



HAL
open science

Sur le classement des mesures en diffusion de la lumière par les surfaces

P. Croce

► **To cite this version:**

P. Croce. Sur le classement des mesures en diffusion de la lumière par les surfaces. Journal de Physique, 1990, 51 (6), pp.511-527. 10.1051/jphys:01990005106051100 . jpa-00212387

HAL Id: jpa-00212387

<https://hal.science/jpa-00212387>

Submitted on 4 Feb 2008

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.

Classification
Physics Abstracts
42.20G

Sur le classement des mesures en diffusion de la lumière par les surfaces

P. Croce

Institut d'optique (*), Centre universitaire d'Orsay, Bât. 503, BP 147, F-91403 Orsay Cedex, France

(Reçu le 18 février 1989, accepté sous forme définitive le 20 novembre 1989)

Résumé. — On envisage d'une façon très générale les mesures que l'on pourrait faire à l'aide de la diffusion de la lumière sur des spécimens quand la contribution des surfaces et interfaces est une part non négligeable (souvent prépondérante) de la diffusion totale. On est amené à mesurer des moments statistiques, ou paramètres, de différents ordres. Les coefficients liant les moments des faisceaux incidents et diffusés, dont la connaissance est le but de ces recherches, sont en nombre réduit pour certaines conditions géométriques. Il se trouve que pour ces conditions, qui portent sur les positions relatives des faisceaux incidents, diffusés et de la surface, sont souvent satisfaites expérimentalement. On s'attache en particulier à classer ces conditions pour les moments d'ordre deux, ordre le plus faible, ces moments pouvant alors être mis sous la forme de paramètres de Stokes. Après avoir abordé le problème de l'optimisation de la surface utile du spécimen à employer, on montre sur quelques exemples l'intérêt de mesurer certains coefficients, que l'on ne mesure pas habituellement, d'ordre deux ou plus et on discute des difficultés expérimentales auxquelles on peut se heurter, en particulier pour les moments d'ordre élevé.

Abstract. — One considers from a general point of view light scattering measurements likely to be made on samples, where the contribution of surfaces and interfaces is not a negligible but often a major part of the whole process. Thereby statistical moments, or parameters, of different orders must be measured. The coefficients linking these moments, which this work aims at determining, are in small number for some geometrical conditions. Such conditions, relating to location of incident and scattered beams with respect to the surface, often prevail experimentally. Special emphasis is placed on the conditions required for moments of second order — the smallest one — which can then be formulated in terms of Stokes parameters. After considering the optimum area problem for the sample, some examples show that it is desirable to measure some coefficients of second or higher orders which are not usually measured. Experimental difficulties one can encounter in the determination of higher order moments are discussed.

1. Introduction.

L'analyse spontanée que les êtres vivants font de la lumière renvoyée par les objets qui les entourent est une des meilleures informations qu'ils aient du monde extérieur. Outre la forme

(*) U.A. C.N.R.S., n° 14.

et le mouvement, l'aspect même de ces objets est très important. D'une extrême variété, il dépend de la diffusion simple ou multiple par les surfaces et par le volume, à laquelle se mêle parfois de la réflexion spéculaire, le tout variant plus ou moins avec la longueur d'onde. Il semble qu'on ait peu publié sur cette question, dans son ensemble, bien qu'elle joue un rôle important dans de nombreux domaines (dans l'industrie des peintures notamment). Une exception toutefois, celle des astronomes qui cherchaient, avant les voyages interplanétaires, à élucider la nature de la surface des planètes par l'étude de leur aspect. Les spécialistes de télédétection ont pris le relais mais, sauf s'ils utilisent des radars, ils ne sont pas maîtres de la source, ce qui distingue leurs études de celles qui sont menées en laboratoire. Celles-ci portent, en général, soit d'un côté sur la diffusion en volume, soit de l'autre sur la diffusion par les surfaces seules. Ces dernières, après quelques publications rares et anciennes, se sont beaucoup développées depuis l'invention du laser et sont l'objet d'une bibliographie assez abondante qu'il serait difficile de rassembler et présenter d'une façon critique. Il est à noter qu'un appareillage élémentaire donne déjà beaucoup d'informations chiffrées et recherchées comme l'amplitude et le spectre des rugosités. Cependant, pour aller plus loin, on va essayer d'envisager systématiquement toutes les mesures que l'on pourrait faire dans ce domaine sur des spécimens aussi généraux que possible, mais possédant toutefois statistiquement des propriétés usuelles.

2. Méthode utilisée.

Une méthode générale pour étudier les corps diffusants, dont la surface limite (ou des interfaces) joue un rôle non négligeable dans la diffusion, consiste à envoyer sur cette surface un ensemble de N_i ondes planes (les ondes incidentes, d'où l'indice i) quasimonochromatiques et de même fréquence moyenne. On les définit essentiellement par leur vecteur d'onde $\mathbf{k}_{i,g}$ (pour celle de rang g) et on précisera leur état de polarisation, selon le cas, par un ou deux vecteurs unitaires perpendiculaires à $\mathbf{k}_{i,g}$. En un point quelconque \mathbf{r} l'amplitude de chacune d'elles est de la forme :

$$A_{i,g} \cdot \cos [2 \pi (\mathbf{k}_{i,g} \cdot \mathbf{r} - \nu t) + \Phi] = E_{i,g} \cdot \exp 2 \pi i (\mathbf{k}_{i,g} \cdot \mathbf{r} - \nu t) + E_{i,g}^* \cdot \exp - 2 \pi i (\mathbf{k}_{i,g} \cdot \mathbf{r} - \nu t). \quad (1)$$

On détectera N_d ondes diffusées de même fréquence (on se limite à la diffusion élastique) définies de façon semblable par des vecteurs $\mathbf{k}_{d,g'}$ et des amplitudes $E_{d,g'}$ et $E_{d,g'}^*$.

Pour une surface bien définie, l'amplitude $E_{d,g'}$ est une fonction linéaire, homogène, des amplitudes des ondes incidentes :

$$E_{d,g'} = \sum_{g=1}^{N_i} \alpha_{g'g} \cdot E_{i,g} \quad (2)$$

(on se placera toujours en optique linéaire) ; de même :

$$E_{d,g'}^* = \sum_{g=1}^{N_i} \alpha_{g'g}^* \cdot E_{i,g}^* \quad (2')$$

(les E et E^* ne sont pas liés linéairement) ; on représentera par π_{dN} le produit de N amplitudes complexes $E_{d,g'}$ ou $E_{d,g'}^*$ (N, N_i, N_d sont trois nombres totalement indépendants les uns des autres), avec la possibilité de faire intervenir plusieurs fois le même facteur (E ou E^*). Ce produit sera une fonction linéaire homogène des différents produits analogues

π_{iN} de N amplitudes $E_{i,g}$ et $E_{i,g}^*$ des ondes incidentes. Cette linéarité est un point fondamental pour ce qui suit. On associera aux E et E^* des constantes ε qui valent 1 pour les E et -1 pour les E^* et on appellera dispositif le montage expérimental réduit à ses éléments essentiels : spécimen lui-même réduit à sa surface diffusante moyenne, vecteurs d'onde des N_i rayons incidents et des N_d rayons diffusés. Dans ces correspondances entre ces produits π_N seuls interviennent des produits auxquels sont associés un même nombre de constantes ε de valeur 1 et un même nombre, pouvant être différent du précédent, de constantes ε de valeur -1 .

