure 170. Dans ces conditions, la poudre peut être placée dans une coupelle horizontale. L'indicatrice angulaire et spectrale de diffusion peut alors être mesurée dans le demi espace réfléchi.

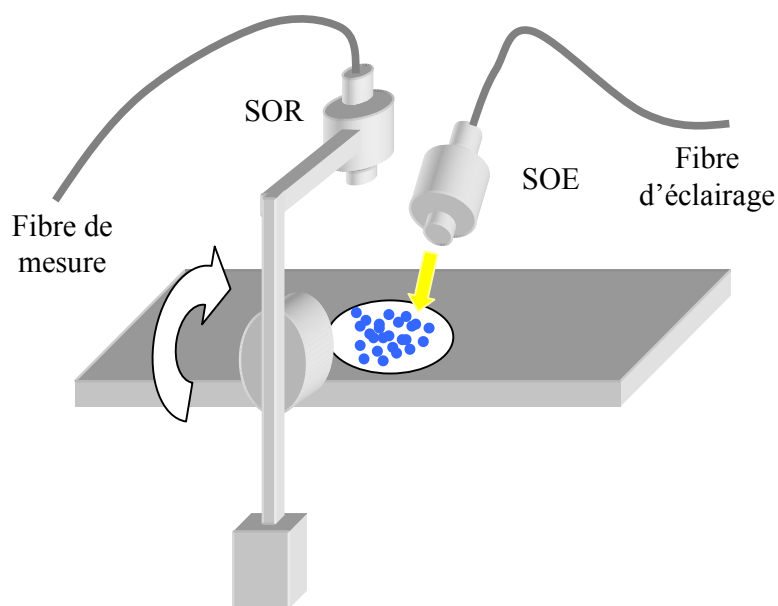


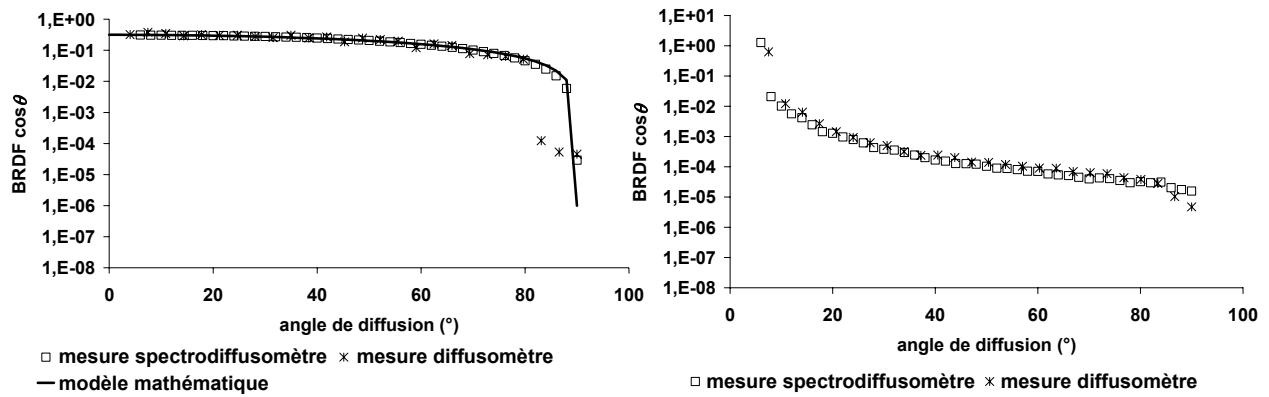
Figure 170 : Spectrodiffusomètre utilisé pour la mesure de poudres

Enfin, les mesures réalisées sur cet instrument sont étalonnées suivant le même principe que celui utilisé pour le diffusomètre. L'échantillon de référence utilisé est le même échantillon Lambertien. La constante d'étalonnage dépendra toutefois très légèrement de la longueur d'onde.

Les mesures réalisées sur les deux instruments ont été comparées, sur plusieurs types d'échantillons et sont données dans le cas d'un diffuseur lambertien Figure 171, et d'un miroir en aluminium Figure 172.

Pour cela, le diffusomètre standard a été utilisé avec un laser HeNe (longueur d'onde d'émission 632,8 nm) et les résultats obtenus sont comparés avec ceux que le spectrodiffusomètre donne pour les mêmes échantillons à 633 nm.

En outre, Figure 171, nous avons également tracé l'indicatrice de diffusion théorique d'un échantillon lambertien.



Cas du diffuseur lambertien

Cas d'un miroir

Figures 171 et 172 : Comparaison des montages

Les courbes de mesure obtenues sur chacun des montages coïncident parfaitement. Ceci signifie que l'étalonnage et l'alignement du spectrodiffusomètre sont de bonne qualité et que les deux diffusomètres donnent des résultats parfaitement comparables.

On remarque en outre, dans le cas du lambertien, une légère différence aux alentours de 80°. Ceci traduit, dans le cas du diffusomètre, à la fois un défaut d'alignement et l'influence sur le signal mesuré du système de fixation de l'échantillon.

Ces mesures comparatives nous permettent désormais de valider et étalonner le spectrodiffusomètre que nous venons de présenter. Il sera par la suite utilisé sur différents types d'échantillons.

Nous venons de décrire un système qui nous permettra d'effectuer des mesures spectrales et angulaires de diffusion lumineuse. Il reste donc à savoir comment, à partir d'une telle mesure quantifier la variation de couleur d'un composant.

II. Interprétation des mesures

Le dispositif présenté dans le paragraphe précédent permet d'acquérir des indicatrices angulaires et spectrales de la diffusion. Ces données peuvent être représentées sous la forme de surfaces tridimensionnelles, comme illustré dans la Figure 173.

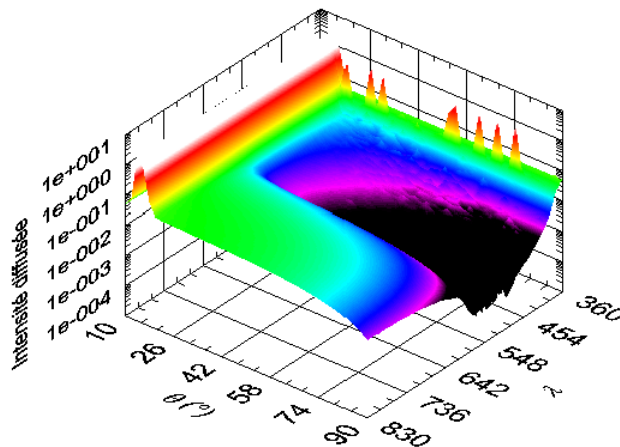


Figure 173 : Mesure angulaire et spectrale d'un échantillon de céramique rouge éclairée sous faible incidence

Toutefois ce type de représentation ne permet pas une analyse quantitative pertinente des données expérimentales. De plus lorsque l'on s'intéresse à des aspects colorés, l'aspect visuel revêt une importance majeure, que nous nous devons de quantifier. Nous avons donc régulièrement pris le parti de représenter les données expérimentales dans des espaces colorimétriques.

Nous pouvons alors choisir différents types de représentation, selon l'application visée. Nous rappelons rapidement dans les paragraphes suivants quelles représentations sont possibles, et nous attacherons ensuite à présenter des résultats obtenus à partir de ces outils de mesure et de représentation.

1. **Espaces colorimétriques**⁵⁰⁻⁵⁴

Nous pouvons commencer par rappeler qu'en moyenne un oeil est capable de discerner plus de 350 000 couleurs différentes. Mais l'étude de ces nuances de couleurs suppose que l'on puisse les classer en fonction de leurs caractéristiques. Historiquement, on peut citer trois approches dans la classification des couleurs : l'approche visuelle (développée par Chevreul, Munsell, Ostwald, etc....)⁵⁵⁻⁵⁸ l'approche physique (*RVB* (trichromie rouge, vert, bleu), diagramme *CIE XYZ*⁵⁹⁻⁶¹ (tridimensionnel) proposé par la commission internationale de l'éclairage)⁶², et ce en partant du spectre de la lumière analysé par Newton, du spectre de la perception des couleurs proposé par Goethe, et des apports de la psychométrie (*CIE L*a*b**, *CIE Luv*)⁶³.

a. **Le système CIE XYZ**

L'espace colorimétrique *CIE XYZ* a été défini afin de corriger certains défauts de l'espace *RGB*. Cet espace résulte des travaux de Judd⁵⁹ et est constitué de trois primaires *X*, *Y* et *Z*, dites virtuelles. Ainsi, il présente les propriétés suivantes :

- Les trois fonctions colorimétriques décrivant chaque couleur en fonction de ses primaires ont tous des valeurs positives pour les spectres visibles.
- La fonction $Y(\lambda)$ représente approximativement la sensibilité de l'oeil humain à la luminosité. Par conséquent, la composante *Y* est usuellement considérée comme la composante luminance du spectre incident.
- Tout spectre d'égale énergie est associé à un triplet dont toutes les composantes sont égales.

Les composantes d'une couleur s'écrivent :

$$\begin{aligned} X &= \int \bar{x}(\lambda)C(\lambda)d\lambda \\ Y &= \int \bar{y}(\lambda)C(\lambda)d\lambda \\ Z &= \int \bar{z}(\lambda)C(\lambda)d\lambda \end{aligned} \quad (229)$$

où \bar{x} , \bar{y} et \bar{z} sont les fonctions de mélange qui définissent les caractéristiques colorimétriques de l'observateur de référence en se basant sur un angle de référence de 10° . Ce sont donc en fait des fonctions de pondération de l'œil. Elles sont données Figure 174.

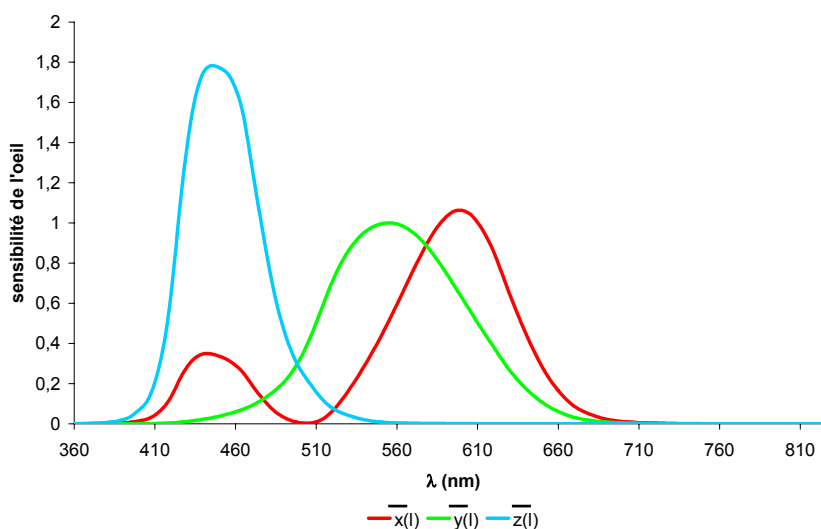


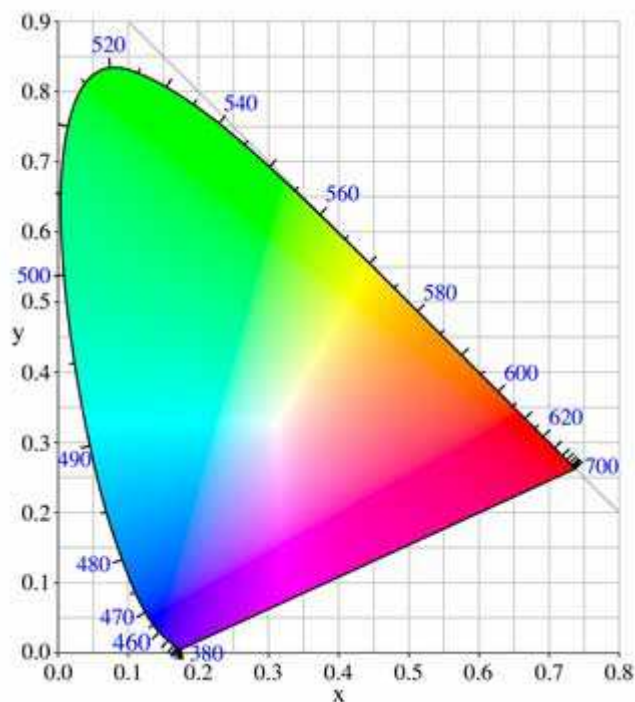
Figure 174: Fonctions colorimétriques de l'observateur normalisé sous 10° par la CIE en 1964

La manipulation des vecteurs de données 3D augmente les difficultés quant aux calculs et à la visualisation. Afin de résoudre ce problème, il est devenu courant d'utiliser une projection des vecteurs 3D sur un plan unitaire où la somme des composantes est égale à 1. Cette somme des trois composantes représente l'intensité de la couleur et non la proportion de chacune des primaires. Ainsi, nous obtenons un diagramme de chromaticité où les projections sont appelées : « coordonnées chromaticité ». Les valeurs de ce diagramme de chromaticité sont obtenues à partir des primaires X , Y et Z grâce à l'équation suivante :

$$\begin{aligned} x &= \frac{X}{X+Y+Z} \\ y &= \frac{Y}{X+Y+Z} \\ z &= \frac{Z}{X+Y+Z} \end{aligned} \quad (230)$$

où grâce au plan unitaire, nous avons $x + y + z = 1$.

De cette représentation découle l'idée de ne représenter l'ensemble des couleurs qu'en utilisant deux coordonnées. Elle est justifiée par le fait de pouvoir déduire les valeurs de la troisième composante à tout moment en calculant la valeur manquante pour atteindre 1. La représentation la plus fréquente est celle du diagramme de chromaticité xy schématisé par la Figure 175. Dans ce diagramme, toutes les couleurs sont contenues dans l'aire délimitée par le lieu des radiations monochromatiques appelé « spectrum locus » et la droite des pourpres.

Figure 175: Diagramme de chromaticité xy ⁶⁴

La couleur d'un matériau dépendant de la lumière sous laquelle il est visualisé, il est nécessaire de bien définir le type d'éclairage utilisé. C'est pourquoi des illuminants normalisés sont définis. Les coordonnées trichromatiques des plus usités d'entre eux sont données Tableau 2.

Tableau 2 : Coordonnées trichromatiques des illuminants les plus courants⁵⁰

Illuminants	x_0	y_0
CIE ILL A (lampe à incandescence)	0,4512	0,4012
CIE ILL C (lumière du jour moyenne)	0,3104	0,3191
CIE ILL D ₅₀ (lumière du jour, soleil à 30°, temps clair)	0,3457	0,3585
CIE ILL D ₅₅ (lumière du jour, soleil au zénith, temps clair)	0,3341	0,3487
CIE ILL D ₆₅ (lumière du jour, temps couvert)	0,3138	0,3310
source d'égale énergie	0,3333	0,3333

Dans l'espace CIE XYZ , de grands écarts colorimétriques peuvent être perçus comme visuellement faibles. Pour une représentation plus adaptée à la caractérisation d'effets visuels, nous avons préféré utiliser le système $L^*a^*b^*$.

b. Le système $L^*a^*b^*$

Le système $L^*a^*b^*$ est issu du CIE XYZ . (standard CIE 1976). Il est plus adapté à la perception visuelle et possède le grand avantage d'être perceptuellement plus uniforme ce qui permet de quantifier la différence entre deux couleurs. En effet, la distance entre deux couleurs visuellement proches sera faible et inversement.

Il décompose l'espace tridimensionnel des couleurs en une dimension luminance qui occupe une place prépondérante dans la vision et deux dimensions chromatiques portant uniquement les informations de couleurs sans l'influence de la luminance.

- L^* est la luminance ou clarté de l'échantillon et varie sur une échelle de 0 (noir) à 100 (blanc).
- a^* représente l'opposition de couleur vert-rouge.
- b^* représente l'opposition de couleur bleu-jaune.

Les coordonnées dans l'espace $L^*a^*b^*$ se calculent à partir des coordonnées chromatiques dans l'espace XYZ , on utilise alors les formules de conversion suivantes :

$$L^* = 116 \left(\frac{Y}{Y_0} \right)^{\frac{1}{3}} - 16 \quad \text{pour } \frac{Y}{Y_0} > 0,008856 \quad (231)$$

$$L^* = 903,3 \frac{Y}{Y_0} \quad \text{pour } \frac{Y}{Y_0} \leq 0,008856$$

$$a^* = 500 \left(f \left(\frac{X}{X_0} \right) - f \left(\frac{Y}{Y_0} \right) \right) \quad (232)$$

$$b^* = 200 \left(f \left(\frac{Y}{Y_0} \right) - f \left(\frac{Z}{Z_0} \right) \right)$$

où

$$f(t) = \sqrt[3]{t} \quad \text{pour } t > 0,008856 \quad (233)$$

$$f(t) = 7.7787t + 16/116 \quad \text{pour } t \leq 0,008856$$

où X_0 , Y_0 et Z_0 sont les valeurs dans l'espace XYZ de l'illuminant considéré.

Connaissant les coordonnées L^* , a^* , b^* d'un échantillon, on peut le situer dans l'espace $L^*a^*b^*$ représenté Figure 176.

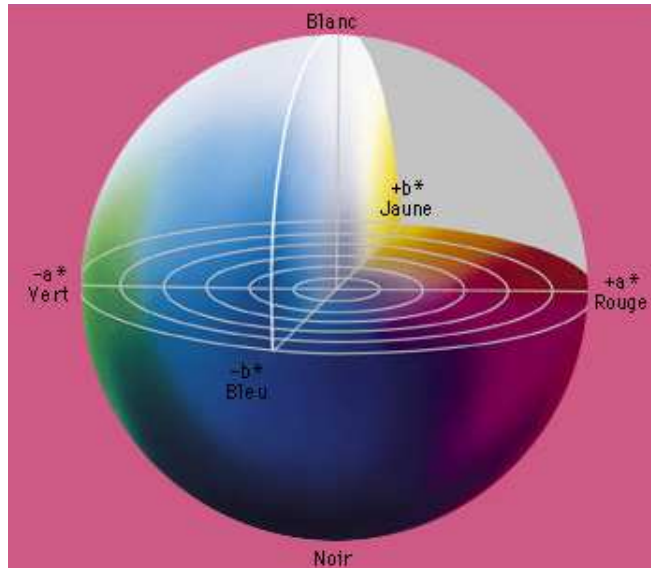


Figure 176 : Espace colorimétrique $L^*a^*b^*$ ⁶⁵

On peut calculer la distance entre deux couleurs qui est la distance euclidienne :

$$\Delta C = \sqrt{\Delta L^{*2} + \Delta a^{*2} + \Delta b^{*2}} \quad (234)$$

De plus, on peut définir deux autres grandeurs caractéristiques :

➤ La saturation :

$$S = \sqrt{a^{*2} + b^{*2}} \quad (235)$$

➤ La teinte h^* qui est l'angle mesuré par rapport à l'axe a^* (Figure 177).

$$h^* = \arctan\left(\frac{b^*}{a^*}\right) \quad (236)$$

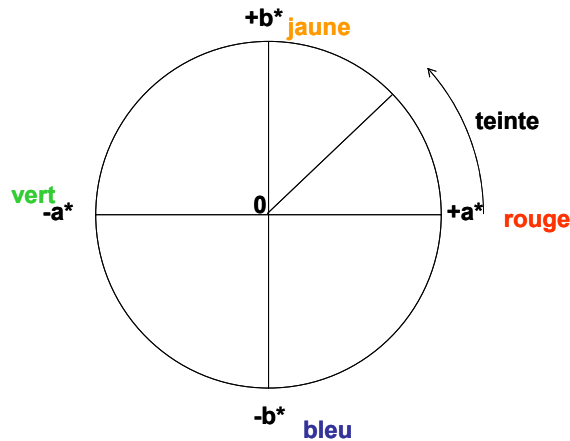


Figure 177 : Teinte dans le système $L^*a^*b^*$

c. Le système Luv

Cet espace chromatique a été défini par la *CIE* en 1976. Deux coordonnées u^* et v^* définissent les composantes chromatiques correspondant respectivement aux oppositions vert-rouge et bleu-jaune et L^* la clarté.