Comme on peut écrire schématiquement $\|E_d\| = \|\alpha\| \cdot \|E_i\|$ on aura $\|\pi_{dN}\| = \|C_N\| \cdot \|\pi_{iN}\|$, où la matrice ligne $\|\pi_{dN}\|$ et la matrice colonne $\|\pi_{iN}\|$ ont pour base les différents états de polarisation indépendants des produits π_{dN} pour la première et π_{iN} pour la deuxième. Les éléments de la matrice $\|C_N\|$, non nécessairement carrée, sont des combinaisons linéaires homogènes de produits de N facteurs α ou α^* . Les éléments des matrices $\|\alpha\|$ et $\|C_N\|$ peuvent être déterminés expérimentalement par les mesures des E_d et des π_{dN} en variant la polarisation et la phase des ondes. En particulier, si on introduit expérimentalement un déphasage sur une onde, il en résulte des facteurs inverses dans l'amplitude des champs E et E^* . Cette remarque pourrait être utile, dans les expériences, pour affecter à différents produits π_N des facteurs de phase différents et pouvoir ainsi les isoler si cela était nécessaire. Après avoir fait des moyennes statistiques sur ces éléments C_N on obtient ce qu'on appellera les coefficients de diffusion $D_N = \langle C_N \rangle$, valeurs fondamentales dans cet article, qu'on doit déterminer expérimentalement et qu'on devra comparer à des valeurs théoriques calculées le plus souvent à l'aide de modèles. Sans entrer dans trop de détails sur ces mesures, qui pourront parfois être faites en intensité mais qui devraient dans les cas les plus généraux être faites en amplitude, on supposera d'abord que les E_i ont des fluctuations négligeables puis on fera une moyenne spatiale en remplaçant la surface particulière utilisée jusqu'ici par un grand nombre de surfaces statistiquement équivalentes. Dans la suite on supposera que ces surfaces, et les deux milieux que ces surfaces séparent, possèdent certaines particularités très fréquemment rencontrées : leur surface moyenne sera plane (plan noté P) ; elles seront homogènes à deux dimensions, c'est-à-dire invariantes statistiquement pour toute translation parallèle à P (elles peuvent donc être stratifiées suivant la troisième dimension) ; et, bien que ce soit moins indispensable, elles seront isotropes toujours à deux dimensions, donc invariantes statistiquement pour toute rotation autour d'une normale à P. Le milieu où est l'onde incidente sera supposé homogène et non diffusant, sauf évidemment si on ne traite que de la diffusion en volume.

La condition sur le nombre des constantes ε vue plus haut entraîne que

$$\sum_{g,N} \varepsilon_{i,g} = \sum_{g',N^*} \varepsilon_{d,g'} \quad (3a)$$

les coefficients seront donc comme il se doit indépendants de l'origine des temps. On rappelle que chaque onde de rang g ou g' peut ne pas figurer, ou au contraire apparaître une ou plusieurs fois, dans ces sommes de N termes ainsi que dans celles des relations qui suivent. Il faudra de plus qu'un déplacement de l'origine spatiale parallèle à P (ou une translation opposée de la surface) n'entraîne pas l'apparition d'un facteur de phase entre les π_{dN} et les π_{iN} . Pour cela il faudra que les composantes k_t , suivant P, des vecteurs k satisfassent à la relation :

$$\sum_{g,N} \varepsilon_{i,g} \cdot k_{ti,g} = \sum_{g',N} \varepsilon_{d,g'} \cdot k_{td,g'} \quad (3b)$$

Ce n'est que pour les vecteurs \mathbf{k} satisfaisant (3) que les éléments de la matrice $\|C_N\|$ peuvent ne pas être nuls en moyenne. En revanche leurs composantes k_n , suivant la normale à P, ne satisferont pas nécessairement à la relation :

$$\sum_{g,N} \varepsilon_{i,g} \cdot k_{ni,g} = \sum_{g',N} \varepsilon_{d,g'} \cdot k_{nd,g'} \quad (4)$$

ce qui entraîne alors la disparition par interférence d'une grande part de la diffusion en volume.

Si dans ces conditions les coefficients sont indépendants des origines (sauf éventuellement si (4) n'est pas satisfaite), il n'en est pas de même pour les produits π_N servant à les déterminer, ce qui entraîne des mesures de phases entre les différentes ondes. Cette difficulté ne se présente pas si les produits sont indépendants des origines, ce qui limite évidemment en contrepartie le nombre de coefficients accessibles. L'indépendance des produits π_{iN} et π_{dN} par rapport à l'origine des temps demande que les deux sommes $\sum_{g,N} \varepsilon_{i,g}$ et

$\sum_{g',N} \varepsilon_{d,g'}$, qui sont égales, soient nulles, donc que les produits comportent $N/2$ termes

E et $N/2$ termes E^* et que N soit pair, ce qui sera presque toujours réalisé désormais. L'indépendance par rapport à l'origine des espaces demande que soit nul chacun des membres de (3b) et, si on veut simplifier les expériences, on s'arrangera pour qu'il en soit de même pour la relation (4) bien qu'il en résulte une perte d'information ; les π_N deviennent alors des moments statistiques ordinaires.

On ne poursuivra pas dans cette voie très générale, on s'intéressera à des cas beaucoup plus proches de ceux que l'on réalise actuellement ; ces cas simples seront d'ailleurs une bonne illustration du problème général dont ils mettent déjà en œuvre les points essentiels. On se limitera à un seul vecteur d'onde incident \mathbf{k}_i et, presque toujours, à un seul vecteur diffusé \mathbf{k}_d . On verra que même dans ces conditions restrictives on est bien loin, pour l'instant, de tirer toute l'information possible de telles mesures.

3. Choix des axes de coordonnées.

On va définir tout d'abord les coordonnées du problème. On utilise généralement un simple goniomètre dont le détecteur tourne dans un plan Q, formé par \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_d , le spécimen étant placé perpendiculairement à ce plan. Les mesures sont faites uniquement dans le plan d'incidence et il est naturel d'utiliser les deux angles que font les rayons incident et diffusé avec la normale à P : les angles d'incidence Θ_i et de diffusion Θ_d . Si on voulait faire des mesures hors du plan d'incidence, il serait simple d'utiliser le même montage et d'incliner le spécimen autour de l'intersection A de P et Q. On noterait l'angle d'inclinaison par φ et alors Θ_i et Θ_d seraient définis par rapport à la perpendiculaire à A dans le plan Q (Fig. 1). Il faut maintenant un système d'axes $O_1 x_1 y_1 z_1$ pour le rayon incident et un autre $O'_1 x'_1 y'_1 z'_1$ pour le diffusé (Fig. 2). $O_1 z_1$ et $O'_1 z'_1$ seront respectivement parallèles à \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_d et de même sens, $O_1 z_1$ et $O'_1 z'_1$ se rencontrant en O sur le plan P avec $O_1 O = OO'_1$; $O_1 y_1$ et $O'_1 y'_1$ seront perpendiculaires au plan d'incidence $\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_d$ et de même sens ; $O_1 x_1$ et $O'_1 x'_1$ compléteront leur trièdre respectif dans le sens direct.

4. Coefficients d'ordre deux.

Les seuls vecteurs \mathbf{k} donnant des coefficients $D_1 = \langle C_1 \rangle$ d'ordre 1 non nuls correspondent à la diffusion vers l'avant ou à la réflexion (ils correspondent à la simple mesure des

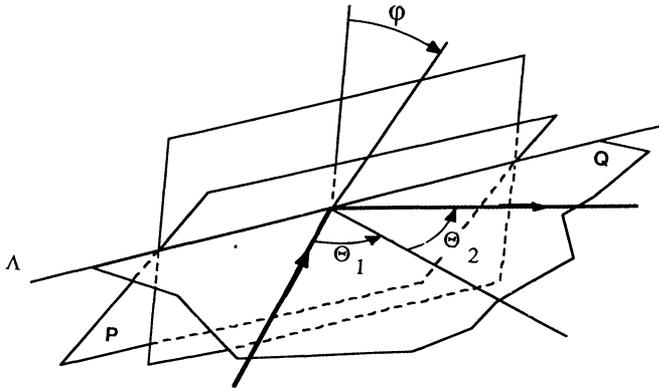


Fig. 1.

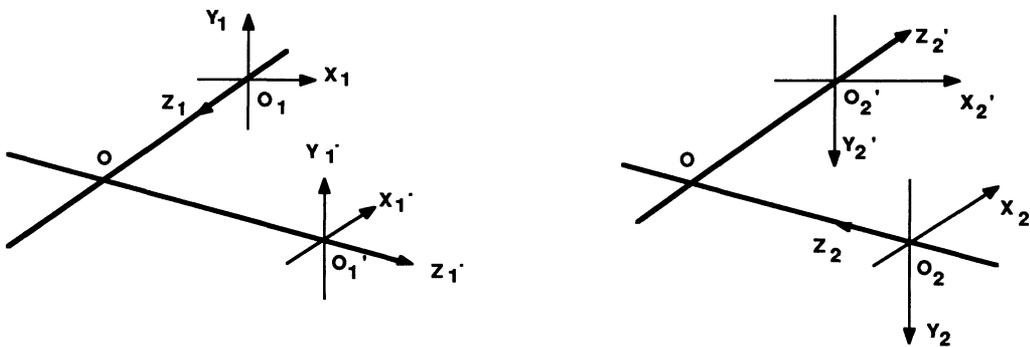


Fig. 2.

amplitudes) : $\varepsilon_i = \varepsilon_d$, $\mathbf{k}_{ti} = \mathbf{k}_{td}$, mais ces conditions géométriques sont très contraignantes et ces coefficients en eux-mêmes n'ont pas grand intérêt pour l'étude de la diffusion à laquelle sont mieux liés des coefficients d'ordre 2, qui sont en outre de mesure plus facile. Cependant on sait que l'indice et le coefficient d'extinction d'un milieu homogène sont liés d'une façon très étroite aux parties réelle et imaginaire du coefficient D_1 de diffusion vers l'avant [1].

On s'intéressera surtout au cas $N = 2$. Dans la formule (3) la première somme est alors nulle : en effet $\varepsilon_{i,1} = -\varepsilon_{i,2}$, $\mathbf{k}_{ti,1} = \mathbf{k}_{ti,2}$; la deuxième doit l'être également, donc $\varepsilon_{d,1} = -\varepsilon_{d,2}$ et $\mathbf{k}_{td,1} = \mathbf{k}_{td,2}$: on doit faire intervenir soit deux ondes diffusées de composantes k_{nd} de signes opposés et la relation (4) n'est pas satisfaite, soit une onde et la relation (4) est satisfaite. Dans le premier cas une des ondes est dans l'air ou le vide et l'autre pénètre dans le milieu, ce qui suppose ce milieu suffisamment transparent pour que l'onde puisse ressortir ; il faudrait de plus mesurer les amplitudes, par exemple à l'aide d'une détection hétérodyne, et conserver la phase. Dans le deuxième cas la diffusion peut se faire, soit en transmission à

travers le milieu, soit par « réflexion » ; c'est cette dernière qui est le plus employée et c'est la seule qu'on traitera.

On abordera le problème en prenant, tout naturellement, une seule onde incidente dont le champ électrique est dirigé selon $O_1 x_1$ et d'amplitude E_p . Il en résulte une onde diffusée dont le champ électrique en O_1 admet une composante dirigée suivant $O_1 x'_1$ d'amplitude $E'_p = \alpha_{pp} \cdot E_p$ et une composante suivant $O_1 y'_1$ d'amplitude $E'_s = \alpha_{sp} \cdot E_p$; on définira de même des coefficients α_{ps} et α_{ss} en prenant une onde incidente dirigée suivant $O_1 y_1$ d'amplitude E_s . En général la source est une superposition des deux. Comme on l'a vu, on prendra les moyennes temporelles $\langle E_p \cdot E_p^* \rangle$, $\langle E_p \cdot E_s^* \rangle$, $\langle E_s \cdot E_p^* \rangle$ et $\langle E_s \cdot E_s^* \rangle$. On utilise d'habitude les paramètres de Stokes qui sont une combinaison linéaire de ces produits π_2 :

$$\begin{aligned} I &= \langle E_p \cdot E_p^* \rangle + \langle E_s \cdot E_s^* \rangle & M &= \langle E_p \cdot E_p^* \rangle - \langle E_s \cdot E_s^* \rangle \\ C &= \langle E_p \cdot E_s^* \rangle + \langle E_s \cdot E_p^* \rangle & S &= (\langle E_p \cdot E_s^* \rangle - \langle E_s \cdot E_p^* \rangle) / i \end{aligned} \quad (5)$$

(à une constante multiplicative près). On définira des paramètres analogues pour l'onde diffusée [2]. On a vu que pour un diffuseur bien défini, comme celui considéré ici, ces deux ensembles de paramètres sont liés linéairement, propriété qui reste évidemment vraie quand on effectue des moyennes spatiales. On a donc 16 coefficients réels à déterminer (I, M, C, S sont réels). Expérimentalement ceux-ci devraient être, en fait, les moyennes des expressions précédentes sur un grand nombre de spécimens équivalents statistiquement. Ces moyennes sont en réalité rarement faites ; on verra plus loin pourquoi.