Les coordonnées Luv s'écrivent, comme les coordonnées $L^*a^*b^*$ en fonction des coordonnées XYZ de la manière suivante :

$$L^* = 116 \left(\frac{Y}{Y_0} \right)^{\frac{1}{3}} - 16 \quad \text{pour } \frac{Y}{Y_0} > 0.008856$$

$$L^* = 903.3 \frac{Y}{Y_0} \quad \text{pour } \frac{Y}{Y_0} \leq 0.008856$$
(237)

et

$$u^* = 13L^* [U(X, Y, Z) - U(X_0, Y_0, Z_0)]$$

$$v^* = 13L^* [V(X, Y, Z) - V(X_0, Y_0, Z_0)]$$
(238)

où

$$U(X, Y, Z) = \frac{4X}{X + 15Y + 3Z}$$
(239)

et

$$V(X, Y, Z) = \frac{9Y}{X + 15Y + 3Z}$$
(240)

Toutefois, si les systèmes $L^*a^*b^*$ et Luv permettent d'avoir une meilleure représentation de la différence entre deux couleurs que les systèmes xyz ou RGB , il n'est pas

très intéressant pour la visualisation de couleurs retranscrites. Pour cela, il est préférable d'utiliser le système *HSL*.

d. Le système *HSL*

Le système *HSL* permet de décrire une couleur en utilisant sa teinte, sa saturation et sa luminance :

- La Teinte (hue) est la longueur d'onde de la lumière réfléchi, ou transmise par un objet. Elle correspond à son emplacement sur la roue chromatique, dans un angle compris entre 0° et 360° . Le spectre circulaire part du rouge, passe par le vert et le bleu pour revenir au rouge. Pour une teinte donnée, la proportion de chaque couleur primaire est fixée.
- La Saturation indique la pureté ou intensité de la couleur (des couleurs grisées - 0 %; aux couleurs vives - 100 %). En diminuant la saturation, on harmonise les proportions entre chacune des couleurs primaires (*RGB*) du fait d'une réduction du contraste on obtient ainsi à l'extrême du gris. À l'inverse, augmenter la saturation augmente le rapport entre les couleurs primaires prédominantes le couleur prédominante contraste alors encore plus avec les autres.
- La Luminance indique la variation d'intensité lumineuse d'une couleur, entre 0 % (noir) et 100% (blanc). Elle augmente la « luminosité » d'une teinte donnée. Diminuer la luminance possède la propriété de réduire les valeurs numériques des couleurs primaires tout en gardant les mêmes proportions.

La palette des teintes est donc circulaire, la saturation est mesurée selon le rayon (avec le blanc au centre) et la luminance se mesure selon l'axe perpendiculaire au plan :

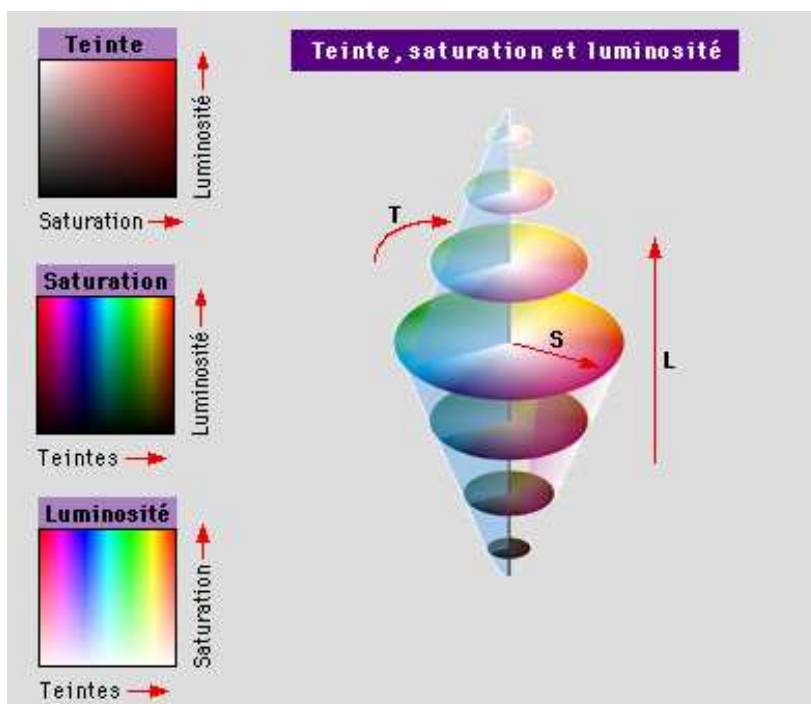


Figure 178 : Représentation dans l'espace colorimétrique *HSL*⁶⁵

Les trois schémas de gauche montrent les variations de deux paramètres, lorsque le troisième reste constant.

Le système *HSL* découle directement du système *Luv* de la manière suivante :

$$\begin{aligned}
L &= L^* \\
S &= 13\sqrt{(u^* - u_0^*)^2 + (v^* - v_0^*)^2} \\
H &= 0 \quad \text{si} \quad u^* = 0 \\
H &= \frac{180}{\pi} \left(\pi + \arctan\left(\frac{v^*}{u^*}\right) \right)
\end{aligned} \tag{241}$$

où u_0 et v_0 sont les coordonnées de l'illuminant considéré.

2. À chaque espace son application

L'ensemble des bases de représentation des espaces colorimétriques que nous utiliserons par la suite est désormais défini.

Le système $L^*a^*b^*$ est dit perceptuellement uniforme, pour cela, il vérifie les deux critères suivants (sachant que la distance employée est la distance euclidienne) :

- La distance $d(C_i, C_j)$ entre les deux couleurs C_i et C_j est correcte, si et seulement si la valeur issue de cette distance se rapproche de la différence perçue par l'œil humain.
- La distance $d(C_i, C_1) = nd(C_i, C_2)$ est correcte si et seulement si l'œil humain perçoit la couleur C_i n fois plus éloignée de la couleur C_1 que la couleur C_2 .

Pour cette raison, nous utiliserons le système $L^*a^*b^*$ pour quantifier des variations de couleur.

Le système HSL , quant à lui est plus adapté à l'affichage de couleurs, de ce fait, nous l'utiliserons pour visualiser, sur l'écran d'ordinateur ou sur l'impression papier, les couleurs des échantillons caractérisés.

Les autres systèmes colorimétriques seront utilisés uniquement comme intermédiaires de calcul.

Il nous reste désormais à faire le lien entre une mesure de diffusion effectuée sur un échantillon et le positionnement de cet échantillon dans un espace colorimétrique.

3. Comment déduire des coordonnées colorimétriques d'une mesure de diffusion

Considérons un échantillon opaque dont on a mesuré les indicatrices de diffusion spectrale et angulaire et notons $I(\theta, \lambda)$ l'intensité diffusée par ce composant.

Notre but est ici de déduire de la mesure les caractéristiques intrinsèques de l'échantillon. Il apparaît donc nécessaire de s'affranchir de l'influence de la source. Pour ce faire, nous utiliserons pour les calculs le coefficient η défini par :

$$\eta(\theta, \lambda) = \frac{I(\theta, \lambda)}{I_0(\theta, \lambda)} \tag{242}$$

où $I_0(\theta, \lambda)$, l'indicatrice mesurée sur un échantillon blanc de référence dans les mêmes conditions expérimentales.

On va alors en déduire les composantes trichromatiques $X(\theta)$, $Y(\theta)$ et $Z(\theta)$ pour chaque angle de mesure θ de la manière suivante :

$$\begin{aligned}X(\theta) &= \int \eta(\theta, \lambda) \bar{x}(\theta, \lambda) d\lambda \\Y(\theta) &= \int \eta(\theta, \lambda) \bar{y}(\theta, \lambda) d\lambda \\Z(\theta) &= \int \eta(\theta, \lambda) \bar{z}(\theta, \lambda) d\lambda\end{aligned}\tag{243}$$

où \bar{x} , \bar{y} et \bar{z} sont les fonctions de sensibilité de l'œil aux trois primaires X, Y et Z telles qu'elles ont été définies Figure 174.

On peut alors calculer les rapports $\frac{X(\theta)}{X_0(\theta)}$, $\frac{Y(\theta)}{Y_0(\theta)}$ et $\frac{Z(\theta)}{Z_0(\theta)}$ qui nous permettront de calculer directement les coordonnées $L^*a^*b^*$, Luv puis HSL correspondant à chaque échantillon en utilisant les relations définies dans les paragraphes précédents.

Nous utiliserons alors les coordonnées $L^*a^*b^*$ pour visualiser numériquement les variations de couleurs et les coordonnées HSL pour les retranscrire visuellement.

Chapitre III :
*Applications à des
programmes d'étude
spécifiques*

Nous venons de définir une procédure nous permettant de mesurer, de quantifier et le cas échéant de retranscrire les variations de couleur d'un échantillon à partir d'une mesure spectrale de diffusion. Le but premier de cette étude était de caractériser les microsphères réalisées au laboratoire et présentées Partie C : Chapitre I ; ce fut donc notre première application. Les résultats obtenus nous ont ensuite permis d'initier une collaboration avec une société spécialisée dans le développement de produits cosmétiques sur la caractérisation d'effets photochromiques.

I. Caractérisation des sphères multicouches réalisées au laboratoire

Des empilements multicouches concentriques ont été réalisés sur des sphères de silice de 130 μm de diamètre. Le processus de fabrication a été présenté dans la partie précédente et publié^{24,48}, il n'est donc pas rappelé ici. Une première méthode de caractérisation des poudres basée uniquement sur la mesure de diffusion spectrale des microsphères a également été publiée⁴⁸ et est donnée en annexe (page 237). Cette première étude ne donnait pas d'information sur les variations angulaires de couleurs, pour cela, nous avons décidé de la compléter en utilisant la méthode décrite dans les paragraphes précédents. Nous présenterons ici les mesures effectuées sur quatre séries de poudres interférentielles qui présentent différentes teintes.

Les photos des poudres caractérisées sont données Figure 179.



Figure 179 : Photos des poudres caractérisées

Les traitements effectués sur ces poudres sont les suivants :

Tableau 3 : Dépôts effectués sur les poudres présentées Figure 179

Poudre	0	1	2	3
Dépôt	aucun	1h Al	1h Al + 1h30 Ta_2O_5	1h Al + 3h Ta_2O_5

Les indicatrices de diffusion spectrales et angulaires de chaque poudre sont données Figure 180.

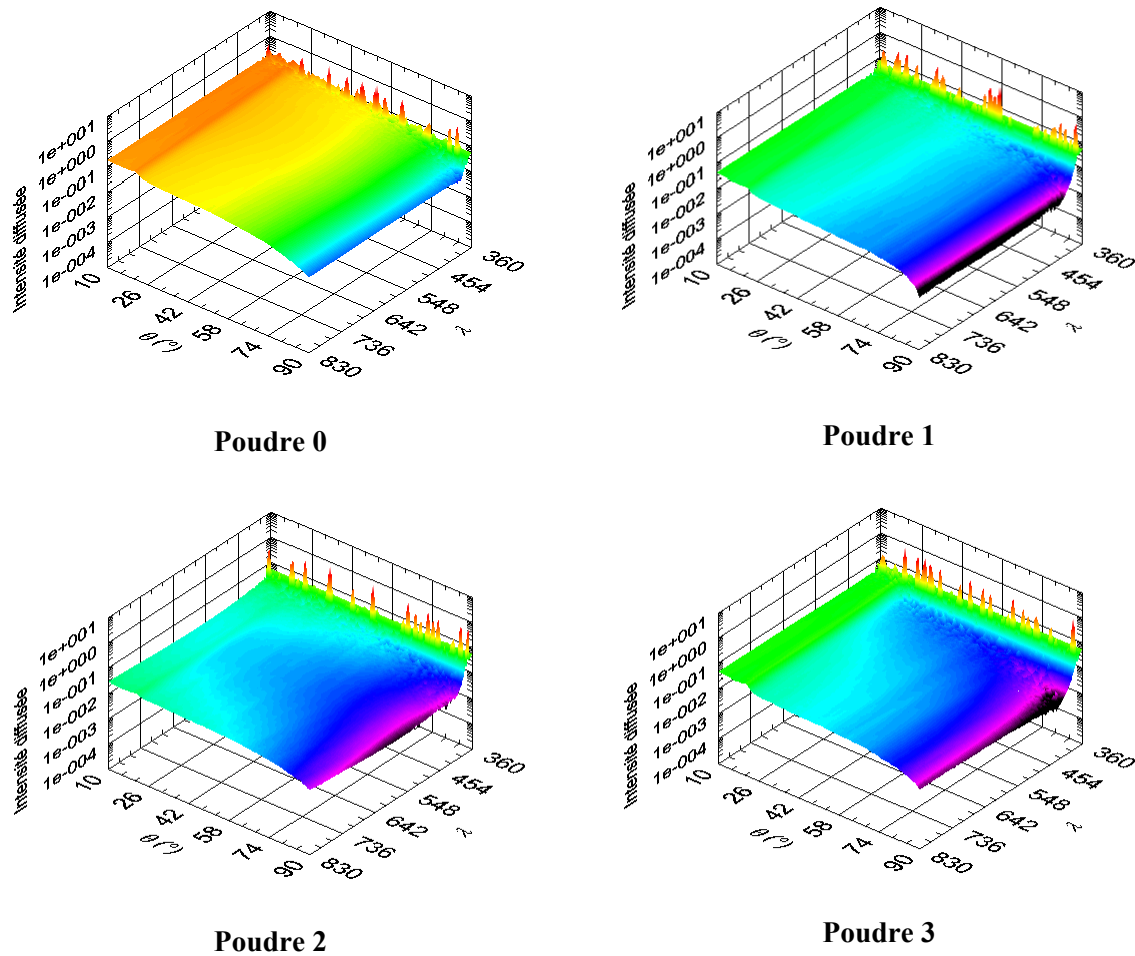


Figure 180 : Indicatrices de diffusion spectrales et angulaires des poudres présentées Figure 179

Nous en avons alors déduit les coordonnées $L^*a^*b^*$ pour chaque angle de mesure.

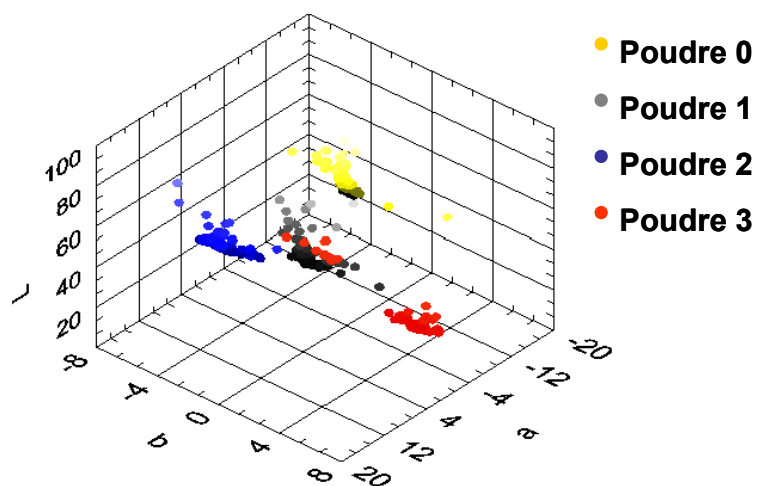


Figure 181 : Coordonnées des quatre poudres étudiées à tous les angles de mesure dans l'espace $L^*a^*b^*$

Si on considère uniquement les projections de ces coordonnées dans le plan a^*b^* , nous avons :

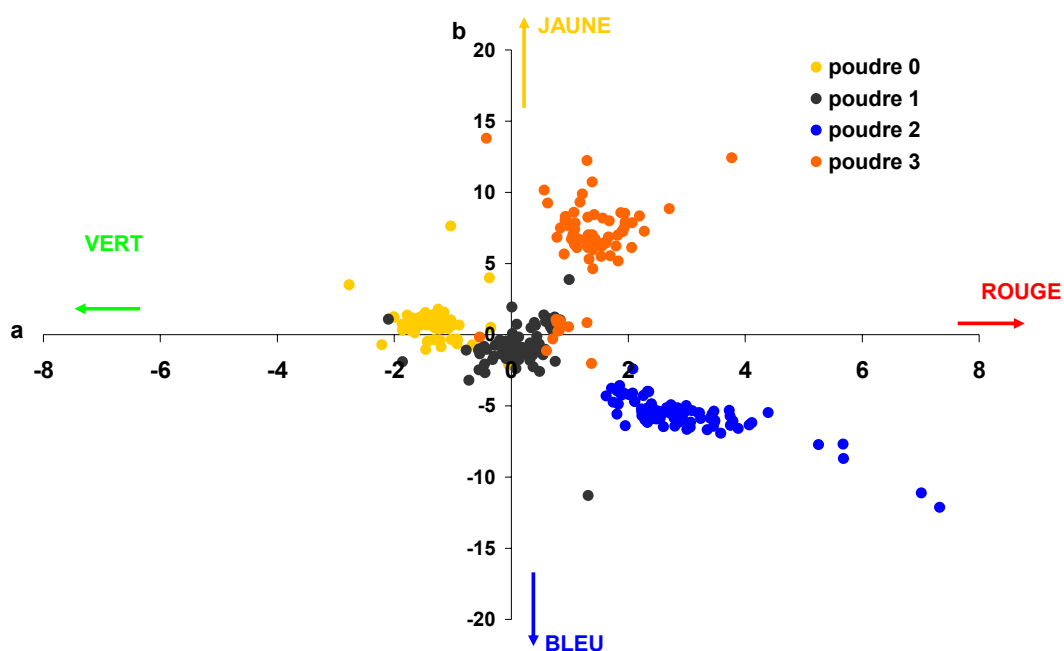


Figure 182 : Coordonnées des quatre poudres étudiées à tous les angles de mesure dans le plan a^*b^*

Une telle représentation n'étant pas forcément très visuellement parlante, nous avons décidé de changer de base et de représenter les réponses angulaires des poudres dans l'espace colorimétrique *HSL*. Ce système est plus adapté à l'affichage des couleurs. Pour cette raison, nous l'utiliserons pour afficher les variations angulaires de couleurs sous forme de bandes de couleurs composées pour chaque angle de mesure d'un rectangle élémentaire de la couleur dont on voit la poudre, selon cet angle d'observation. Nous ne présenterons pas les données numériques, mais uniquement leur affichage sous forme de couleurs, Figure 183.

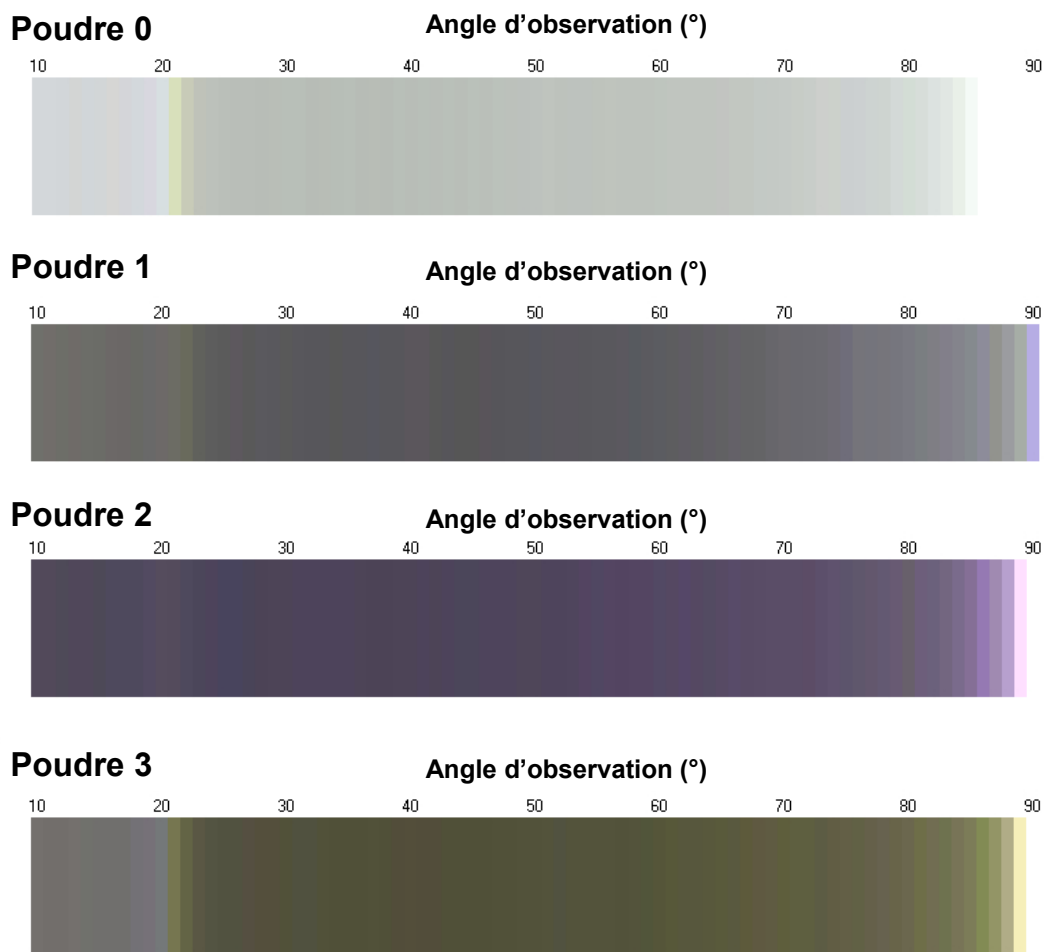


Figure 183 : Représentation des variations angulaires de couleurs des poudres calculées d'après les indicatrices présentées Figure 180

Le travail effectué sur la caractérisation angulaire des poudres nous a permis de valider une procédure fiable de caractérisation optique de composants colorés ou à effets visuels. Ceci étant fait, nous avons pu le mettre en œuvre dans le cadre d'une deuxième application dont le but était de caractériser des variations temporelles de couleur.

II. Caractérisation de poudres photochromiques

Nous avons, dans ce cadre travaillé également en partenariat avec la société Marion Technologies dont l'activité est essentiellement tournée vers la formulation, la mise au point et la production « sur mesure » de poudres nanostructurées à usage industriel avec des applications dans les cosmétiques. Marion Technologies développait une gamme de fonds de teint à effets photochromiques, leur principe étant de foncer après une exposition aux ultraviolets puis de s'éclaircir en l'absence de rayonnement UV, le but étant de pouvoir garder un teint comparable à l'intérieur et à l'extérieur.

Les poudres développées sont à base de TiO_2 dopées avec un élément métallique et différent par leur température de traitement et leur concentration en dopant. Le but de l'étude était de comparer les effets photochromiques de différentes poudres, il était nécessaire pour cela d'être capable de quantifier les couleurs des poudres suite à une exposition aux ultraviolets. Cette étude est décrite dans la publication jointe.

Optical characterization of photochromic effect

Myriam Zerrad ^{a,*}, Carole Deumié ^a, Sébastien Rul ^b, Eugénie Degbé ^b

^a *Institut Fresnel, UMR CNRSTIC 6133, Ecole Centrale Marseille, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, Université de Provence Aix-Marseille I, Domaine Universitaire de St Jérôme, 13397 Marseille Cedex 20, France*

^b *Marion Technologies, Cap Delta – Parc Technologique Delta Sud, 09120 VARILHES, France*

Received 9 June 2006; received in revised form 11 January 2007; accepted 17 January 2007

Abstract

Photochromic powders are powders whose color is sensitive to UV irradiation. When such a powder is exposed to the sunlight or any other UV rays, it becomes darker and then looks back progressively to its initial color. An optical method has been set up in order to quantify these colors variations. We can then quantify the variations in the colorimetric space, and the time response of the coming back phenomenon.

© 2007 Elsevier B.V. All rights reserved.

Keywords: Light scattering; Optical characterization; Color characterization

1. Introduction

When a conventional make-up foundation looks natural indoors, it looks too white outdoors, and at the contrary, if it looks natural outdoors, it seems too dark indoors. To solve this problem, some new materials which have the property to change the foundation darkness sensitive to the sunlight have been developed. These materials are photochromic powders. The society Marion Technologies is working on the formulation, settling and production of photochromic powders and has developed several powders which presented a photochromic effect. Whereas the human eye can see if there is a photochromic effect on a powder, it was necessary to be able to differentiate the photochromic effects obtained with different powders. The matter was how to characterize this effect objectively, precisely and on a repeatable way. Photochromic materials have already been studied by differ-

ent ways, on a chemical point of view [1]. Spectrometric studies can be made with thin films coatings [2–4] and the refractive index of the material [5] can be deduced from reflectance and transmittance measurements. Other studies of photochromic effect are based on measuring the absorption of photochromic glasses or thin films [6], but there do not allow the quantification of temporal color variations.

If these methods allow the determination of the photochromic material optical properties, they do not give any direct information about the component color. Moreover, using such a method, we cannot characterize materials on a powder form. But, we saw in the past [7,8] light scattering measurements can provide optical properties of powder materials. That is why we chose to characterize photochromic powders using scattering techniques.

So that, the Fresnel Institute developed an optical set up in order to quantify the color variations due to a photochromic effect. To test and validate our method, we used it to characterize different powders formulated by Marion Technologies. These powders have all the same TiO₂ matrix and are doped with the same metallic element, but they differ by their doping concentration and treatment temperature.

* Corresponding author. Tel.: +33 491288072; fax: +33 491288067.

E-mail addresses: myriam.zerrad@fresnel.fr (M. Zerrad), rul@mariontechnologies.com (S. Rul).

URLs: www.fresnel.fr (M. Zerrad), <http://www.mariontechnologies.com> (S. Rul).

The powders can be separated in two groups:

A first group in which powders have the same doping concentration but a temperature treatment growing from 700 °C to 1200 °C.

A second group in which powders have the same treatment temperature and differ by their doping concentration (from X to 5X).

In order to simplify the presentation, we chose to show in this paper the analysis relative to three representative powders:

Powder 1 which does not present any visible photochromic effect (group 1).

Powder 2 which present a moderate photochromic effect (intersection of groups 1 and 2).

Powder 3 with a strong photochromic effect (group 2).

Each of these powders presents a specific color variation when it is exposed to UV and we want to compare these color variations. In this aim we can characterize the reflected and the scattered light as a function of the angle, the wavelength, and the time. Experimental characterizations of these powders are presented in this paper. Numerous data are given by measurement, and we show the opportunity of the results description in colorimetric spaces or thanks to the introduction of specific coefficients.

2. Spectral and angular scattering measurements

Light scattering phenomenons are usually studied at laboratory in order to characterize optical components [9–13]. In this aim, different experimental set up as scatterometers have been involved at the laboratory and particularly a laser scatterometer and a white source scatterometer. The laser scatterometer [14,15] is able to measure angular scattering within a 7 decades range in the visible, with respect to a lambertian sample. Several laser rays are available from UV (325 nm) to MIR (10.6 μm), and 10 axis are fully computer controlled. Spectral and angular scattering levels can also be measured with the white source scatterometer [16]. Its 1 nm spectral resolution in the visible range allows a significant spectral characterization. We could thanks to this equipment realize a study about the optical characterization of several photochromic powders presented before. When such a powder is exposed to the sunlight or any other UV rays, it becomes darker and then looks back progressively to its initial color. These color variations have to be quantified. So, we set up a method which allows us to quantify and visualize them thanks to scattering measurements, and then to compare the behavior of the different powders. This method is described in the following parts.

2.1. The experimental set up

First, we will check the visual effect is a result of the light scattered and there is no contribution of reflected light in a particular direction.

To be measured, the powders have been firmly packed, and then have been characterized with a spectral scatterometer involved at the laboratory [16]. This optical device (Fig. 1) is used to measure the bidimensional reflectance distribution function (BRDF) of any sample from 400 to 950 nm. With such a set up, we can get both spectral and angular distribution of the scattered light.

The light source used for the scattering measurement is a tungsten halogen white light source which illumination spectrum is from 400 to 950 nm, so, it does not provide any UV irradiation on the sample. The spectrometer allows a spectral study of the scattered light in this same spectral range with a 1 nm accuracy.

In the usual configuration of the setup, the sample has to be placed in a vertical plane. In this aim, we have to work with firmly packed powders. We have shown in a previous work [7] the compaction of most of high scattering powders does not change the light scattering response.

2.2. Measurements

We first measure the angular light scattering response of one of these powders to a white light without any UV illumination (the angular response at $\lambda = 633 \text{ nm}$ is given Fig. 2). We can remark there is no reflected, but only scattered light. That is to say that the light in the reflected half space is angularly uniformly distributed and does not present any specular direction. The incidence angle of the illumination beam is fixed during the measurements. Results are similar for all the powders tested. That shows us the whole visual effect comes from the light scattered by the powder.

So, the first part of our work will be to quantify the angular, spectral and temporal scattering variations of the powder. And we will later join these scattering measurements to the color variations.

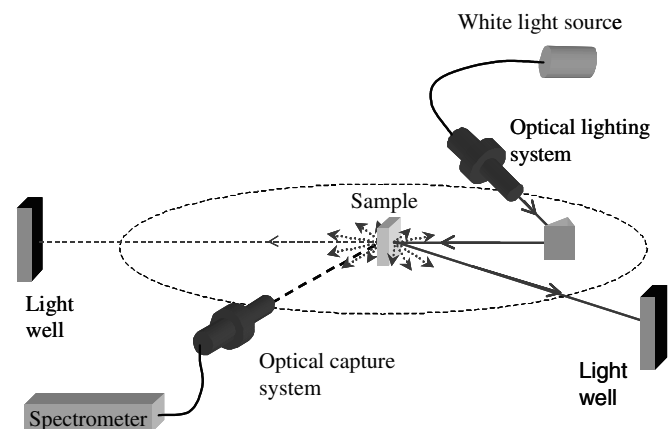


Fig. 1. Diagram of the experimental set up of the spectral scatterometer . Light wells permit to eliminate reflected and transmitted beam. Optical lighting and capture system permit the control of the illumination of the sample and the collection of the scattered light [16].

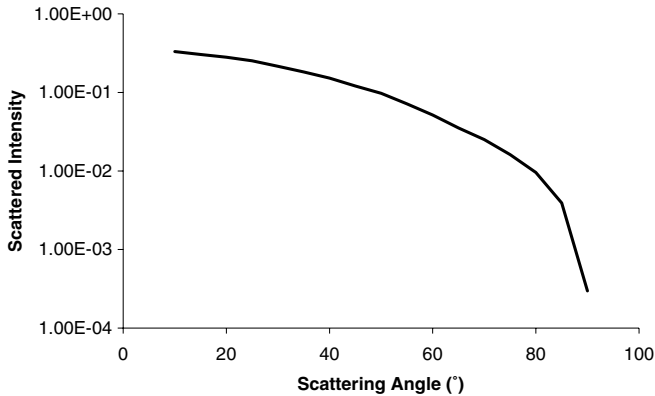


Fig. 2. Angular response at $\lambda = 633$ nm to a white light illumination. The scattering angle is represented relatively to the sample normal. The illumination beam is normal to the sample.

We can see Fig. 3 the both spectral and angular scattered response of the powder for a white light illumination.

The experimental setup developed at lab permits to reach a complete characterization of the angular and spectral variations of light scattering. However, the next stage of the study will be to quantify the temporal evolution of all these curves, but, such a processing will produce a high quantity of data. In order to simplify the results exploitation, a colorimetric space may be chosen to reduce the data numbers useful for the color description. This is described in the following paragraph.

2.3. Colorimetric coordinates

Our first aim was to quantify the color variations induced by an UV irradiation on each powder. In a first time, we can quantify the spectral variations of light scattering. It is then possible to connect these results to color behaviors thanks to the definition of colorimetric coordinates, in normalized spaces [17–20].

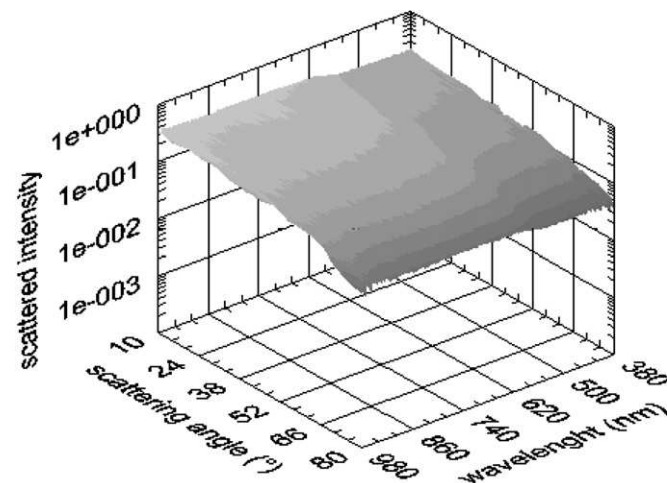


Fig. 3. Spectral and angular characterization of a powder sample.

A set of three colorimetric coordinates can be associated to each spectral scattered intensity measurement. We chose to represent these colorimetric coordinates in the $L^*a^*b^*$ representation space [17–20].

L^* is the luminance or brightness. It is varying from 0 (black) to 100 (white), and it is the colorimetric coordinate the human eye is more sensitive to. In other words, minor luminance variations can be detected by the human eye.

a^* and b^* are constituting the color hue they are varying from -60 to 60 , and the human vision is less sensitive to minor hue variations.

$$S = \sqrt{a^{*2} + b^{*2}} \text{ is the saturation.}$$

These three coordinates L^* , a^* and b^* have been calculated from each scattering measurements by this way:

First, the colorimetric coordinates are calculated in the CIE XYZ colorimetric space via the eye ponderation functions $\bar{x}(\lambda)$, $\bar{y}(\lambda)$ and $\bar{z}(\lambda)$. If, $I(\theta, \lambda)$ is the scattered intensity, we can write:

$$\begin{aligned} X(\theta) &= \int x(\lambda)I(\lambda, \theta)d\lambda \\ Y(\theta) &= \int y(\lambda)I(\lambda, \theta)d\lambda \\ Z(\theta) &= \int z(\lambda)I(\lambda, \theta)d\lambda \end{aligned} \quad (1)$$

Then, $L^*a^*b^*$ coordinates are usually given by [17,19,20]:

$$\begin{aligned} L^* &= 116 \left(\frac{Y}{Y_0} \right)^{\frac{1}{3}} - 16 \quad \text{for } \frac{Y}{Y_0} > 0.008856 \\ L^* &= 903.3 \frac{Y}{Y_0} \quad \text{for } \frac{Y}{Y_0} \leq 0.008856 \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} a^* &= 500 \left(f \left(\frac{X}{X_0} \right) - f \left(\frac{Y}{Y_0} \right) \right) \\ b^* &= 200 \left(f \left(\frac{Y}{Y_0} \right) - f \left(\frac{Z}{Z_0} \right) \right) \end{aligned} \quad (3)$$

with:

$$\begin{aligned} f(t) &= \sqrt[3]{t} \quad \text{for } t > 0.008856 \\ f(t) &= 7.7787t + 16/116 \quad \text{for } t \leq 0.008856 \end{aligned} \quad (4)$$

where X_0 , Y_0 and Z_0 the reference white coordinates.

L^* , a^* and b^* coordinates have been calculated from measurements given Figs. 2 and 3, and are plotted on Fig. 4 as a function of the scattering angle.

3. Photochromic effect quantification

The scattering measurements we can perform give us both spectral and angular curves as shown in Fig. 3. The color behavior is commented in Section 3.3. Still now, we have presented angular variations. But to simplify again the data processing, we can notice on Figs. 2 and 3 the angular response of the powder is quasi Lambertian, whatever the wavelength in the visible range. There is no variation of the visual effect as a function of the scattering angle. So, for the leaving study, the measurements can be done for

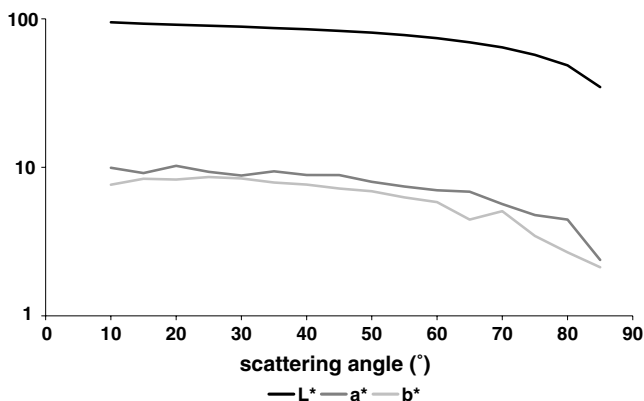


Fig. 4. L^* , a^* , b^* coordinates for a powder sample as a function of the scattering angle.

a single scattering angle. We chose the angular position where the intensity is the highest on graphs given Figs. 2 and 3. We measured the light scattered by the sample near its normal line with a 5° incidence as shown in Fig. 5. Now, we will only consider the spectral scattering of the powder at this angle.

3.1. Observation

By visualization of the sample, we made the following observation of the photochromic effect: when we illuminated a powder sample with a UV source, we first observe a color variation of the sample, then, we can see the powder looks back progressively to its initial color. So, we can say this phenomenon follows a temporal law. Knowing that, we decided to quantify the temporal dependency of the scattered intensity.

So, we want to quantify how the powder colors are changing after an UV irradiation. In order to saturate the photochromic effect, we illuminated the sample with an UV source for 15 min. The emission spectrum of the UV source is centered at 350 nm with a 10 nm spectrum width. Then, we will perform the spectral scattering measurement described Fig. 5 on each powder sample before and after a 15 min UV irradiation and then with different delays after the exposition. The curves are shown in Fig. 6.

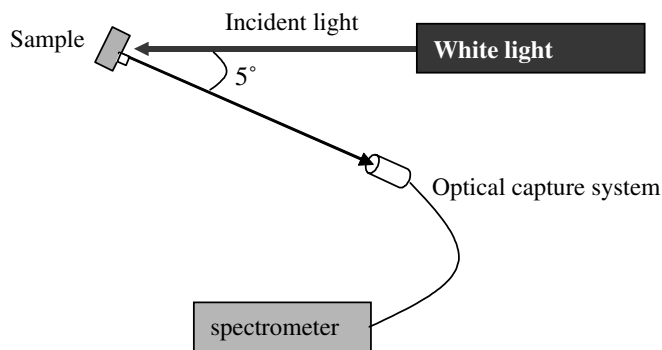


Fig. 5. Measurement configuration.

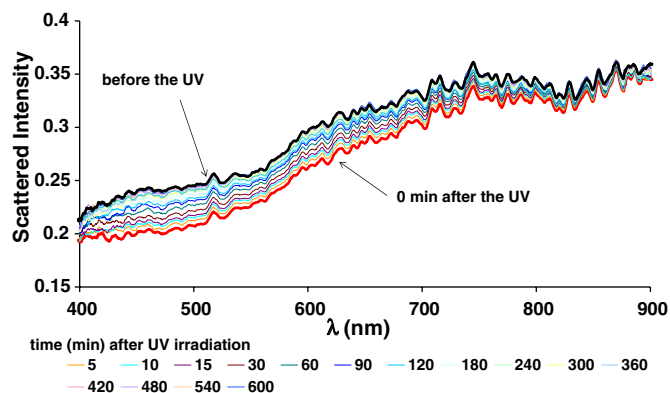


Fig. 6. Scattered intensity at different times after UV exposure – powder 3. (For interpretation of the references in colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

We can see there is an intensity gap we cannot deny, the scattered light intensity measured after the exposure is less than the one measured before. That confirms the visual feeling that the powders are darker after the UV irradiation whereas the hue seems keeping the same. Similar curves could be obtained for all the studied powders.