L'existence éventuelle de symétries introduit des relations entre ces coefficients et réduit le nombre de coefficients indépendants. Les symétries doivent conserver le plan P mais ne doivent pas permuter les deux milieux, ce qui exclut les plans et axes de symétries parallèles à P et les centres de symétrie ; il ne reste plus que les axes et plans de symétrie perpendiculaires à P. De plus il faut que k_i permute avec k_d ou $-k_d$ ou que k_i et k_d soient conservés. La première symétrie qui amène k_i sur k_d demande que leurs composantes normales à P soient égales, les rayons incidents et diffusés ne sont pas dans le même milieu, les modules des vecteurs k_i et k_d sont alors différents et de plus sauf en incidence normale, cas examiné plus loin, la relation (3b) n'est pas satisfaite : cette symétrie ne peut apporter de renseignements intéressants ici. Pour la deuxième symétrie on utilisera le théorème de réciprocité qui est lié à l'invariance (valable ici s'il n'y a pas de champ magnétique statique intense) par rapport à l'inversion du temps nécessité par le changement de signe des k ; pour la dernière on utilisera la symétrie spatiale entre équations de Maxwell. Perrin [3] a étudié en détail cette réduction pour la diffusion en volume par un corps homogène et isotrope. Ici cette homogénéité et cette isotropie sont à deux dimensions et l'ensemble des symétries du dispositif, qui doivent conserver de plus la surface en n'interchangeant pas les deux milieux qu'elle sépare, est moindre en général et au plus le même que celui de [3], à propriétés équivalentes de milieu. On traitera successivement ces deux cas en commençant, dans les paragraphes 4.1 et 4.2, par celui dans lequel la présence d'une surface ne diminue pas l'ensemble des symétries du dispositif. On peut faire alors un parallèle entre l'étude de la diffusion en volume, objet de [3], et celle de la diffusion de surface examinée ici. On prendra comme ensembles d'éléments de symétrie successivement : axe, axe et plans, axe de révolution sans ou avec plans. Dans ces conditions il apparaît une correspondance biunivoque entre les deux études et les résultats de [3] se transposent directement ici. Toutefois on les redémontrera d'une autre façon qui fait voir simplement la structure des relations entre les coefficients.

4.1 DIFFUSION DANS LA DIRECTION DE RÉFLEXION SPÉCULAIRE.

4.1.1 *Milieu isotrope sans plan de symétrie.* — En [3] la diffusion ne dépend que de « l'angle de phase », c'est-à-dire de l'angle entre rayons incident et diffusé ; le dispositif présente toujours statistiquement un axe de symétrie : c'est celui qui amène $O'_1 z'_1$ sur $-O_1 z_1$. On a vu que cet axe devait être perpendiculaire à P. Bien qu'on mènera différemment la démonstration, on adopte, comme dans [3], pour les rayons inverses (onde incidente $-k_d$, onde diffractée $-k_i$) respectivement des systèmes d'axes $O_2 x_2 y_2 z_2$ et $O'_2 x'_2 y'_2 z'_2$, ces axes d'indice 2 étant, en fait, obtenus en faisant subir aux axes primitifs d'indice 1 la rotation de π autour de la normale à P passant par O ; O_1 (qu'on prendra confondu avec O'_2) permutant ainsi avec O_2 (confondu avec O'_1) (Fig. 2). D'une façon générale on a cherché à adopter autant que possible les mêmes notations qu'en [3].

Dans une première disposition (a) on met en O_1 une onde incidente polarisée suivant $O_1 x_1$ d'amplitude $E_p(a)$; on recueille en O'_1 suivant $O'_1 y'_1$ une composante $E'_s(a) = \alpha_{sp}(a) \cdot E_p(a)$. Dans une deuxième disposition (b) on met en O'_1 suivant $O'_1 y'_1$ une onde incidente d'amplitude $E_s(b)$ et on recueille en O_1 suivant $O_1 x_1$ une composante $E'_p(b) = \alpha_{ps}(b) \cdot E_s(b)$. Cela donne une valeur provisoire de $\alpha_{ps}(b)$ car pour ce cas (b) on changera les axes de référence, ce qui entraînera le changement du signe de $E_s(b)$ et donc celui de $\alpha_{ps}(b)$. D'après le théorème de réciprocité de Lorentz [4] :

$$E_p(a) \cdot E'_p(b) = E'_s(a) \cdot E_s(b) . \quad (6)$$

(En réalité il faudrait faire apparaître dans cette formule le courant source pour chaque onde incidente : il suffit de mettre ces sources à une grande distance en amont de O_1 et O'_1 , mais la même dans les deux cas, pour que les termes habituels donnent les termes de (6).) On aurait donc avec ces axes $\alpha_{sp}(a) = \alpha_{ps}(b)$, mais pour le parcours (b) on va utiliser les systèmes d'axes d'indice 2 à la place de ceux d'indice 1. Alors les axes Oy changent de sens tandis que les axes Ox gardent le même, ce qui entraîne le changement de signe annoncé de $\alpha_{ps}(b)$. On effectue maintenant sur le parcours (b) la rotation considérée plus haut : ce parcours vient se confondre avec le parcours (a), ainsi que les systèmes d'axes d'indice 2 avec ceux d'indice 1. Les $E(b)$ ne changent pas, ils peuvent et vont être alors définis par les mêmes axes que les $E(a)$. Ce qui change, c'est le diffuseur et la surface qui ont tourné maintenant de π dans le plan moyen P ; donc à partir d'ici (a) et (b) ne serviront plus qu'à distinguer ces deux positions de la surface : (a) avant et (b) après rotation. En définitive $\alpha_{ps}(b) = -\alpha_{sp}(a)$.

De même l'application du théorème de réciprocité aux autres combinaisons p et s de E et E' donne :

$$\alpha_{sp}(b) = -\alpha_{ps}(a) , \quad \alpha_{pp}(b) = \alpha_{pp}(a) , \quad \alpha_{ss}(b) = \alpha_{ss}(a) .$$

Il en résulte que, par exemple,

$$\langle \alpha_{pp}(b) \cdot \alpha_{sp}^*(b) \rangle = - \langle \alpha_{pp}(a) \cdot \alpha_{ps}^*(a) \rangle .$$

Les moyennes sur les diffuseurs (a) étant les mêmes que sur les diffuseurs (b), on pourra dans ces moyennes supprimer les indices (a) et (b). Bien que par exemple $\alpha_{sp}(a)$ puisse être très différent de $\alpha_{sp}(b)$, les symétries agissent, ces moyennes faites, de façon habituelle, comme lorsque la surface et le milieu sont parfaits. Si on condense en (qr)(uv)* l'expression générale $\langle \alpha_{qr} \cdot \alpha_{uv}^* \rangle$ des moyennes telles que celles qui figurent plus haut, on a (pp)(sp)* = - (pp)(ps)*, (ss)(sp)* = - (ss)(ps)*, (ps)(ps)* = (sp)(sp)*, (ps)(sp)* = (sp)(ps)* = [(ps)(sp)*]* car (qr)(uv)* = [(uv)(qr)*]*, donc (ps)(sp)* est réel comme (sp)(sp)*.