Moreover the highest intensity is the one before the UV irradiation, the lowest one is the intensity measured right after the exposition. The intermediary curves are measured at different time after the UV exposition. Moreover, we can notice all the curves have quite the same form, they are just vertically shifted with shift depending on the wavelength, and they approach the initial value. In other words, longer the time after exposition is, closer to its initial value the intensity level is. That means the observed phenomenon can be produced by substrate absorption level variations and is reversible. So, the temporal variations of the scattered intensity can be measured and quantified.

3.2. Quantification of the temporal variations

To have a different approach of this phenomenon, the intensity scattered after an UV exposition has been plotted on Fig. 7 as a function of time for different wavelengths

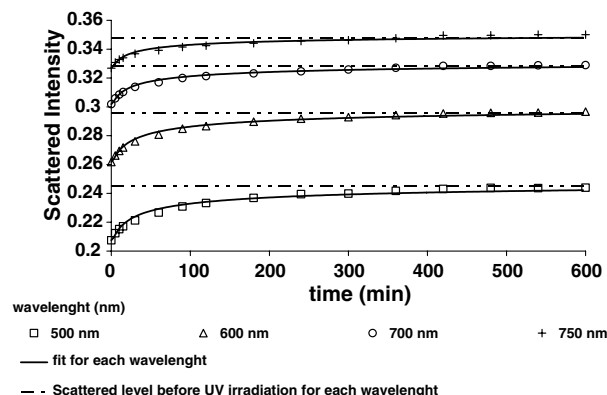


Fig. 7. Measurement and fit of temporal dependency of scattered intensity – powder 3.

and compared with the intensity before the exposition for these same wavelengths.

Once again, we can see the intensity is the lowest immediately after the irradiation and increases progressively approaching the level it got before exposition.

An other point must be noticed. All the intensity attenuations seem following the same law whatever the wavelength. So, we decided to fit the scattered intensity temporal evolution.

For each wavelength, we decided to fit the intensity with a law which is of the form:

$$I_{\lambda}(t) = A_{\lambda} + B_{\lambda}e^{-C_{\lambda}/\sqrt{t}} \tag{5}$$

with A_{λ} , B_{λ} and C_{λ} varying as a function of the wavelength λ for each powder. The exponential part of the law permits to describe the rapidity of the relaxation to initial value, and the constant A_{λ} permits to describe the level. We can then compare the variations of A_{λ} , B_{λ} and C_{λ} for each powder in spite of numerous curves.

We must precise our aim was not to simulate any physical phenomenon, but only to minimize the parameters number in order to make easier the comparison between different powders. That is why we choose the more simple mathematical law which offer the best fit of the phenomenon without any pretension of describing a physical reality.

Fits are compared with measurements for a few wavelengths on Fig. 7, and we can see fitting and measurements curves are matching.

We can then compare the temporal evolution of the photochromic powder. A_{λ} , B_{λ} , and C_{λ} coefficients are plotted as a function of the wavelength on Figs. 8–10 for the powders studied. In the case of powder number 1, as the powder does not present any temporal variation, B_{λ} equals 0 and C_{λ} has no sense.

We can see spectral variations of each parameter are characteristic of each powder.

Now, the temporal evolution of the scattered intensity is quantified for each powder, so, we can study the temporal evolution of the colorimetric coordinates of each one of the samples in order to connect with the temporal behavior of a photochromic effect.

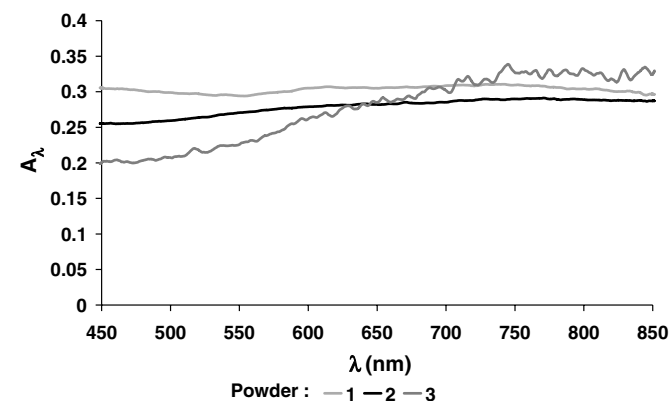


Fig. 8. A_{λ} parameter as a function of λ for three powders.

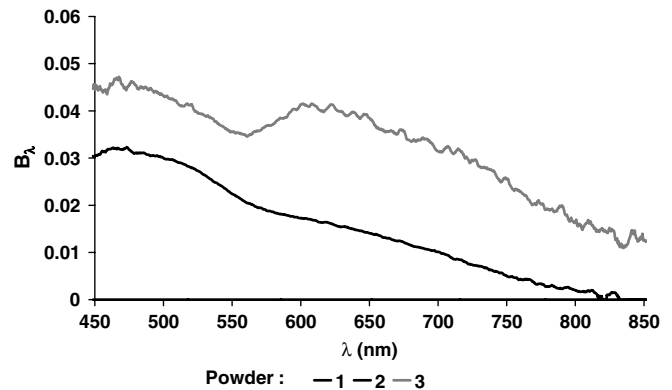


Fig. 9. B_{λ} factor as a function of λ for three powders ($B_{\lambda} = 0$ for powder 1).

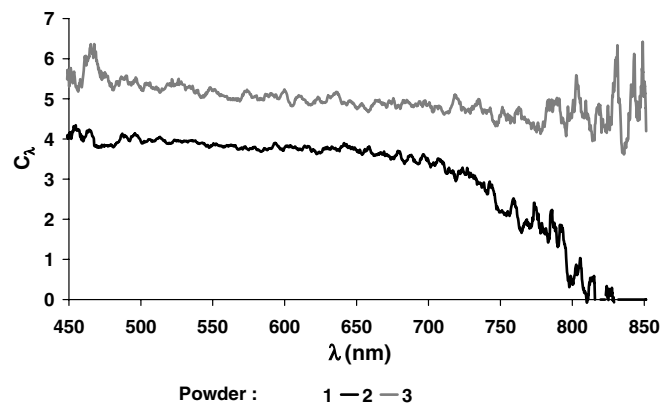


Fig. 10. C_{λ} factor as a function of λ for three powders (C_{λ} has no sense for powder 1).

3.3. Colorimetric coordinates

The colorimetric coordinates L^* , a^* and b^* of the powders before and right after the UV exposition can be calculated from scattering measurements given Fig. 6 and by the application of formulae (2)–(4). We can then study their temporal evolution. These coordinates are given

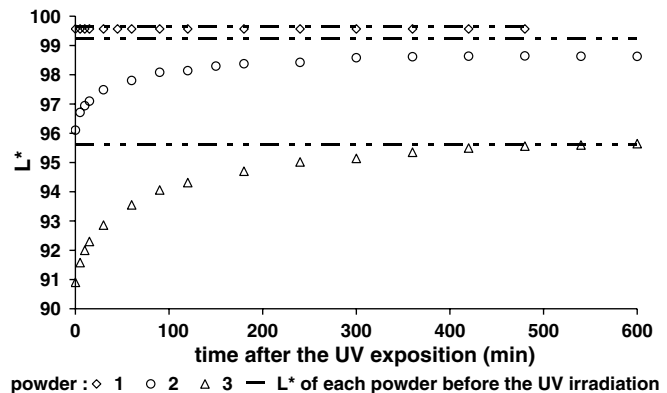


Fig. 11. Temporal dependency of colorimetric coordinate L^* for different powders.

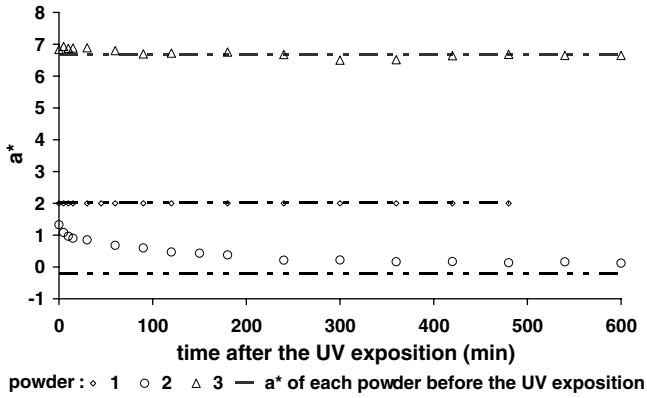


Fig. 12. Temporal dependency of Colorimetric coordinate a^* for different powders.

Figs. 11–13 and we can see the L^* coordinate is decreasing after the UV exposition for powders 2 and 3. The human eye is very sensitive to L^* variations, so this decrease traduces the fact the powder looks darker after the UV irradiation (see Fig. 14).

That shows us, whereas the colors are different, the phenomenon is the same for all the powders, except for num-

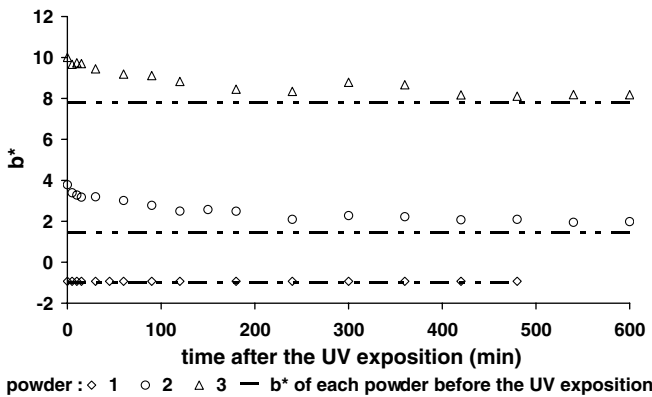


Fig. 13. Temporal dependency of colorimetric coordinate b^* for different powders.

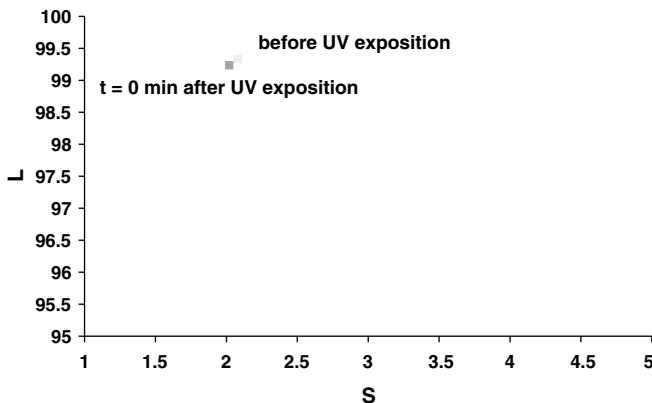


Fig. 14. Temporal variations of luminance L^* after UV irradiation for powder 1.

ber 1. So that, we can notice for each powder, the three coordinates are following a law which has the same form. In the case of the first powder, the colorimetric coordinates does not vary as a function of time. Moreover, we can see the highest level gap for the luminance L^* is with powder 3. That means this powder is the one for which the photochromic effect is maximum.

On Figs. 15 and 16, we can see, for the same samples, the luminance L^* as a function of the saturation $S = \sqrt{a^{*2} + b^{*2}}$ at different times after the UV exposition. We can see L^* value is lower after the UV illumination than before and grows up progressively approaching the initial value. We have here the same evolution than with the scattered intensities. Once again that confirms the visual feeling we have that the powder is darker after the UV illumination and comes back progressively to its initial color becoming more light-colored.

Moreover, to have a better visualization of the color variation, we can see, Figs. 17–19, the colors displayed from the $L^*a^*b^*$ coordinates shown on the previous part. On these figures, the top line is the color the powder had before the UV exposition, and on the bottom line, we can see the evolution of the sample color at different times

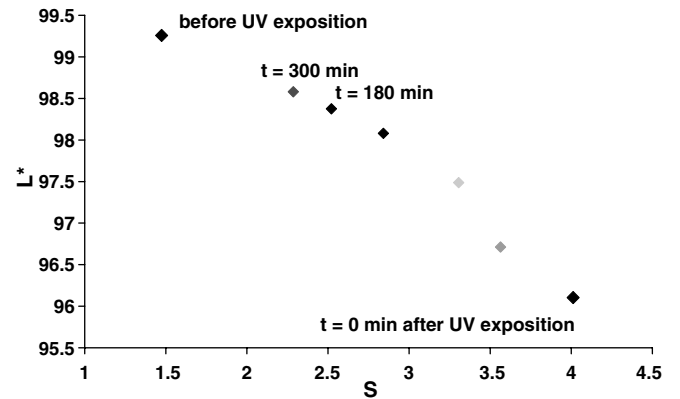


Fig. 15. Temporal variations of luminance L^* after UV irradiation for powder 2.

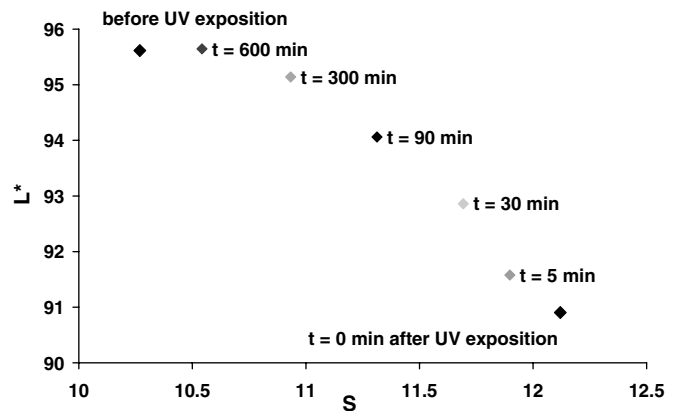


Fig. 16. Temporal variations of luminance L^* after UV irradiation for powder 3.

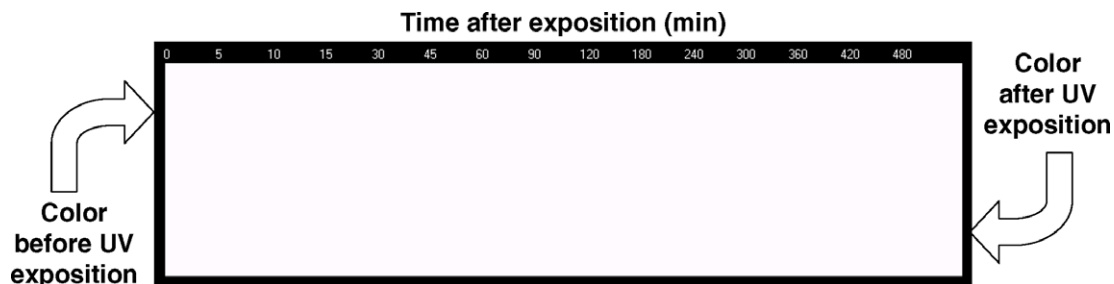


Fig. 17. Temporal color variations of sample 1 after a 15 min UV exposition. (For interpretation of the references in colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

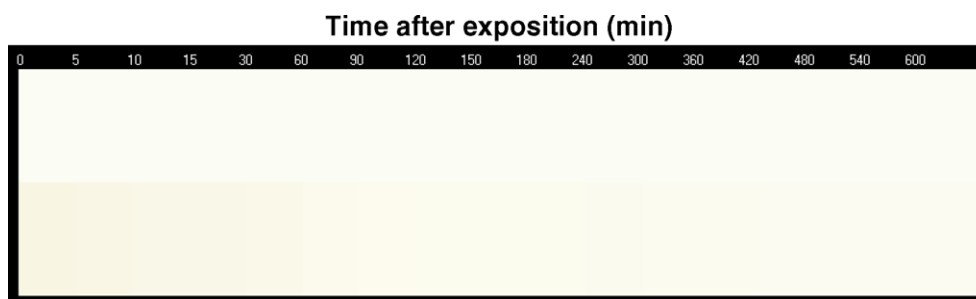


Fig. 18. Temporal color variations of sample 2 after a 15 min UV exposition. (For interpretation of the references in colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

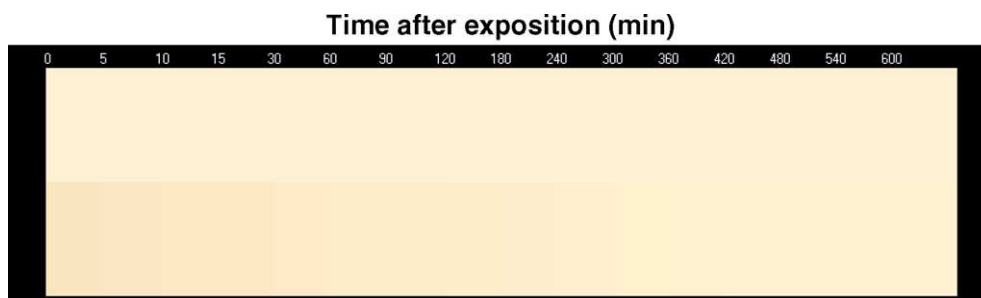


Fig. 19. Temporal color variations of sample 3 after a 15 min UV exposition. (For interpretation of the references in colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

after the UV exposition. The delay after the UV exposition is given above the color lines in minutes. As expected, we can notice a visible color variation for samples 2 and 3, but not for sample 1.

We can see once again the powder is darker after the UV illumination and looks back progressively to its initial color.

4. Conclusion

To conclude, our optical characterization method allowed quantifying objectively the photochromic effect of different powders. So that, we could determinate within our powders, number 3 is the more reactive to the UV irradiation. Such a result could be used by Marion Technologies to see how the photochromic effect can be influenced by the process parameters, so it permitted to adjust the syn-

thesis parameters in order to optimise the photochromic effect.

References

- [1] J. Liu, Q. Zhang, J. Zhang, *Mater. Lett.*, 59 2531.
- [2] T.F. Tan, P.L. Chen, H.M. Huang, J.B. Meng, *Tetrahedron* 61 (2005) 8192.
- [3] A. Tücks, H.P. Beck, *J. Solid State Chem.* 178 (2005) 1145.
- [4] R. Jansson, S. Zangoie, T. Kugler, H. Arwin, *J. Phys. Chem. Solids* 62 (2001) 1219.
- [5] K. Xianjun et al., *Opt. Mater.* (2006), doi:10.1016/j.optmat.2006.06.019.
- [6] M. Nalin, G. Poirier, S.J.L. Ribeiro, Y. Messaddeq, E.J. Carvalho, L. Cescato, *J. Non-Cryst. Solids*, 352 3535.
- [7] N. Destouches, C. Deumie, H. Giovannini, C. Amra, *Appl. Opt.* 43 (2004) 756.
- [8] C. Deumie, N. Destouches, M. Cathelinaud, G. Albrand, C. Cassagne, C. Amra, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* 3738 (1999) 417.
- [9] C. Amra, *J. Opt.* 21 (1990) 83.
- [10] C. Amra, *Appl. Opt.* 32 (1993) 5481.

- [11] C. Amra, *J. Opt. Soc. Am. A Opt. Image Sci.* 10 (1993) 365.
- [12] C. Amra, *J. Opt. Soc. Am. A Opt. Image Sci.* 11 (1994) 211.
- [13] C. Amra, *J. Opt. Soc. Am. A Opt. Image Sci.* 11 (1994) 197.
- [14] C. Amra, C. Grezes-Besset, P. Roche, E. Pelletier, *Appl. Opt.* 28 (1989) 2723.
- [15] C. Amra, D. Torricini, P. Roche, *Appl. Opt.* 32 (1993) 5462.
- [16] M. Lequime, L. Abel, C. Deumié, *SPIE* 5250 (February) (2004) 271.
- [17] CVRL: Colour and Vision Research Laboratories, <<http://www-cvrl.ucsd.edu/index.htm>>.
- [18] CIE, *International Lighting Vocabulary*, vol. N. 17.4, (1987).
- [19] D.L. MacAdam, *Color Measurement, theme and variation*, *Optical Sciences*, vol. second revised ed., (1985).
- [20] G. Wyszecki, W.S. Stiles, *Color Science: Concepts and Methods Quantitative Data and Formulae*, second ed., John Wiley & sons, New York, 1982.

Conclusion

Nous venons de présenter une procédure permettant, à partir d'une mesure de diffusion lumineuse, la quantification des variations angulaires de couleurs de composants colorés.

Cet outil pourra désormais être utilisé pour caractériser les poudres interférentielles développées au laboratoire, et par la suite, comparer les effets visuels produits par différents empilements multicouches concentriques. Disposer d'un tel outil de caractérisation et pouvoir faire les caractérisations de manière rapide et comparable permettra d'affiner la procédure d'évaporation utilisée et ainsi faire évoluer l'activité « Microsphères multicouches ».

Conclusion générale

L'ensemble du travail présenté dans ce mémoire de thèse a suivi une ligne directrice qui est le développement de nouveaux outils permettant la caractérisation de différents types de composants par diffusion lumineuse.

Nous avons dans un premier temps pu mettre en œuvre deux méthodes de caractérisation des substrats transparents par diffusion lumineuse et les valider par une analyse multi-échelles. La première de ces méthodes repose sur un principe de « filtrage d'étendue » et la deuxième sur un « retournement » des substrats. Ces techniques ont pu être appliquées dans le cadre d'un projet européen qui avait pour but la réalisation d'un laser qui est désormais commercialisé.

Dans un second temps, nous avons conçu et réalisé un nouvel instrument permettant une mesure de la *BRDF* d'un échantillon sous différentes résolutions en une seule acquisition. Cet analyseur optique de surface permet également de dissocier la contribution de la rugosité intrinsèque de l'échantillon étudié de celle de défauts localisés sur la surface. Il est ainsi possible d'avoir une information non seulement sur la surface propre de l'échantillon, mais aussi sur les caractéristiques des défauts en présence. Au vu des résultats prometteurs donnés par ce prototype, ce travail sera poursuivi et différentes évolutions possibles sont déjà envisagées.

La troisième partie de ce travail a porté sur la mise au point d'une procédure de caractérisation d'échantillons colorés. L'objectif était de pouvoir quantifier les variations angulaires ou temporelles de couleurs de différents types de composants à effets visuels. Cette procédure va désormais être mise en œuvre pour caractériser les poudres interférentielles réalisées au laboratoire. Elle permettra l'affinement des procédures de dépôts utilisées et contribuera ainsi au développement de l'activité « Microsphères multicouches ».

Annexes

***Calcul du taux de
recouvrement***

On considère le cône maximal de reprise de la fibre optique utilisée comme récepteur. L'intersection de ce cône avec la face avant (ou face 0) de l'échantillon est l'ellipse ξ_1 de grand axe J_1J_2 , de petit axe h_1 et de surface Σ_1 . De la même manière, l'intersection de ce cône avec la face arrière (ou face 1) de l'échantillon est l'ellipse ξ_2 de grand axe E_1E_2 , de petit axe h_2 et de surface Σ_2 .

Soient C le centre de la fibre optique de reprise, F_1 et F_2 les deux extrémités du diamètre de la fibre appartenant au plan (J_1J_2C) . Soient Δ et Δ_1 , les normales aux deux faces de l'échantillon passant par respectivement par F_1 et F_2 . Tous ces éléments sont positionnés Figure 184.

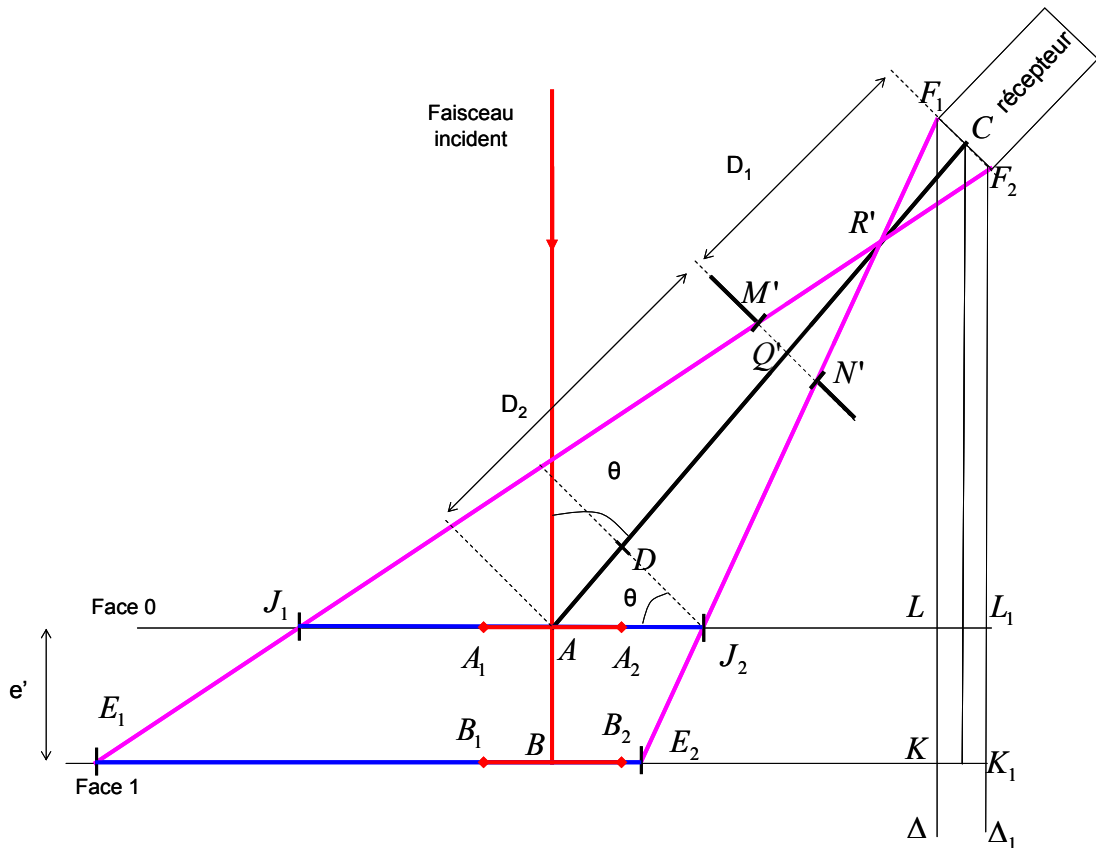


Figure 184 : Points nécessaires au calcul des grands axes des ellipses

➤ **Face 0**

Nous allons, dans un premier temps, chercher à connaître les caractéristiques de l'ellipse ξ_1 , c'est à dire J_1J_2 et h_1 dans le but de connaître la surface $S_1 \cap \Sigma_1$.

ξ_1 est une l'ellipse de grand axe J_1J_2 .

Le projeté orthogonal de J_2 sur Δ est L , et celui de J_1 sur Δ_1 est L_1 .

On a :

$$\overline{J_1J_2} = \overline{AJ_2} - \overline{AJ_1} \quad (244)$$

Dans un premier temps, on peut voir d'après le schéma donné Figure 184 qu'on a :

$$\overline{AJ_2} = \overline{AL} + \overline{LJ_2} \quad (245)$$

On considère le point G qui est le projeté orthogonal de C sur Δ , (cf Figure 185).

$$\begin{aligned}
 \overline{LA} &= \overline{LG} \tan \theta - \overline{CG} \\
 &= \overline{LG} \tan \theta - (-a \cos \theta) \\
 &= -(D_1 + D_2) \cos \theta \tan \theta + a \cos \theta \\
 \overline{AL} &= (D_1 + D_2) \cos \theta \tan \theta - a \cos \theta \\
 &= (D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta
 \end{aligned}
 \tag{246}$$

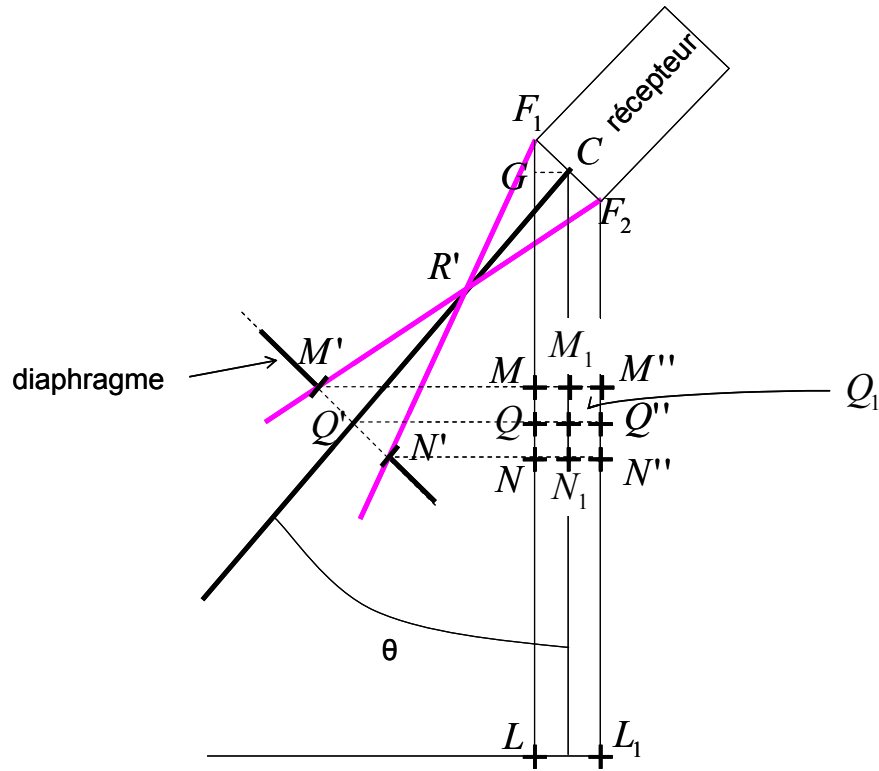


Figure 185 : Ensemble diaphragme-récepteur

Dans un deuxième temps, nous avons :

$$\frac{\overline{J_2L}}{\overline{N'N}} = \frac{\overline{F_1L}}{\overline{F_1N}}
 \tag{247}$$

$$\overline{LJ_2} = \overline{N'N} \frac{\overline{LF_1}}{\overline{F_1N}}
 \tag{248}$$

en outre,

$$\begin{aligned}
 \overline{F_1L} &= \overline{F_1G} + \overline{GL} \\
 &= a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta
 \end{aligned}
 \tag{249}$$

$$\begin{aligned}
\overline{N'N} &= \overline{PQ} \\
&= \overline{Q'Q_1} - \overline{Q'P} - \overline{QQ_1} \\
&= D_1 \sin \theta - t \cos \theta - a \cos \theta \\
&= D_1 \sin \theta - (a+t) \cos \theta
\end{aligned} \tag{250}$$

$$\begin{aligned}
\overline{F_1N} &= \overline{F_1G} + \overline{GN} \\
&= a \sin \theta + \overline{GQ} + \overline{QN} \\
&= a \sin \theta + D_1 \cos \theta + t \sin \theta \\
&= D_1 \cos \theta + (a+t) \sin \theta
\end{aligned} \tag{251}$$

nous avons alors :

$$\begin{aligned}
\overline{J_2L} &= \overline{N'N} \frac{\overline{F_1L}}{\overline{F_1N}} \\
&= (D_1 \sin \theta - (a+t) \cos \theta) \frac{(a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta)}{D_1 \cos \theta + (a+t) \sin \theta}
\end{aligned} \tag{252}$$

ce qui nous donne $\overline{AJ_2}$:

$$\begin{aligned}
\overline{AJ_2} &= ((D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta) \\
&\quad - (D_1 \sin \theta - (a+t) \cos \theta) \frac{(a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta)}{D_1 \cos \theta + (a+t) \sin \theta}
\end{aligned} \tag{253}$$

Dans un deuxième temps, nous avons :

$$\overline{AJ_1} = \overline{AL_1} + \overline{L_1J_1} \tag{254}$$

qui nous est directement donné par les deux relations:

$$\begin{aligned}
\overline{AL_1} &= \overline{AL} + \overline{LL_1} \\
&= \overline{AL} + 2a \cos \theta
\end{aligned} \tag{255}$$

$$\overline{L_1J_1} = \overline{M''M'} \frac{\overline{F_2L_1}}{\overline{F_2M''}} \tag{256}$$

Les paramètres appelés dans les expressions précédentes sont calculés ici :

$$\begin{aligned}
\overline{MM''} &= -a \cos \theta + \overline{QQ'} - t \cos \theta \\
&= -a \cos \theta - D_1 \sin \theta - (a+t) \cos \theta \\
&= -D_1 \sin \theta - (a+t) \cos \theta
\end{aligned} \tag{257}$$

$$\overline{F_2L_1} = (D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta \tag{258}$$

$$\begin{aligned}
\overline{F_2M''} &= \overline{CQ} - \overline{M_1Q} - a \sin \theta \\
&= D_1 \cos \theta - t \sin \theta - a \sin \theta \\
&= D_1 \cos \theta - (a+t) \sin \theta
\end{aligned} \tag{259}$$

par conséquent :

$$\begin{aligned}
\overline{AJ_1} &= (D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta + 2a \cos \theta \\
&\quad + (D_1 \sin \theta + (a+t) \cos \theta) \frac{(D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta}{D_1 \cos \theta - (a+t) \sin \theta}
\end{aligned} \tag{260}$$

donc, au final, nous avons la dimension du grand axe de l'ellipse ξ_j :

$$\begin{aligned}
\overline{J_1J_2} &= \left[((D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta) - (D_1 \sin \theta - (a+t) \cos \theta) \frac{(a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta)}{D_1 \cos \theta + (a+t) \sin \theta} \right] \\
&\quad - \left[(D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta + 2a \cos \theta + (D_1 \sin \theta + (a+t) \cos \theta) \frac{(D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta}{D_1 \cos \theta - (a+t) \sin \theta} \right]
\end{aligned} \tag{261}$$

Pour ce qui est du petit axe de cette même ellipse :

On définit le point I_j centre de l'ellipse ξ_j qui est donc aussi, par définition le milieu du segment J_1J_2 , on a alors la relation :

$$\overline{AI_1} = \frac{1}{2} (\overline{AJ_1} + \overline{AJ_2}) = \frac{1}{2} \overline{J_1J_2} \tag{262}$$

La droite $(R'A)$ est l'axe de révolution du cône de reprise de la fibre optique. On considère l'intersection du cône perpendiculaire à $(R'A)$ passant par I_j . Cette intersection est un cercle de centre H_j (Figure 186) et de diamètre d_j . H_j est défini comme suit :

$$\begin{aligned}
\overline{R'H_1} &= \overline{R'A} + \overline{AH_1} \\
&= \overline{R'Q'} + \overline{Q'A} + \overline{AH_1} \\
&= \frac{t}{a+t} D_1 + D_2 + \overline{AH_1}
\end{aligned} \tag{263}$$

avec :

$$\overline{AH_1} = \overline{I_1A} \sin \theta \tag{264}$$

et

$$d_1 = t \frac{\overline{R'H_1}}{\overline{R'Q'}} \tag{265}$$

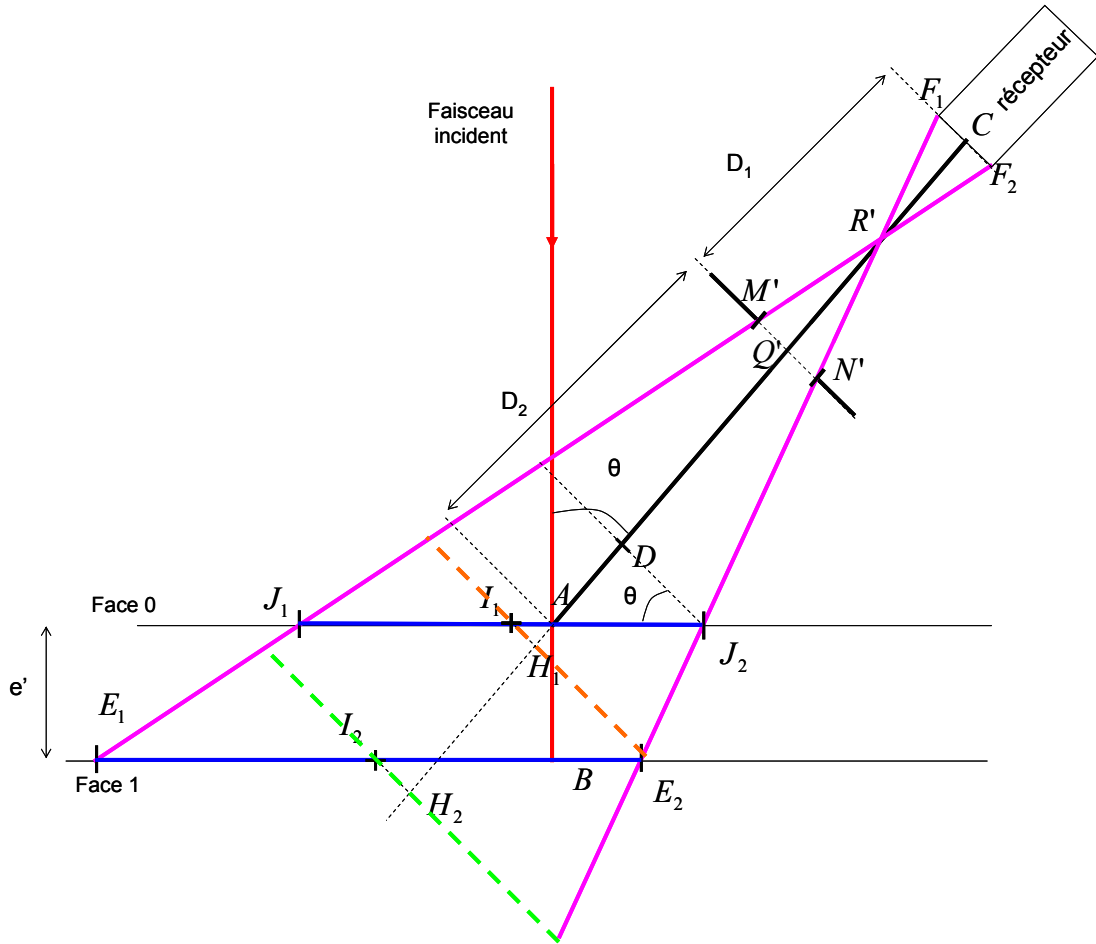


Figure 186 : Points nécessaires au calcul des petits axes des ellipses

Si on considère l'intersection du cercle de centre H_1 et de diamètre d_1 avec la face avant de l'échantillon comme décrit sur le schéma donné **Figure 188**, on peut en déduire la longueur η_1 du petit axe de l'ellipse ξ_1 .

$$h_1 = \sqrt{d_1^2 - 2\overline{I_1 H_1}^2} \quad (266)$$

avec :

$$\overline{I_1 H_1} = \overline{I_1 A} \cos \theta \quad (267)$$

nous avons donc :

$$h_1 = \sqrt{\left(\frac{\frac{t}{a+t} D_1 + D_2 + \frac{1}{2} \overline{J_1 J_2} \sin \theta}{\frac{t}{a+t} D_1} \right)^2 - (\overline{J_1 J_2} \cos \theta)^2}$$

(268)

où la longueur J_1J_2 est donnée équation (261)

➤ **Face 1**

Nous allons maintenant nous intéresser à ce qui se passe sur la face arrière de l'échantillon. Nous cherchons les caractéristiques de l'ellipse ξ_2 , dans le but de connaître la surface $S_2 \cap \Sigma_2$.