D'où finalement les relations pour les paramètres $\langle EE^* \rangle$:

$$\begin{pmatrix} \langle E'_p E'_p{}^* \rangle \\ \langle E'_s E'_s{}^* \rangle \\ \langle E'_p E'_s{}^* \rangle \\ \langle E'_s E'_p{}^* \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (pp)(pp)^* (ps)(ps)^* & (pp)(ps)^* & (ps)(pp)^* \\ (ps)(ps)^* (ss)(ss)^* & - (ps)(ss)^* & - (ss)(ps)^* \\ - (pp)(ps)^* (ps)(ss)^* & (pp)(ss)^* & (ps)(sp)^* \\ - (ps)(pp)^* (ss)(ps)^* & (ps)(sp)^* & (ss)(pp)^* \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \langle E_p E_p{}^* \rangle \\ \langle E_s E_s{}^* \rangle \\ \langle E_p E_s{}^* \rangle \\ \langle E_s E_p{}^* \rangle \end{pmatrix} \quad (7)$$

et pour les paramètres de Stokes :

$$\begin{pmatrix} I' \\ M' \\ C' \\ S' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_1 & b_1 & -b_3 & b_5 \\ b_1 & a_2 & -b_4 & b_6 \\ b_3 & b_4 & a_3 & b_2 \\ b_5 & b_6 & -b_2 & a_4 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix} \quad (7')$$

L'examen de (7) ou de (7') montre qu'il y a 10 coefficients réels indépendants. En décomposant les matrices 4×4 en sous-matrices 2×2 dans la représentation $\langle EE^* \rangle$, on voit que les sous-matrices diagonales sont symétriques et que pour les non-diagonales la transposée de l'une est égale à l'autre changée de signe. Il en serait de même pour la représentation de Stokes s'il n'y avait pas le facteur $1/i$ dans la définition de S ; il y aurait alors symétrie de relation entre I et M avec $\langle E_p E_p{}^* \rangle$, $\langle E_s E_s{}^* \rangle$ d'une part et entre C et S avec $\langle E_p E_s{}^* \rangle$ et $\langle E_s E_p{}^* \rangle$ d'autre part; mais le facteur $1/i$ (d'inverse $-1/i$) introduit un changement de signe entre les termes non diagonaux correspondants de la quatrième ligne et de la quatrième colonne.

4.1.2 Milieu présentant des plans de symétrie. — On suppose maintenant que le dispositif présente, en outre, un plan de symétrie. Le milieu lui-même, alors, doit rester invariant statistiquement après symétrie par rapport à ce plan; du fait de l'isotropie il le restera par rapport à tout plan (toutefois, évidemment, si le milieu est stratifié les plans de symétrie devront être perpendiculaires aux strates). Un tel milieu est dénué de pouvoir rotatoire et on le qualifiera de « symétrique », les « » rappelant que le qualificatif ne porte que sur le milieu et non sur le dispositif complet. Le plan de symétrie doit toujours être perpendiculaire à P . On prendra celui de ces plans qui contient \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_d (du fait de l'axe de symétrie, un deuxième plan contenant l'axe et perpendiculaire au précédent est aussi plan de symétrie). Or on sait qu'à une solution des équations de Maxwell, pour une disposition de matière admettant un plan de symétrie, en correspond une autre obtenue en remplaçant dans la première solution les champs électriques \mathbf{E} par leurs symétriques (et les champs magnétiques par leurs symétriques changés de signe). Pour les ondes qui interviennent dans cet article cela revient à laisser inchangées les composantes E_p et à changer le signe des composantes E_s . Si la symétrie n'est que statistique cette remarque s'applique à condition de la faire porter sur les moyennes du type $\langle E \cdot E^* \rangle$ et les relations (7) doivent rester valables quand $\langle E_p \cdot E_p{}^* \rangle$ et $\langle E_s \cdot E_p{}^* \rangle$ changent de signe $\langle E_p \cdot E_p{}^* \rangle$ et $\langle E_s \cdot E_s{}^* \rangle$ restant inchangés. Il en résulte que les coefficients liant $\langle E_p \cdot E_p{}^* \rangle$ et $\langle E_s \cdot E_s{}^* \rangle$ (ou I et M) à $\langle E_p \cdot E_s{}^* \rangle$ et $\langle E_s \cdot E_p{}^* \rangle$ (ou à C et S) sont nuls. Il ne reste plus alors que 6 coefficients réels indépendants :

$$\begin{pmatrix} \langle E'_p E'_p{}^* \rangle \\ \langle E'_s E'_s{}^* \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (pp)(pp)^* (ps)(ps)^* \\ (ps)(ps)^* (ss)(ss)^* \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \langle E_p E_p{}^* \rangle \\ \langle E_s E_s{}^* \rangle \end{pmatrix} \quad (8)$$

$$\begin{pmatrix} \langle E'_p E'_s{}^* \rangle \\ \langle E'_s E'_p{}^* \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (pp)(ss)^* (ps)(sp)^* \\ (ps)(sp)^* (ss)(pp)^* \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \langle E_p E_s{}^* \rangle \\ \langle E_s E_p{}^* \rangle \end{pmatrix}$$

$$\begin{aligned} \left\| \begin{array}{l} I' \\ M' \end{array} \right\| &= \left\| \begin{array}{ll} a_1 & b_1 \\ b_1 & a_2 \end{array} \right\| \cdot \left\| \begin{array}{l} I \\ M \end{array} \right\| \\ \left\| \begin{array}{l} C' \\ S' \end{array} \right\| &= \left\| \begin{array}{ll} a_3 & b_2 \\ -b_2 & a_4 \end{array} \right\| \cdot \left\| \begin{array}{l} C \\ S \end{array} \right\| \end{aligned} \quad (S')$$

On peut remarquer que la disposition géométrique présentement étudiée est précisément celle sur laquelle on travaille en ellipsométrie. Mais là on ne détermine habituellement que 2 coefficients réels, alors que, même pour des milieux symétriques, ce qu'on supposera pour simplifier, on pourrait en déterminer 6 comme on vient de le voir. On peut se demander ce que sont devenus les 4 autres. On utilise, en ellipsométrie, une onde incidente polarisée linéairement cohérente, donc $I^2 = M^2 + C^2 + S^2$. Contrairement à ce que l'on pourrait penser cette relation n'apporte pas de contrainte : en effet cette relation étant du second degré elle n'empêche pas de créer des états qui comportent quatre combinaisons de I , M , C et S linéairement indépendantes, à condition d'introduire pour l'onde incidente ou de produire à partir de celle-ci des ondes ayant la polarisation circulaire (comme dans [3]). En fait la disparition de deux des coefficients dans la théorie habituelle de l'ellipsométrie vient de ce qu'on ne tient pas compte de la diffusion, c'est-à-dire qu'on admet implicitement que $(ps)(ps)^*$ et $(ps)(sp)^*$ sont nuls ce qui entraîne que $a_2 = a_1$ et $a_3 = a_4$. Il n'est pas nécessaire alors de faire intervenir des ondes ayant de la polarisation circulaire, car on peut déterminer $a_4 = a_3$ et b_2 qui figurent dans (8) même si on a toujours $S = 0$. On peut écrire :

$$\begin{aligned} |\langle E'_p \cdot E_p^* \rangle / \langle E'_s \cdot E_p^* \rangle| &= |(pp)(pp)^* / (ss)(pp)^*| \cdot |\langle E_p \cdot E_p^* \rangle / \langle E_s \cdot E_p^* \rangle| \\ |\langle E'_p \cdot E_s^* \rangle / \langle E'_s \cdot E_s^* \rangle| &= |(pp)(ss)^* / (ss)(ss)^*| \cdot |\langle E_p \cdot E_s^* \rangle / \langle E_s \cdot E_s^* \rangle| \end{aligned} \quad (9)$$

équations qu'on peut ramener à la forme très simple $E'_p/E'_s = (pp)/(ss) \cdot E_p/E_s$ donnant les relations habituelles de l'ellipsométrie. Pour cela il suffit de remarquer que $\langle E'_p \cdot E_p^* \rangle = E'_p \cdot E_p^*$, ... etc., pour des surfaces parfaites et des ondes monochromatiques cohérentes, approximations que l'on fait habituellement en ellipsométrie et où l'on prend E_p , E_s , donc E_p/E_s , fixes et réels. Quant à la disparition des deux autres coefficients elle vient de ce qu'on ne mesure pas l'intensité de l'onde incidente, ni exactement l'angle que fait la direction de polarisation avec le plan d'incidence (on pourrait dire encore qu'on ne fait, sur le faisceau réfléchi, que des mesures de variations du rapport E'_p/E'_s et non des mesures absolues) : on perd ainsi deux coefficients mais qui sont peu intéressants dans ce genre d'étude.

Si maintenant on veut tenir compte de l'effet des rugosités, le problème dans toute sa généralité devient très complexe. Toutefois pour essayer de l'aborder simplement dans le modèle habituel on va isoler arbitrairement certaines contributions à l'onde réfléchie : la composante E_p (ou E_s) de l'onde incidente va donner après deux diffusions sur la surface une contribution (pp) (ou (ss)) au champ E'_p (ou E'_s) et une contribution (ps) (ou (sp)) au champ E'_s (ou E'_p). Les termes complexes (ps) et (sp) peuvent être nuls en moyenne pour les diffusions considérées, mais ils sont corrélés si bien que, si pour $\langle E'_p \rangle$ et $\langle E'_s \rangle$ leur effet est nul après moyenne sur différentes surfaces, il n'est pas nul pour $\langle E'_p/E'_s \rangle$. On peut s'attendre à ce que cet effet soit, en gros, de la forme $\sum \left(\frac{P + px^2}{S + sx^2} + \frac{P - px^2}{S - sx^2} \right)$ x étant l'amplitude des rugosités. Cette fonction, qui donne l'effet de la dépolarisation, est très faible pour x faible mais augmente vite ensuite. Cette variation serait encore plus accentuée pour les diffusions triples, quadruples, ..., x intervenant alors à la puissance 3, 4, ... Quant aux contributions (pp) et (ss) elles ne sont pas nulles en moyenne et doivent être prépondérantes pour les faibles rugosités. Finalement, pour ces faibles rugosités, en ne conservant que l'effet

moyen de (pp) et (ss), on doit pouvoir continuer à utiliser la méthode des amplitudes, mais pour les fortes rugosités il serait plus sûr et probablement plus simple d'adopter la méthode des moments d'ordre 2. Il serait normal d'ailleurs de faire toute la présentation théorique en ellipsométrie avec de tels moments, car la caractérisation expérimentale de l'onde réfléchie se fait toujours finalement par des mesures de flux, donc par de tels moments.

4.2 DIFFUSION VERS L'AVANT OU L'ARRIÈRE EN INCIDENCE NORMALE. — Bien qu'il ait été écrit plus haut qu'on ne considérerait pas la diffusion par transmission en présence de surface, on traitera quand même la diffusion vers l'avant, puisqu'on s'intéresse ici aussi à la diffusion en volume.

4.2.1 Milieu isotrope sans plan de symétrie. — On en revient pour le dispositif à un seul axe de symétrie mais de révolution cette fois ; dans un deuxième temps, on adjoindra un plan de symétrie. Alors la diffusion doit se faire soit vers l'avant soit vers l'arrière et les simplifications supplémentaires présentées en [2] n'existent avec une surface diffusante que si la diffusion a lieu suivant la normale à son plan moyen P : $\Theta_1 = 0$, $\Theta_2 = 0$ ou π . On va trouver ces simplifications en exprimant que les relations matricielles se conservent pour toute rotation autour de cette normale. Il est naturel de prendre comme base les combinaisons $E_p + iE_s$ et $E_p - iE_s$ correspondant aux ondes polarisées circulairement et pour les moyennes :

$$\begin{aligned} \langle (E_p + iE_s) \cdot (E_p^* - iE_s^*) \rangle &= M + iC, & \langle (E_p + iE_s) \cdot (E_p^* + iE_s^*) \rangle &= I + S \\ \langle (E_p - iE_s) \cdot (E_p^* - iE_s^*) \rangle &= I - S, & \langle (E_p - iE_s) \cdot (E_p^* + iE_s^*) \rangle &= M - iC \end{aligned} \quad (10)$$

la première étant multipliée et la quatrième divisée par $\exp(4\pi i\omega)$ pour une rotation des axes de ω , les deux autres restant invariante dans cette rotation. Ne seront liés que les termes qui changent de la même façon par rotation ; notamment $I' + S'$ et $I' - S'$ ne sont fonction que de $I + S$ et $I - S$ ou encore I' et S' ne dépendent que de I et S :

$$\begin{vmatrix} I' \\ S' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} a_1 & b_5 \\ b_5 & a_4 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} I \\ S \end{vmatrix}. \quad (11)$$

Pour la première et la quatrième combinaison il faut traiter séparément diffusion vers l'avant et diffusion vers l'arrière. Pour la diffusion vers l'avant, une rotation d'un angle ω de l'onde incidente par rapport aux axes $O_1 x_1 y_1 z_1$ fait tourner l'onde diffusée d'un même angle par rapport aux axes $O'_1 x'_1 y'_1 z'_1$, il en résulte que :

$$\begin{vmatrix} M' + iC' \\ M' - iC' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} 2d_1 & 0 \\ 0 & 2d_2 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} M + iC \\ M - iC \end{vmatrix}$$

d'où

$$\begin{vmatrix} M' \\ C' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} d_1 + d_2 & i(d_1 - d_2) \\ -i(d_1 - d_2) & d_1 + d_2 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} M \\ C \end{vmatrix};$$

ces matrices de liaison doivent donc avoir leurs termes non diagonaux opposés, contraintes qui sont les mêmes que celles imposées par (7') et on peut écrire :

$$\begin{vmatrix} M' \\ C' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} a_2 & -b_4 \\ b_4 & a_2 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} M \\ C \end{vmatrix}. \quad (12)$$

Il y a au total 5 coefficients réels indépendants.

En rétrodiffusion la même rotation de l'onde incidente fait tourner l'onde diffusée d'un angle opposé par rapport à ces axes, donc :

$$\begin{vmatrix} M' + iC' \\ M' - iC' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} 0 & 2f_1 \\ 2f_2 & 0 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} M + iC \\ M - iC \end{vmatrix}$$

d'où

$$\begin{vmatrix} M' \\ C' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} f_1 + f_2 & i(f_2 - f_1) \\ i(f_2 - f_1) & -(f_1 + f_2) \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} M \\ C \end{vmatrix}$$

les termes non diagonaux doivent maintenant être égaux mais, comme d'après la même condition (7') ils doivent toujours être opposés, ils ne peuvent être que nuls :

$$\begin{vmatrix} M' \\ C' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} a_2 & 0 \\ 0 & a_2 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} M \\ C \end{vmatrix}. \quad (13)$$

Au total il n'y a que 4 coefficients réels indépendants.