ξ_2 est l'ellipse de grand axe E_1E_2 et de petit axe h_2 .

Le projeté orthogonal de E_2 sur Δ est K , et celui de E_1 sur Δ_1 est K_1 ,

Nous voulons :

$$\overline{E_1E_2} = \overline{BE_2} - \overline{BE_1} \quad (269)$$

Pour commencer :

$$\overline{BE_2} = \overline{BK} + \overline{KE_2} \quad (270)$$

avec :

$$\overline{BK} = \overline{AL} \quad (271)$$

$$\begin{aligned} \overline{KE_2} &= -\overline{NN'} \frac{\overline{F_1K}}{\overline{F_1N}} \\ &= \overline{N'N} \frac{\overline{F_1K}}{\overline{F_1N}} \end{aligned} \quad (272)$$

$$\overline{F_1K} = \overline{F_1L} + e' \quad (273)$$

Ce qui nous permet d'écrire :

$$\begin{aligned} \overline{BE_2} &= (D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta \\ &+ [D_1 \sin \theta - (a + t) \cos \theta] \frac{a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta + \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}}{D_1 \cos \theta + (a + t) \sin \theta} \end{aligned}$$

(274)

et ensuite, nous pouvons écrire :

$$\overline{BE_1} = \overline{BK_1} + \overline{K_1E_1} \quad (275)$$

avec :

$$\overline{K_1E_1} = \overline{M''M'} \frac{\overline{F_2K_1}}{\overline{F_2M''}} \quad (276)$$

$$\overline{F_2K_1} = \overline{F_2L_1} + e' \quad (277)$$

$$\overline{BK_1} = \overline{AL_1} \quad (278)$$

ce qui nous donne :

$$\begin{aligned} \overline{BE_1} &= (D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta + 2a \cos \theta \\ &+ [D_1 \sin \theta + (a + t) \cos \theta] \frac{(D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta + \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}}{D_1 \cos \theta - (a + t) \sin \theta} \end{aligned} \quad (279)$$

Nous pouvons donc en déduire la dimension du grand axe E_1E_2 de l'ellipse ξ_2 :

$$\begin{aligned} \overline{E_1E_2} &= (D_1 + D_2) \sin \theta - a \cos \theta \\ &+ [D_1 \sin \theta - (a + t) \cos \theta] \frac{a \sin \theta + (D_1 + D_2) \cos \theta + \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}}{D_1 \cos \theta + (a + t) \sin \theta} \\ &- (D_1 + D_2) \sin \theta + a \cos \theta - 2a \cos \theta \\ &- [D_1 \sin \theta + (a + t) \cos \theta] \frac{(D_1 + D_2) \cos \theta - a \sin \theta + \frac{e \cos \theta}{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}}{D_1 \cos \theta - (a + t) \sin \theta} \end{aligned} \quad (280)$$

Nous allons maintenant nous intéresser au calcul du petit axe h_2 de l'ellipse ξ_2 .

Comme dans le cas de l'ellipse ξ_1 , on définit le point I_2 centre de l'ellipse ξ_2 qui est aussi, par définition le milieu du segment E_1E_2 , on a alors la relation :

$$\overline{BI_2} = \frac{1}{2}(\overline{BE_1} + \overline{BE_2}) = \frac{1}{2}\overline{E_2E_1} \quad (281)$$

La droite $(R'A)$ est l'axe de révolution du cône de reprise de la fibre optique. On considère l'intersection du cône perpendiculaire à $(R'A)$ passant par I_2 . Cette intersection est un cercle de centre H_2 (**Figure 188**) et de diamètre d_2 . H_2 est défini comme suit :

$$\begin{aligned} \overline{R'H_2} &= \overline{R'A} + \overline{AC_2} + \overline{CH_2} \\ &= \frac{t}{a+t} D_1 + D_2 + \frac{e'}{\cos \theta} + \overline{I_2C_2} \sin \theta \end{aligned} \quad (282)$$

avec:

$$\begin{aligned} \overline{I_2C_2} &= \overline{I_2B} + \overline{BC_2} \\ &= \overline{I_2B} - e' \tan \theta \end{aligned} \quad (283)$$

Si on considère l'intersection du cercle de centre H_2 et de diamètre d_2 avec la face avant de l'échantillon comme décrit sur le schéma donné **Figure 188**, on peut en déduire la longueur h_2 du petit axe de l'ellipse ξ_2 .

$$d_2 = t \frac{\overline{R'H_2}}{\overline{R'Q'}} \quad (284)$$

$$h_2 = \sqrt{d_2^2 - 2\overline{H_2 I_2}} \quad (285)$$

avec :

$$\overline{H_2 I_2} = \overline{I_2 C} \cos \theta \quad (286)$$

nous avons donc :

$$h_2 = \sqrt{\left[\frac{\frac{t}{a+t} D_1 + D_2 + \frac{e'}{\cos \theta} + \left(\frac{1}{2} \overline{E_1 E_2} - e' \tan \theta \right) \sin \theta}{\frac{t}{a+t} D_1} \right]^2 - \left[2 \left(\frac{1}{2} \overline{E_1 E_2} - e' \tan \theta \right) \cos \theta \right]^2} \quad (287)$$

où la longueur $E_1 E_2$ est donnée équation (280).

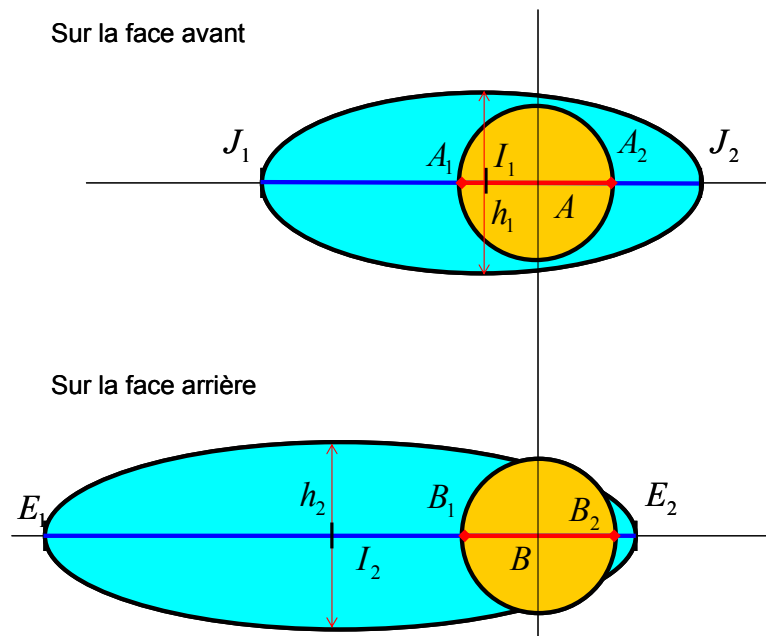


Figure 187 : Ellipses de reprise (bleues) et spot (jaune) sur chaque face de l'échantillon

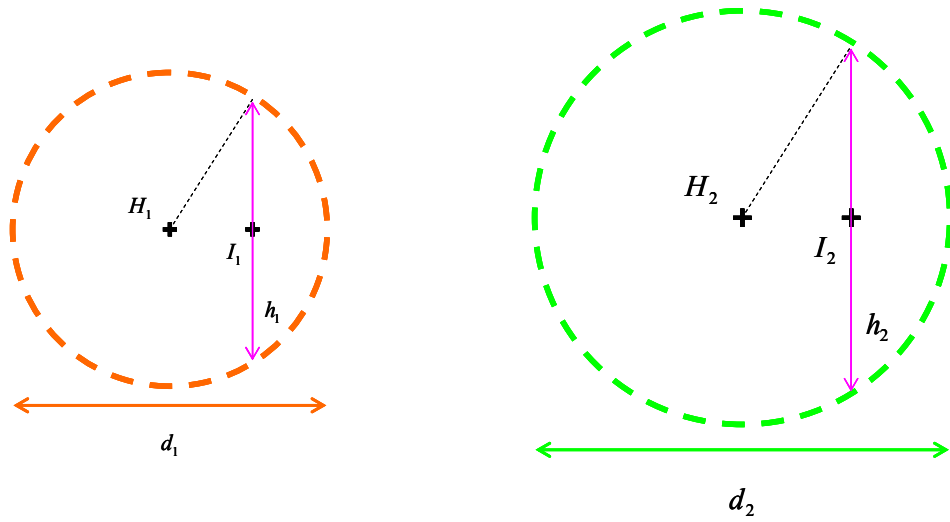


Figure 188 : Coupes perpendiculaires du cône de collection passant par les points I_1 et I_2

Poudres interférentielles :
Première étude

Multidielectric quarter-wave coatings on microspheres: a study in colorimetric space

Philippe Voarino, Myriam Zerrad, Carole Deumié, and Claude Amra

Spectral properties of quarter-wave stacks deposited on microspheres are investigated with Mie theory. These properties are converted into colorimetric spaces to deal with visual applications. An ion-beam-sputtering process is then implemented to produce elementary stacks on the spheres, and the resulting powders are characterized. © 2006 Optical Society of America

OCIS codes: 310.0310, 330.1730, 120.0120, 290.0290.

1. Introduction

For some applications of critical interest, including cosmetics and paints (color effects), furtivity (high-reflectance dielectric particles) and biophotonics (particles with high radiation pressure), and optical communication (end coating of optical fibers), a demand exists for overcoated microspheres to reach specific properties that are either similar to or different from those of the interferential multilayer. In a recent paper¹ we studied the effect of quarter-wave stacks deposited on microspheres with diameters in the range 0.5–15 μm . The spectral properties of these concentric stacks were compared with those of planar multilayers,^{2–4} such as mirrors and filters, in regard to the sphere diameter. We also dealt with the problem of *in situ* optical monitoring based on quarter-wave criteria applied to microconcentric stacks.¹ In this paper we first extend the study of overcoated microspheres to colorimetric space⁵ to deal with visual applications. In a second step an ion-beam-sputtering process is implemented to produce elementary stacks on the spheres, whose spectral and color properties are then analyzed.

2. Mie Theory Applied to Multilayer Spheres

The rigorous approach to characterize electromagnetic fields scattered or diffracted by spheres is that

of Mie theory. We extend Mie theory^{6–12} to concentric multilayers^{13,14} and calculate the angular and spectral properties of overcoated spheres. As usual, the theory does not take into account interactions between microspheres. Numerical results are plotted in Figs 1 and 2 to recall the size-effect characteristic of small uncoated particles with small (10 nm) and large (1 μm) radii. The illumination wavelength is 633 nm, and both polarizations (TE and TM) are investigated. The scattering levels are normalized to the incident power of a 2 mm section laser beam.

To compare the optical properties of these spheres with those of planar multilayers with classical reflection $R(\lambda)$ and transmission $T(\lambda)$, we calculated diffuse scattering by reflection S_R or by transmission S_T by performing a single integration in one or the other half-space as follows:

$$S_T = \int_{0, \phi} I(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi \quad (1)$$

with $0^\circ < \theta < 90^\circ$ and $0^\circ < \phi < 360^\circ$.

$$S_R = \int_{0, \phi} I(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi \quad (2)$$

with $90^\circ < \theta < 180^\circ$ and $0^\circ < \phi < 360^\circ$.

These integrated scattering values are now investigated in regard to different quarter-wave coatings deposited on the microspheres. As usual, H and L will designate high- and low-index thin films with quarter-wave optical thickness:

$$n_H e_H = n_L e_L = \lambda_0/4, \quad (3)$$

The authors are with the Institut Fresnel, Unité Mixte de Recherche–Centre National de la Recherche Scientifique 6133, École Généraliste d'Ingénieurs de Marseille, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, Université de Provence Aix-Marseille I, Domaine Universitaire de St. Jérôme, 13397 Marseille Cedex 20, France. C. Deumié's e-mail address is carole.deumie@fresnel.fr.

Received 2 March 2005; accepted 3 October 2005.

0003-6935/06/071469-09\$15.00/0

© 2006 Optical Society of America

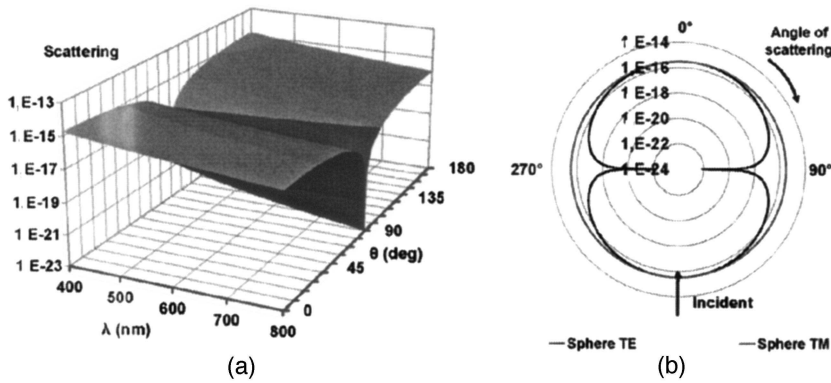


Fig. 1. (a) Angular scattering and (b) polar diagram at $\lambda = 633$ nm of a 10 nm radius silica sphere.

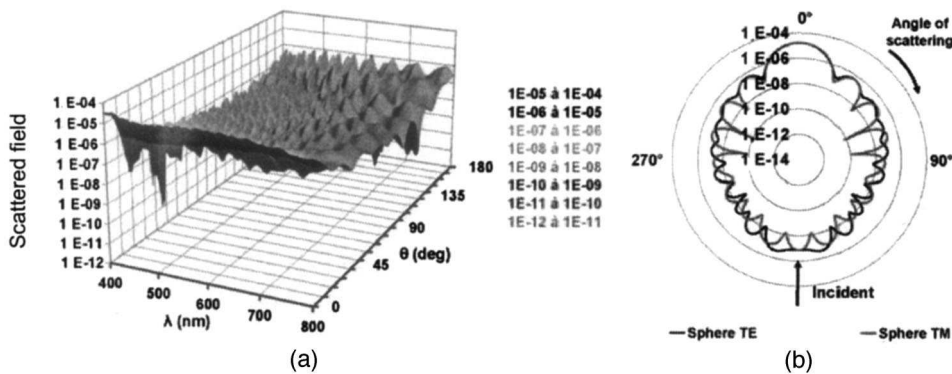


Fig. 2. (a) Angular scattering and (b) polar diagram at $\lambda = 633$ nm of a 1 μm radius silica sphere.

with $\lambda_0 = 633$ nm, where n_H and n_L designate high and low refractive indices and e_H and e_L the mechanical thicknesses of the layers.

In Fig. 3 diffuse scattering S_R and S_T are plotted versus wavelength in the case of an uncoated sphere with a 100 nm radius. When the sphere is overcoated with a single H layer, the scattering level is increased and the spectral properties are modified (Fig. 4), which must be attributed to the increase in diameter (size effect) as well as to the presence of high-index material. The phenomena are more complex when the coating is a multilayer, as shown in Fig. 5 for a seven-layer quarter-wave mirror.

3. Investigation in Colorimetric Space

Colorimetric values x , y , and Y were calculated by using the International Commission on Illumina-

tion (CIE) 1931 XYZ system^{15,16} with the CIE D65 standard illuminant and the CIE 10° standard observer.^{17,18}

In the first step we calculate the color resulting from the diffuse reflectance S_R or the transmittance S_T , which gives us two values in the colorimetric space. But we also plot the angular variation of the color delivered at each scattering angle, which gives us a parametric curve.

As shown in Fig. 6, all diffuse (integrated) and angular colors remain blue for small particles (10 nm radius), as the result of classical Rayleigh scattering. At the inverse, larger diameters (1 or 65 μm) give white colors for diffuse scattering, together with rapid variations in the angular pattern (see Figs 7 and 8).

Now we study the effect of coatings on these color-

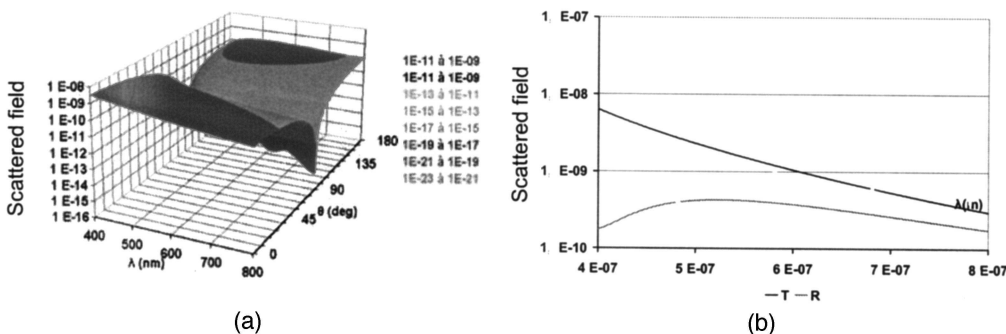


Fig. 3. (a) Angular scattering and (b) S_T and S_R versus wavelength in the visible range for an uncoated silica sphere of 100 nm radius.

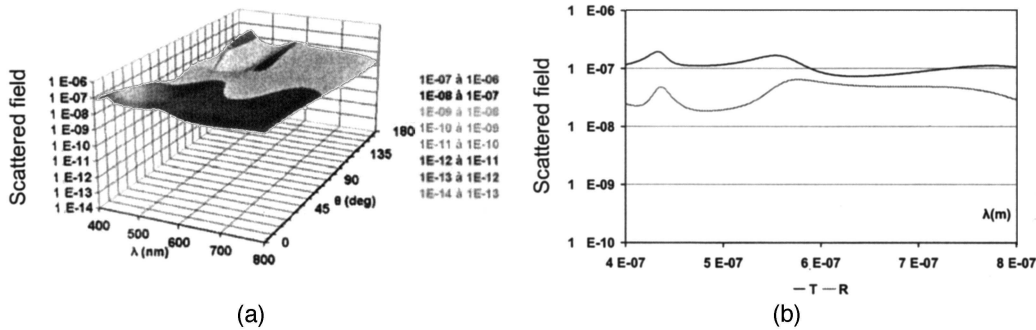


Fig. 4. (a) Angular scattering and (b) S_T and S_R versus wavelength in the visible range for a 100 nm radius silica sphere coated with an H layer.

imetric properties. The starting sphere radius is 100 nm, and its diagram is given in Fig. 9 for both diffuse and angular colors. We notice for the angular pattern that almost all colors are coarsely swept with this uncoated sphere. As for the integrated colors, they are different in reflection and transmission.

When the sphere is coated, the colorimetric diagram is modified, which is emphasized in Figs. 10 and 11 for two designs, a single high-index layer and a multilayer mirror. For the high-index quarter-wave layer and concerning the angular color, the colorimetric space covered is no longer an ellipse but becomes

an arbitrary curve that shifts more toward red and yellow than toward blue. If the total thickness is larger, typically when the stack contains many layers, the colorimetric response is more complex and tends toward an equal-energy locus. The same study has been conducted on 65 μm radius spheres (Figs. 12 and 13).