4.2.2 Milieu présentant des plans de symétrie. — Enfin, toujours dans cette disposition des ondes, si on introduit un plan de symétrie le milieu devient « symétrique » et une symétrie par rapport au plan d'incidence laisse invariants I et M et change le signe de C et S : il n'y a plus de couplage entre I et S ni entre M et C , les termes b sont nuls ; il n'y a plus, dans les deux cas, que 3 paramètres réels indépendants.

4.3 AUTRES CAS POUR LES MILIEUX PRÉSENTANT DES PLANS DE SYMÉTRIE. — Dans ce paragraphe 4.3 on va traiter l'autre cas envisagé : celui où l'adjonction d'une surface diminue l'ensemble des symétries du dispositif. L'axe de symétrie, de révolution ou non, doit disparaître, sinon on verrait facilement qu'on est ramené aux cas précédents. Comme éléments possibles de symétrie il ne reste plus que deux plans, plans dont l'existence exige que le milieu soit « symétrique », ce que l'on supposera être à partir de maintenant. Un de ces plans est bissecteur de \mathbf{k}_i , $-\mathbf{k}_d$; l'autre, perpendiculaire au premier, contient \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_d . On ne peut avoir ici les deux à la fois, ce qui réintroduirait l'axe de symétrie, et la surface doit être perpendiculaire au plan unique de symétrie.

4.3.1 Diffusion « conique ». — Dans le premier cas on a alors $\Theta_1 = \Theta_2$ et il faut que φ soit différent de 0 sinon le plan d'incidence serait aussi plan de symétrie. Le rayon diffusé et le rayon incident seront sur un même cône de révolution axé sur la normale à P. Un raisonnement fondé sur le théorème de réciprocité, analogue à celui qui conduit à (7), montre que la matrice 4×4 devient symétrique par rapport à la diagonale principale, car ici

$$\begin{vmatrix} \langle E'_p E'_p \rangle \\ \langle E'_s E'_s \rangle \\ \langle E'_p E'_s \rangle \\ \langle E'_s E'_p \rangle \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} (pp)(pp)^* & (ps)(ps)^* & (pp)(ps)^* & (ps)(pp)^* \\ (ps)(ps)^* & (ss)(ss)^* & (ps)(ss)^* & (ss)(ps)^* \\ (pp)(ps)^* & (ps)(ss)^* & (pp)(ss)^* & (ps)(sp)^* \\ (ps)(pp)^* & (ss)(ps)^* & (ps)(sp)^* & (ss)(pp)^* \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} \langle E_p E_p \rangle \\ \langle E_s E_s \rangle \\ \langle E_p E_s \rangle \\ \langle E_s E_p \rangle \end{vmatrix} \quad (14)$$

$$\begin{vmatrix} I' \\ M' \\ C' \\ S' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} a_1 & b_1 & b_3 & -b_5 \\ b_1 & a_2 & b_4 & -b_6 \\ b_3 & b_4 & a_3 & -b_2 \\ b_5 & b_6 & b_2 & a_4 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{vmatrix}, \quad (14')$$

Il y a 10 coefficients réels indépendants.

4.3.2 *Diffusion habituelle.* — Quant à l'autre plan, il sera ici plan de symétrie si la diffusion se fait dans le plan d'incidence : $\varphi = 0$. Ce cas est très important car c'est en général celui des dispositifs expérimentaux actuels. Comme pour l'établissement de (8) la relation matricielle initiale, pour laquelle maintenant il n'y a plus de contrainte, doit rester valable pour un changement de signe des E_s ; la matrice 4×4 se décompose alors en deux matrices 2×2 dont tous les termes restants sont indépendants :

$$\begin{vmatrix} \langle E'_p E'_p \rangle \\ \langle E'_s E'_s \rangle \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} (pp)(pp)^* & (ps)(ps)^* \\ (sp)(sp)^* & (ss)(ss)^* \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} \langle E_p E_p \rangle \\ \langle E_s E_s \rangle \end{vmatrix} \quad (15)$$

$$\begin{vmatrix} \langle E'_p E'_s \rangle \\ \langle E'_s E'_p \rangle \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} (pp)(ss)^* & (ps)(sp)^* \\ (sp)(ps)^* & (ss)(pp)^* \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} \langle E_p E_s \rangle \\ \langle E_s E_p \rangle \end{vmatrix}$$

$$\begin{vmatrix} I' \\ M' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} a_1 & b_3 \\ b_1 & a_2 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} I \\ M \end{vmatrix} \quad (15')$$

$$\begin{vmatrix} C' \\ S' \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} a_3 & -b_4 \\ b_2 & a_4 \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} C \\ S \end{vmatrix}$$

Si l'observation de la diffusion est vers l'avant ou vers l'arrière, il n'y a pas de simplification supplémentaire sauf si l'incidence est normale (application possible au radar qui fonctionne souvent en rétrodiffusion).

Il y a 8 coefficients réels indépendants.

5. Coefficients d'ordre supérieur à 2.

Après cette étude détaillée du cas le plus simple, celui des coefficients d'ordre 2, il y aurait à considérer les coefficients ou moments d'ordre plus élevé. Pour $N = 4$ et rien qu'en se limitant à un seul vecteur d'onde diffusé avec toujours un seul incident, il y aura pour chacun 9 paramètres à faire intervenir — les associations de chaque terme de l'ensemble (pp, ps, ss) avec chaque terme de $(p^* p^*, p^* s^*, s^* s^*)$ — et donc 81 coefficients possibles. On pourrait en faire l'étude en généralisant la méthode élémentaire suivie pour $N = 2$. Peut-être serait-il plus rapide de s'appuyer sur la remarque suivante : les paramètres qu'on peut considérer, après combinaison linéaire si nécessaire, comme une base de représentation des symétries du dispositif ne peuvent être liés par des coefficients que s'ils appartiennent à la même représentation irréductible de chaque symétrie (la théorie des représentations est exposée dans presque tous les ouvrages sur les groupes, par exemple [5]). Mais il serait trop long de poursuivre dans cette voie. Il importe de discuter des problèmes qui se posent dans le domaine expérimental. On le fera d'abord dans le cas général.

6. Surfaces à utiliser.

On va s'intéresser d'abord à la taille du spécimen à étudier. Il faut que les dimensions de la surface éclairée et diffusante soient grandes devant la distance de corrélation des rugosités (il peut y avoir plusieurs distances : on en verra un exemple plus loin). Dans la pratique actuelle on opère le plus souvent sur de très grandes surfaces. Soit donc, pour commencer, une surface qu'on prendra en forme de carré de côté L , suffisamment grande pour qu'on puisse, par la pensée, décomposer son plan moyen en un pavage de carrés élémentaires égaux, dont la longueur des côtés 1 est déjà grande devant la distance de corrélation. Un carré centré en un