4. Deposition Process

We validated the first system with electron-beam deposition.¹³ Then the configuration was reversed to facilitate a direct interaction between the sputtered matter

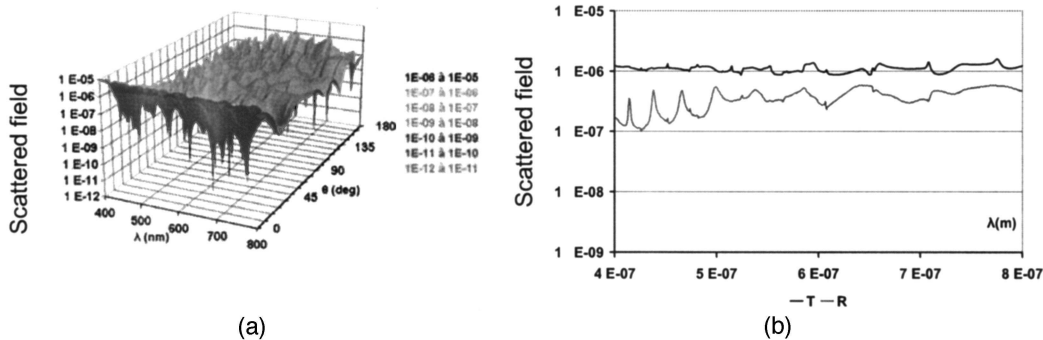


Fig. 5. (a) Angular scattering and (b) S_T and S_R versus wavelength in the visible range for a 100 nm radius silica sphere coated with an HBHBHBH mirror.

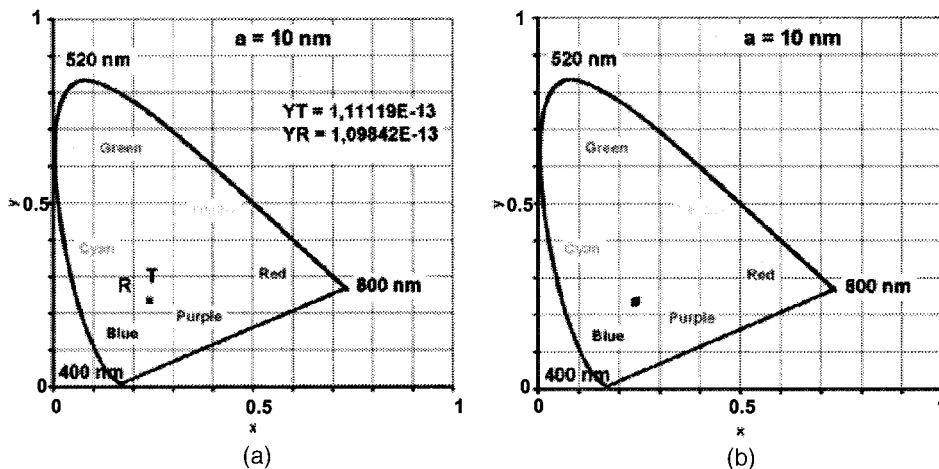


Fig. 6. Chromaticity diagram of a 10 nm radius silica sphere (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

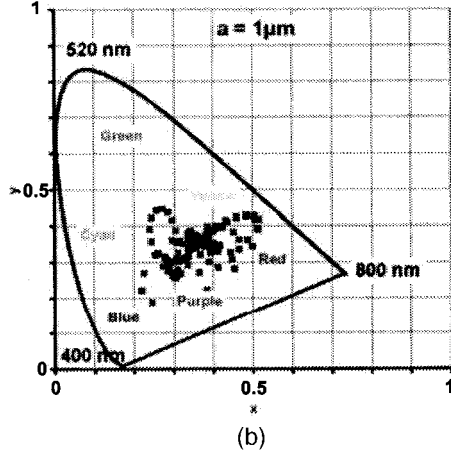
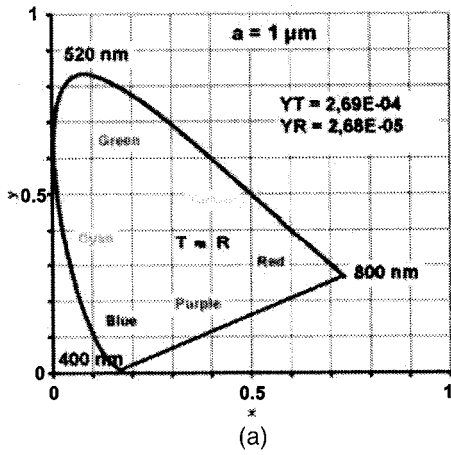


Fig. 7. Chromaticity diagram of a 1 μm radius silica sphere (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

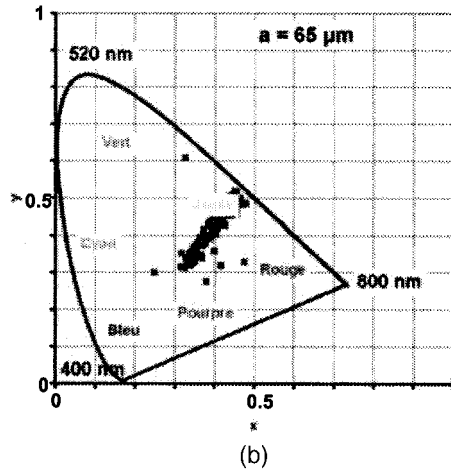
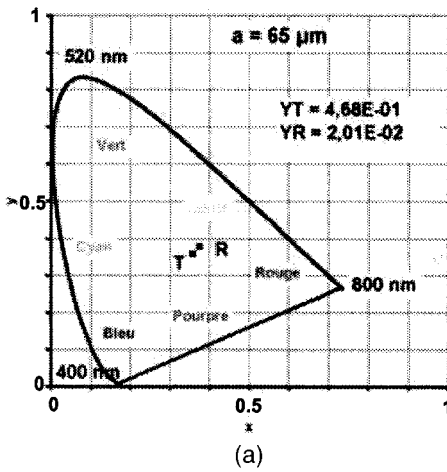


Fig. 8. Chromaticity diagram of a 65 μm radius silica sphere (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

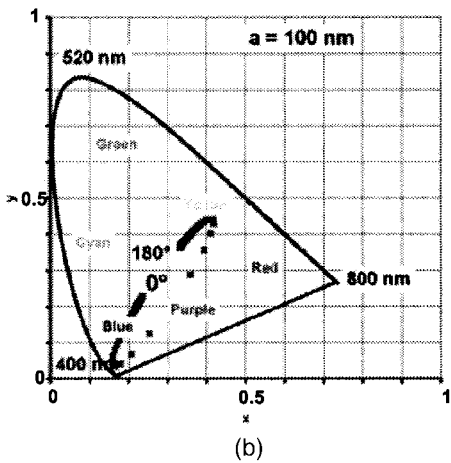
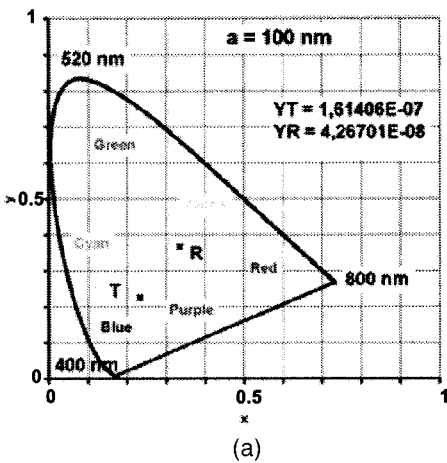


Fig. 9. Chromaticity diagram of a 100 nm radius silica sphere (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

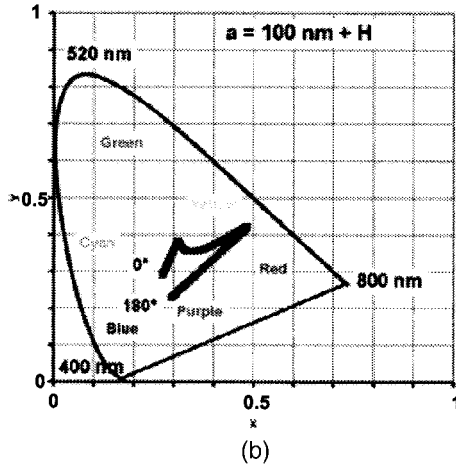
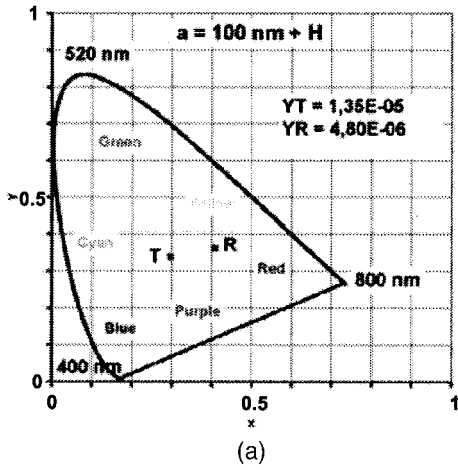


Fig. 10. Chromaticity diagram of a 100 nm radius silica sphere covered with an H layer (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

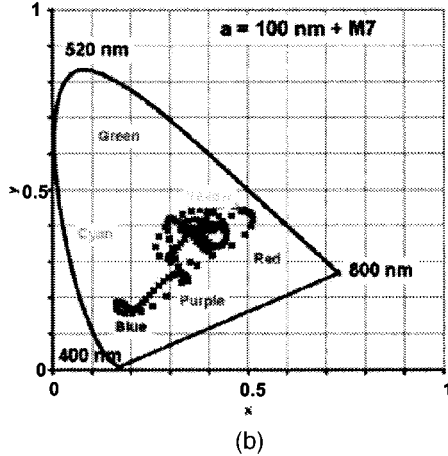
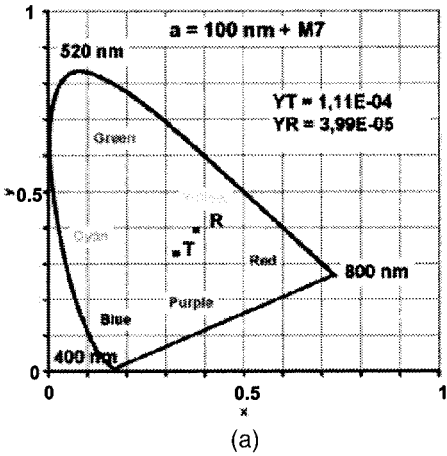


Fig. 11. Chromaticity diagram of a 100 nm radius silica sphere covered with an HLHLHLH layer (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

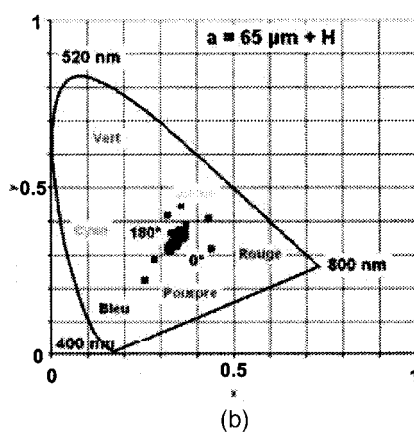
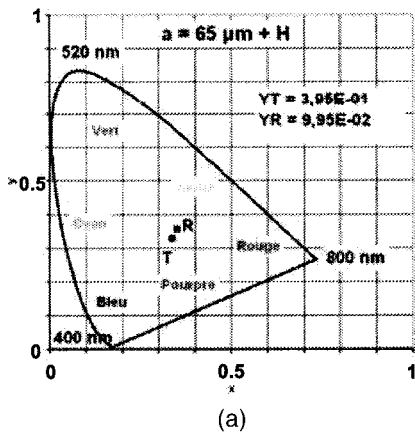


Fig. 12. Chromaticity diagram of a 65 μm radius silica sphere covered with an H layer (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

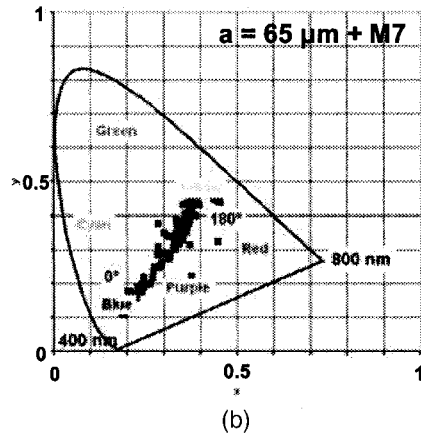
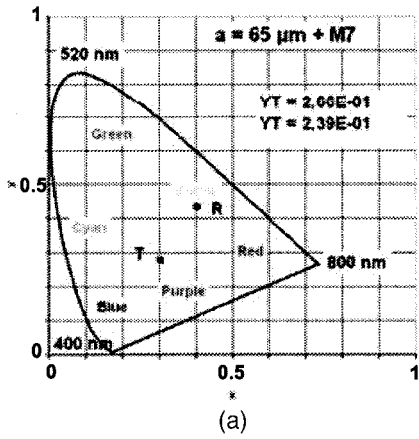


Fig. 13. Chromaticity diagram of a $65 \mu\text{m}$ radius silica sphere covered with an HLHLHLH layer (a) for diffuse scattering by reflection and transmission and (b) for each scattering angle θ .

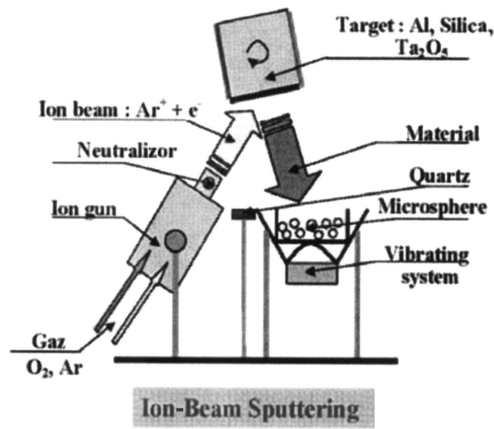
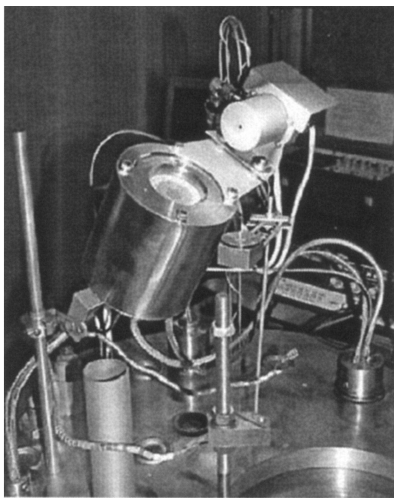


Fig. 14. (a) Photograph of ion gun and (b) principal pattern of ion-beam sputtering in a spherical configuration.

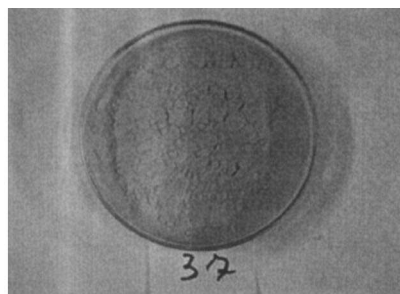
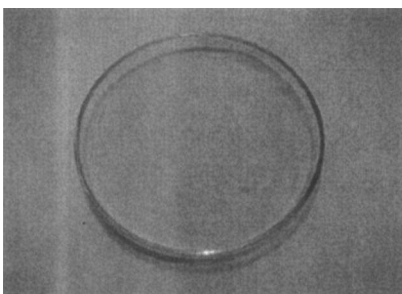


Fig. 15. Plot of (a) $15 \mu\text{m}$ radius uncoated spheres and (b) Al-coated $15 \mu\text{m}$ radius spheres.

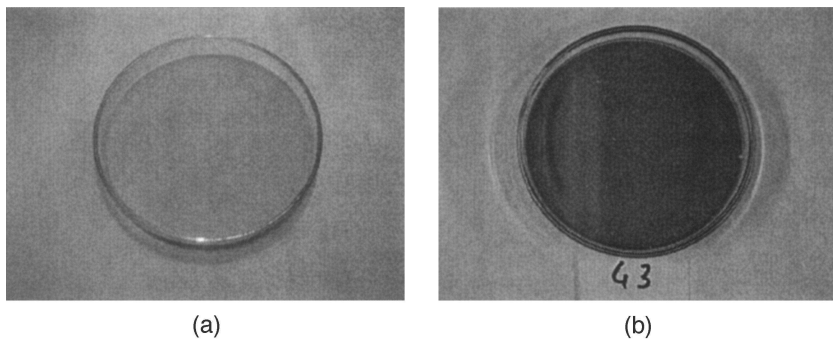


Fig. 16. Plot of (a) 65 μm radius uncoated spheres and (b) Al-coated 65 μm radius spheres.

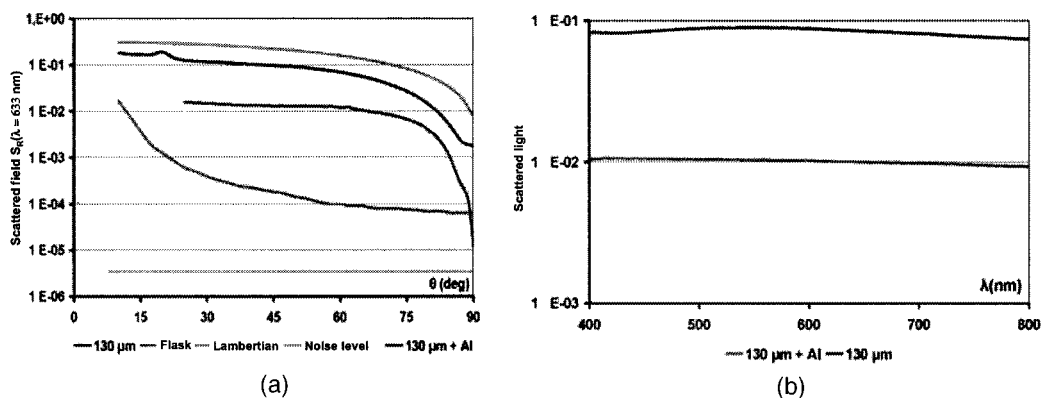


Fig. 17. (a) Angular scattering ($\lambda = 633 \text{ nm}$) of uncoated then aluminized 65 μm radius spheres and (b) spectral scattering of the same uncoated then aluminized 65 μm radius spheres.

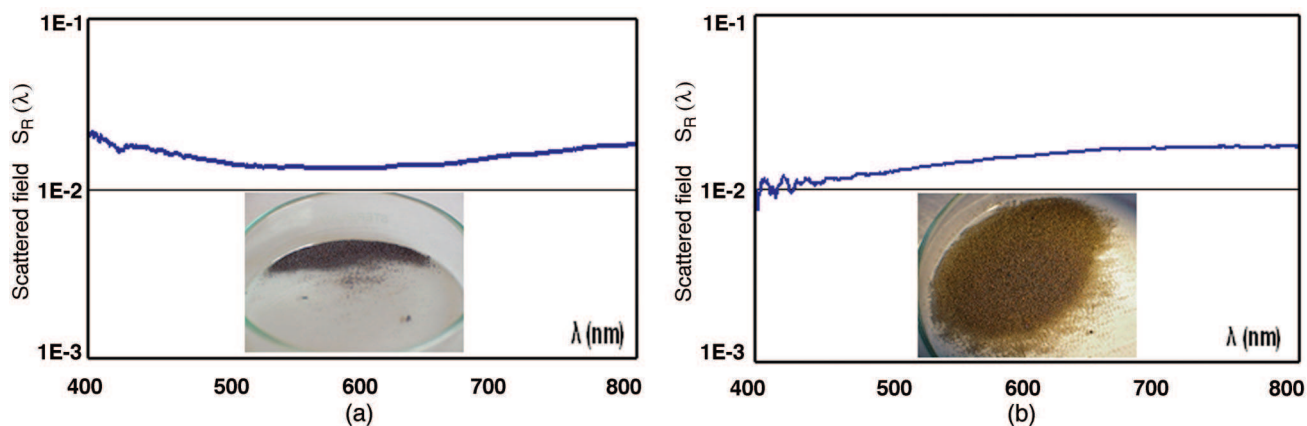


Fig. 18. Photograph and spectral scattering $S_R(\lambda)$ of 65 μm radius aluminized spheres overcoated with different thicknesses of Ta_2O_5 .

and the moving spheres. An ion-beam-sputtering process was set up specifically for this implementation. This technique requires an Ar^+ ion beam, which is focused on a target whose matter is sputtered down on a substrate. In our system targets are in aluminium, tantalum, and silica; thus the deposited materials can be Al, Ta, Ta_2O_5 and SiO_2 . A photograph of our system is shown in Fig. 14(a), and the ion-beam source pattern is given in Fig. 14(b).

The first challenge was the control of gas flows, ion energy, ion current, accelerating voltage, and beam neutralization, which are key parameters to obtain repeatable and accurate index and thickness of planar layers. In a planar configuration, Ta_2O_5 and silica indices were accurately determined versus wavelength.

Then it was important to deposit a homogeneous thickness on the spheres. For this reason, all spheres are shaken during deposition in a vibrating system, which gives them random movements inside the emission lobe of the sputtering materials.

Now if we compare the thickness deposited on a planar substrate with the total thickness deposited on all spheres covering the planar substrate, we conclude that we have a larger surface to overcoat, which increases when the sphere diameter decreases.

To illustrate this result, we provide Figs. 15 and 16, showing microspheres of two different radii (15 and 65 μm) before and after deposition of aluminium. Although the deposition time is identical for the two figures, the opacity is different and proves that less material was deposited on the smallest spheres.

5. Characterization

We characterized our spheres by using a laser scatterometer and a white-source scatterometer. Our laser scatterometer¹⁹ is capable of measuring angular scattering within a seven-decade range in the visible with respect to a Lambertian sample. Several laser rays are available, ranging from UV (325 nm) to mid-infrared (10.6 μm), and 10 axes are fully computer controlled. This system was described previously.^{20,21}

Spectral and angular scattering levels can also be measured with the white-source scatterometer. Even though its angular resolution is a little higher, its 5 nm spectral resolution²² in the visible range allows a significant spectral characterization. To remove optical and electronic noise during data acquisition and to have a normalized measurement, we made a calibration by using a Lambertian sample, which scatters uniformly in the whole reflected half-space and was previously calibrated by the U.S. National Institute of Standards and Technology.

Figure 17 presents angular and spectral measurements of a collection of 65 μm radius spheres before and after deposition of aluminum. We first notice that the Al-coated spheres scatter less than the uncoated spheres. One possible reason for this could be absorption.

In the second step, the preceding aluminized spheres

were again overcoated with a Ta_2O_5 thin-film material. Two deposition times were used in Figs. 18(a) and 18(b), and each produced different colors.

6. Conclusion

Angular and spectral scattering from overcoated microspheres was calculated and plotted into colorimetric spaces. It was shown how single layers and multilayers allow one to modify the properties of optical powders. In addition, a specific ion-beam-sputtering process was shown to be adequate for overcoating the microspheres.

We acknowledge the Recherche en Couches Minces Optiques team of the Fresnel Institute, whose support was very important to this project, with particular thanks going to M. Lequime, G. Albrand, L. Roussel, and C. Koc.

References

1. P. Voarino, C. Deumié, and C. Amra, "Optical properties calculated for multielectric quarter-wave coatings on microspheres," *Opt. Express* **12**, 4476–4482 (2004).
2. H. A. Macleod, *Thin Optical Filters* (Adam Hilger, 1986).
3. A. V. Tikhonarov, M. K. Trubetsov, and G. W. DeBell, "Application of the needle optimization technique to the design of optical coatings," *Appl. Opt.* **35**, 5493–5508 (1996).
4. M. Lequime, R. Parmentier, F. Lemarchand, and C. Amra, "Towards tunable thin-film filters for wavelength division multiplexing applications," *Appl. Opt.* **41**, 3277–3284 (2002).
5. P. Laven, "Simulation of rainbows, coronas and glories using Mie theory and the Debye series," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **89**, 257–269 (2004).
6. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Wiley-Interscience, 1983).
7. S. C. H. Elasyed, E. M. Khaled, and P. W. Barber, "Light scattering by a coated sphere illuminated with a Gaussian beam," *Appl. Opt.* **33**, 3308–3314 (1994).
8. K. A. Fuller, "Scattering of light by coated spheres," *Opt. Lett.* **18**, 257–259 (1993).
9. G. Gréhan, F. Onofri, and G. Gouesbet, "Electromagnetic scattering from a multilayered sphere located in an arbitrary beam," *Appl. Opt.* **34**, 7113–7126 (1995).
10. H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (Dover, 1981).
11. J. A. Stratton, *Electromagnetic Theory* (McGraw-Hill, 1941).
12. W. J. Wiscombe, "Improved Mie scattering algorithms," *Appl. Opt.* **19**, 1505–1509 (1980).
13. C. Deumié, P. Voarino, and C. Amra, "Overcoated microspheres for the spectral control of diffuse light," *Appl. Opt.* **41**, 3299–3305 (2002).
14. P. Voarino, "Lumière diffuse et microspheres multicouches: calculs et realisations," Ph.D. dissertation (Université de Droit, d'Economie et des Sciences d'Aix-Marseille III, Marseille, France, 2004).
15. R. Sève, *Physique de la couleur, de l'apparence colorée à la technique de la colorimétrie* (Masson, 1996).
16. L. Zuppiroli and M. N. Bussac, *Traité des couleurs* (Presse polytechniques et universitaires romandes, 2001).
17. See "CIE <http://www.cie.com>."
18. Commission Internationale de l'Éclairage (CIE), "International lighting vocabulary," CIE publication 15.2 (CIE, 1987).
19. C. Deumié, "Ellipsométrie sur champ diffus et analyse multi-

- échelle de la microstructure des multicouches optiques: diffusion lumineuse, microscopie à force atomique, microscopie à effet tunnel optique," Ph.D. dissertation (Université Aix Marseille III, Marseille, France, 1997).
20. C. Amra, D. Torricini, and P. Roche, "Multiwavelength (0.45–10.6 μm) angle-resolved scatterometer or how to extend the optical window," *Appl. Opt.* **32**, 5462–5474 (1993).
 21. C. Amra, "Light scattering from multilayer optics. Part A: investigation tools," *J. Opt. Soc. Am. A* **11**, 197–210 (1994).
 22. M. Lequime, L. Abel, and C. Deumié, "Colorimetric properties of the light scattered by various objects," in *Advances in Optical Thin Films*, C. Amra, N. Kaiser, and H. A. Macleod, eds., *Proc. SPIE* **5250**, 271–277 (2004).

Références et bibliographie

- 1 J. M. Elson, J. P. Rahn, and J. M. Bennett, "Light scattering from multilayer optics: comparison of theory and experiment," *Applied Optics* **19** (5), 669-679 (1980).
- 2 J. M. Bennett and L. Mattsson, *Introduction to surface roughness and scattering*. (Optical Society of America, 1989).
- 3 P. Bousquet, F. Flory, and P. Roche, "Scattering from multilayer thin films: theory and experiment," *Journal of the Optical Society of America* **71** (9), 1115 (1981).
- 4 P. Roche and E. Pelletier, "Characterizations of optical surfaces by measurement of scattering distribution," *Applied Optics* **23**, 3561 (1984).
- 5 C. Amra, D. Torricini, and P. Roche, "Multiwavelength (0.45-10.6 μm) angle-resolved scatterometer or how to extend the optical window," *Applied Optics* **32** (28), 5462 (1993).
- 6 C. Amra, C. Grezes-Besset, P. Roche et al., "Description of a scattering apparatus: application to the problems of characterization of opaque surfaces," *Applied Optics* **28**, 2723 (1989).
- 7 C. Amra, "Light scattering from multilayer optics. I. Tools of investigation," *Journal of the Optical Society of America A (Optics and Image Science)* **11** (1), 197 (1994).
- 8 C. Amra, "Light scattering from multilayer optics. II. Application to experiment," *Journal of the Optical Society of America A (Optics and Image Science)* **11** (1), 211 (1994).
- 9 A. Duparre and S. Kassam, "Relation between light scattering and the microstructure of optical thin films," *Applied Optics* **32** (28), 5475-5480 (1993).
- 10 A. Duparre and S. Gliech, "Non-contact testing of optical surfaces by multiple-wavelength light scattering measurement," *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering* **3110**, 566-573 (1997).
- 11 A. Duparre, J. Ferre-Borrull, S. Gliech et al., "Surface characterization techniques for determining the root-mean-square roughness and power spectral densities of optical components," *Applied Optics* **41** (1), 154-171 (2002).
- 12 J. M. Elson, "Angle-resolved light scattering from composite optical surfaces," *Proceedings of the Society of Photo Optical Instrumentation Engineers* **240**, 296-305 (1980).
- 13 S. Kassam, A. Duparre, K. Hehl et al., "Light scattering from the volume of optical thin films: theory and experiment," *Applied Optics* **31** (9), 1304-1313 (1992).
- 14 J. M. Elson, J. P. Rahn, and J. M. Bennett, "Relationship of the total integrated scattering from multilayer-coated optics to angle of incidence, polarization, correlation length, and roughness cross-correlation properties," *Applied Optics* **22** (20), 3207-3219 (1983).
- 15 C. Amra, "From light scattering to the microstructure of thin-film multilayers," *Applied Optics* **32** (28), 5481 (1993).
- 16 C. Amra, "First-order vector theory of bulk scattering in optical multilayers," *Journal of the Optical Society of America A (Optics and Image Science)* **10** (2), 365 (1993).
- 17 C. Amra, "Calculation and measurement of scattering for investigation of microroughness in optical coatings," *Journal of Optics* **21** (3), 83 (1990).
- 18 C. Amra, "Calculation and measurement of scattering for investigation of microroughness in optical coatings," **21** (3), 83 (1990).

- 19 H. Giovannini, A. Sentenac, and C. Amra, "Scattering from overcoated rough structures-application to the reduction of scattering," Proceedings of the SPIE - The International Society for Optical Engineering **3738**, 376 (1999).
- 20 H. Giovannini and C. Amra, "Scattering-reduction effect with overcoated rough surfaces: theory and experiment," **36** (22), 5574 (1997).
- 21 C. Deumie, O. Gilbert, G. Georges et al., "Ellipsometry of reflected and scattered fields for the analysis of substrate optical quality," Applied Optics **45** (7), 1640 (2006).
- 22 C. Deumie, N. Destouches, H. Giovannini et al., "Polarimetric phase measurement for the detection of contaminants on optical surfaces," Proceedings of SPIE The International Society for Optical Engineering (1999).
- 23 C. Deumié, R. Richier, P. Dumas et al., "Multiscale roughness in optical multilayers: atomic force microscopy and light scattering," Appl. Opt. **35**, 5583-5594 (1996).
- 24 P. Voarino, "Lumière diffuse et microspheres multicouches: calculs et realisations," thèse de doctorat, Université de Droit, d'Economie et des Sciences d'Aix-Marseille III (9 juillet 2004).
- 25 A. Marechal, "*La diffusion résiduelle des surfaces polies et des réseaux*," Opt. Acta **5**, 70-74 (1958).
- 26 D. RÖNnow, T. Eisenhammer, and A. Roos, "Surface roughness characterisation of a thin transparent dielectric-silver tandem by spectroscopic light scattering," Solar energy materials and solar cells (1998).
- 27 H. G. Walther and G. Schirmer, "Investigations of light scattering from transparent single layers on glass substrates," Annalen der Physik (1984).
- 28 L. Lévesque, "refractive index determination of materials of thin transparent substrates using ellipsometry," Physic. Educ. **35** (5) (2000).
- 29 T. Smith and G. Lindberg, "Interpretation of ellipsometric data for transparent films on rough metal surfaces," Surface Technology (1979).
- 30 O. Kienzle, J. Staub, and T. Tschudi, "Light scattering from transparent substrates: theory and experiment," Physical Review B Condensed Matter **50** (3), 1848-1860 (1994).
- 31 O. Kienzle, J. Staub, and T. Tschudi, "Description of an integrated scatter instrument for measuring scatter losses of 'superpolished' optical surfaces," Measurement Science and Technology **5** (6), 747 -752 (1994).
- 32 D. Torricini and C. Amra, "Light scattering to characterize both faces of transparent substrates: embedded and radiative transfer," Proc. Soc. Photo-Opt. Instrum Eng, "Optical Interference Coatings" **2253 Part 2**, 1117-1130 (1994).
- 33 M. Zerrad, "Contribution au développement d'un banc de mesure spectrale de la diffusion. Application à des composants optiques variés," mémoire de master (2003).
- 34 C. Amra, C. Deumié, D. Torricini et al., "Overlapping of roughness spectra measured in macroscopic (optical) and microscopic (AFM) bandwidths, in Optical Interference Coatings," SPIE **2253**, 614-630 (1994).
- 35 C. Deumié, "Ellipsométrie sur champ diffus et analyse multi-échelle de la microstructure des multicouches optiques: diffusion lumineuse, microscopie à force atomique, microscopie à effet tunnel optique," thèse de doctorat, Univ. Aix Marseille III (nov 1997).

- 36 Y. Haidar, E. Tollens, Z. Silvestri et al., "Study and comparison of two polishing methods for platinum-iridium surfaces, by means of three characterization techniques," *Metrologia* **42** (2), 115 (2005).
- 37 Youssef Haidar, "Etude en champ proche et champ lointain de surfaces métalliques: apport des microscopes à sonde locale à l'étude des étalons de masse," thèse de doctorat, Université de Bourgogne (2005).
- 38 S. Maure, G. Albrand, and C. Amra, "Low-level scattering and localized defects," **35** (28), 5573 (1996).
- 39 S. Schroder, S. Gliech, and A. Duparre, "Measurement system to determine the total and angle-resolved light scattering of optical components in the deep-ultraviolet and vacuum-ultraviolet spectral regions," *Applied Optics* **44** (29), 6093-6107 (2005).
- 40 C. Hahlweg and H. Rothe, "Design of a semihemispherical spectroradiometer for fast acquisition of BRDF libraries in VIS and NIR," *Proceedings of the SPIE - The International Society for Optical Engineering* **5546**, 37 (2004).
- 41 "<http://piacton.com/products/pixis/>."
- 42 "<http://www.superlumdiodes.com/pdf/s840-b-i-20.pdf>."
- 43 N. Destouches, C. Deumie, H. Giovannini et al., "Determination of refractive indices of opaque rough surfaces," *Applied Optics* **43** (4), 756 (2004).
- 44 C. Deumie, N. Destouches, M. Cathelinaud et al., "Optical materials in powder forms: characterization techniques," *Proceedings of the SPIE - The International Society for Optical Engineering* **3738**, 417 (1999).
- 45 P. Voarino, C. Deumié, and C. Amra, "Optical properties calculated for multidielctric quarter-wave coatings on microspheres," *Optics Express* **12** (19), 4476-4482 (2004).
- 46 C. Deumié, P. Voarino, and C. Amra, "Overcoated microspheres for the spectral control of diffuse light," *Applied Optics* **41** (16), 3299-3305 (2002).
- 47 P. Voarino, C. Deumié, and C. Amra, "Interferential powders for the spectral control of light scattering," *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*. **5250** (1), 37 45 (2004).
- 48 Philippe Voarino, Myriam Zerrad, Carole Deumié et al., "Multidielctric quarter-wave coatings on microspheres: a study in colorimetric space," *Applied optics* **45** (7), 1469-1477 (2006).
- 49 M. Lequime, L. Abel, and C. Deumié, "Colorimetric properties of the light scattered by various objects," *SPIE* **5250**, 271-277 (Feb 2004).
- 50 Mady Elias and Jacques Lafait, *La couleur: Lumière, vision et matériaux*. (Belin, 2006).
- 51 L. Zuppiroli and M.N. Bussac, *Traité des couleurs*. (Presse polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, 2001).
- 52 R. Sève, *Physique de la couleur, de l'apparence colorée à la technique de la colorimétrie*. (Masson, Paris, 1996).
- 53 G. A. Agoston, *Color Theory and Its Application in Art and Design*. (Heidelberg, 1979).
- 54 D.L. MacAdam, "Color Measurement, theme and variation," *Optical Sciences* **second revised ed** (1985).

- 55 M. E. Chevreul, *De la loi du contraste simultané des couleurs et de l'assortiment des objets colorés*. (Paris, 1839).
- 56 A. Hope and M. Walsh, *The Color Compendium*. (New York, 1990).
- 57 A. H. Munsell, *The Atlas of the Munsell Color System*. (Boston, 1915).
- 58 H. Munsell, *A Color Notation*. (Boston, 1905).
- 59 D. B. Judd and G. Wyszecki, *Color in Business, Science, and Industry*. (New York, 1975).
- 60 G. Wyszecki and W. S. S. Stiles, *Color Science*. (New York, 1967).
- 61 G. Wyszecki and W. S. Stiles, *Color Science: Concepts and Methods Quantitative Data and Formulae*. (John Wiley & sons, New York, 1982).
- 62 "CIE:<http://www.cie.com>."
- 63 K. McLaren, "The development of the CIE 1976 (L*a*b*) uniform colour space and colour-difference formula," *Journal of the Society of Dyers and Colourists* **92**, 338-341 (1976).
- 64 ["http://www.tsi.enst.fr/tsi/enseignement/ressources/mti/correl_couleur/chromaticity.html."](http://www.tsi.enst.fr/tsi/enseignement/ressources/mti/correl_couleur/chromaticity.html)
- 65 ["http://tecfa.unige.ch/perso/lombardf/CPTIC/couleurs/couleur_ERAG/Pages/ch8p1.htm."](http://tecfa.unige.ch/perso/lombardf/CPTIC/couleurs/couleur_ERAG/Pages/ch8p1.htm)

Résumé

Ce mémoire de thèse est entièrement dédié au développement de nouvelles techniques utilisant la diffusion lumineuse comme outil de sondage optique. Cette étude a suivi trois axes distincts qui sont la caractérisation des substrats transparents, la « pixellisation » de la BRDF et la caractérisation de composants colorés.

Si la diffusion lumineuse fournit une technique efficace d'analyse non destructive des composants optiques, elle n'était cependant pas adaptée à la caractérisation de rugosités de surface dans le cas d'échantillons transparents épais. Pour cette raison, et dans le cadre d'un projet européen, nous avons pu mettre en œuvre deux méthodes de caractérisation par diffusion lumineuse des substrats transparents. La première repose sur un principe de « filtrage d'étendue » et la deuxième sur un retournement des substrats et une extension du modèle au cas de la lumière incohérente. Elles seront toutes deux présentées et validées dans la première partie de ce manuscrit.

Par ailleurs, un autre verrou à lever consistait à séparer la contribution des effets de rugosité intrinsèque de la surface étudiée de celle de défauts localisés éventuellement en présence. Nous avons pour cela mis au point un analyseur optique de surface dont la conception et la réalisation sont détaillées dans la deuxième partie de ce manuscrit. Ce nouveau dispositif de mesure de lumière diffuse associe une caméra haute performance, une source incohérente et un système télécentrique. Il permet non seulement d'extraire la contribution des défauts localisés, mais aussi de mesurer simultanément la BRDF angulaire de plusieurs éléments de surface et ainsi d'accéder à différentes résolutions latérales.

La troisième partie de ce manuscrit portera sur la caractérisation par diffusion lumineuse de composants colorés. L'une des thématiques de l'activité Diffusion Lumineuse du laboratoire est l'étude et la réalisation de poudres interférentielles pour des applications liées à des effets colorés (cosmétiques, peinture). Pour optimiser les procédures de réalisation de ces poudres, il était nécessaire de pouvoir quantifier les effets colorés qu'elles produisent. Nous avons pour cela introduit les représentations des mesures de diffusion dans les espaces colorimétriques, et plus particulièrement les représentations dans des espaces permettant des interprétations visuelles des effets colorés obtenus.