point de coordonnée plane ρ_j donne la contribution, non corrélée avec les autres, $E_j = A_j(\mathbf{k}_{ti}, \mathbf{k}_{td}) \exp 2 \pi i (\mathbf{k}_{ti} - \mathbf{k}_{td}) \cdot \rho_j$ au champ total E_0 qui règne au centre du diaphragme de sortie placé près du récepteur. Les fonctions aléatoires A_j ont leurs propriétés statistiques qui varient lentement en général en fonction de $|\mathbf{k}_{ti} - \mathbf{k}_{td}|$ mais, par contre, les phases relatives des E_j varient très rapidement du fait principalement des facteurs exponentiels de sorte que les contributions A_j au champ total E_0 se font avec des déphasages qui oscillent très rapidement. Il s'ensuit que les moyennes spatiales peuvent être faites sur une seule surface, comme il a été écrit plus haut, en faisant les moyennes sur un petit intervalle $|\mathbf{k}_{ti} - \mathbf{k}_{td}|$, soit, par exemple, en faisant varier Θ_2 . A partir d'un très grand nombre de telles surfaces ou, comme on vient de le voir, en agissant sur un angle Θ il serait intéressant de déterminer les histogrammes des composantes réelles et imaginaires du champ E_0 au centre du diaphragme ; quoique compliquée, cette détermination directe serait possible mais les différents moments d'ordre deux et supérieurs peuvent donner déjà de bonnes informations à ce sujet. On doit s'attendre à ce que ces histogrammes se rapprochent de plus en plus d'une loi de Gauss (ou de type Rayleigh si on travaille sur les modules) au fur et à mesure que L augmente, le nombre de contributions E_j augmentant aussi. Ceci est en faveur de l'emploi de petites surfaces puisqu'il s'agit de caractériser l'état de surface ou d'en distinguer les différents types.

Mais sur le choix de ces dimensions et du reste de la géométrie du dispositif pèsent d'autres contraintes que l'on va voir. On est amené à mesurer les amplitudes elles-mêmes quand elles apparaissent dans un moment avec une puissance impaire. Ces mesures devraient être faites par superposition avec une onde de référence au niveau du récepteur ; elles demandent que la différence de phase entre l'amplitude de chaque ondelette A_j prise maintenant sur le récepteur et celle de l'onde de référence soit constante sur toute la surface du récepteur. Grâce à une optique il est possible de réaliser de façon convenable cette constance pour une ondelette particulière, celle du carré central par exemple. Pour toutes les autres elle devra l'être alors également à une faible fraction de 2π près. Il en sera ainsi si la différence de marche entre les chemins reliant deux points fixes du spécimen éclairé et diffusant à un point du récepteur varie très peu quand ce dernier point décrit toute la surface du diaphragme, le maximum de cette variation devant être une faible fraction de λ : c'est-à-dire que la surface utile du spécimen doit être sensiblement l'aire de cohérence habituelle déterminée par la géométrie du côté récepteur de l'appareillage. Cette dernière condition exprime aussi que le carré de l'amplitude de E reste pratiquement constant sur toute la surface du diaphragme, condition nécessaire quand on veut que les mesures donnent une bonne représentation du champ diffusé. Ceci est nécessaire en théorie dans tous les cas.

On va donner un ordre de grandeur de ces contraintes. Si R est la distance spécimen pupille et $S = L^2$ la surface éclairée de ce spécimen, la condition précédente sera satisfaite si le produit de la surface $\delta\sigma$ du diaphragme par l'angle d'ouverture $\delta\Omega = S \cdot \cos \Theta_2 / R^2$ est inférieur au carré de la longueur d'onde. Par exemple si Θ_1 et $\Theta_2 = 0$, si $R = 50$ cm et $\lambda = 0,5 \mu\text{m}$ et si le diamètre de la surface éclairée est 5 mm, celui de pupille doit être bien inférieur à $50 \mu\text{m}$. On voit l'intérêt de travailler sur de petites surfaces : l'étendue du faisceau utile est limitée mais si on diminue la surface éclairée on peut augmenter en proportion la surface du diaphragme sans perdre de flux, le montage mécanique peut être moins précis. Quand $N = 2$ (sauf pour le cas de deux ondes diffusées) on a à faire des mesures de paramètres de Stokes qui se ramènent à des mesures directes de flux par le récepteur et intervenant linéairement dans les moyennes cherchées, les contraintes sont beaucoup moins lourdes et on peut en général utiliser de grandes surfaces de spécimen éclairées et de diaphragme. On gagne en rapport signal sur bruit et la moyenne spatiale est déjà faite en partie.

7. Discussion.

En résumé il y aurait un grand nombre de mesures à faire. Mais comment les exploiter est la question qui se pose. On ne sait pas d'une façon générale résoudre le problème inverse, c'est-à-dire remonter directement de ces mesures aux propriétés intéressantes du spécimen. Il faut procéder par modèles, modèles qu'on pourra compliquer de plus en plus en passant par exemple de la diffusion unique à la diffusion multiple — double, triple... — en augmentant les types de diffuseurs, en variant leurs distributions, etc...

Lorsque la surface a un effet prédominant, deux modèles simples — à facettes et « à réseaux » — peuvent servir de point de départ à des modèles plus élaborés. Dans le premier on suppose que l'onde incidente se réfléchit sur une facette suivant les lois de l'optique géométrique et ne se réfléchit qu'une seule fois sur la surface. Ce modèle demande que l'amplitude des rugosités soit grande devant la longueur d'onde. Dans le modèle à réseaux, qui s'applique au contraire pour les faibles rugosités et les faibles pentes, on considère les ondulations de la surface comme la superposition d'un grand nombre de réseaux sinusoidaux élémentaires, chacun d'amplitude très faible. Cela revient à exprimer la cote u de tout point de la surface comme une série de Fourier :

$$u = \sum_K f_K \cdot \exp 2 \pi i (\mathbf{K} \cdot \boldsymbol{\rho}) . \quad (16)$$

De plus on admet que chaque ondulation f_K diffuse indépendamment des autres.

Dans beaucoup de cas intéressants (surfaces polies en particulier) ce modèle « à réseaux » à une seule diffusion, le seul utilisé dans la suite, donne déjà de très bonnes approximations. L'amplitude diffusée par la surface est le produit de f_K par un terme qui, pour la polarisation s , varie lentement avec Θ_2 , Θ_1 étant fixé, mais qui, pour la polarisation p , varie beaucoup et même s'annule et change de signe si Θ_1 se trouve dans un certain domaine. La théorie à employer ici doit nécessairement être « vectorielle » (par opposition aux théories scalaires) puisque les angles Θ_1 et Θ_2 peuvent approcher $\pi/2$ dans les expériences et que la polarisation joue un rôle très important. La référence [6] concerne l'un des très rares exposés bibliographiques sur la question. La méthode de Green permet de traiter l'effet des rugosités, des diffuseurs dans la masse et des couches de passage simultanément sans beaucoup de calculs [7]. Le coefficient $(pp)(pp)^*$, qui est positif, devrait donc s'annuler (expérimentalement la diffusion présente un minimum très accusé pour des valeurs de Θ_1 et Θ_2 légèrement différentes d'ailleurs de celles que prévoit la théorie simple [8]). Quant au coefficient $(pp)(ss)^*$, il devrait changer de signe ; ce coefficient figure dans la deuxième matrice (15) dont on ne mesure pas en général les coefficients ce qui serait pourtant intéressant à faire. Par ailleurs comme ce modèle « à réseaux » fait intervenir un nombre restreint de paramètres — les termes croisés $(ps)(ps)^*$ et $(sp)(sp)^*$ sont nuls — et que d'autre part on peut faire des mesures pour des valeurs de Θ_1 et Θ_2 s'étendant sur un large domaine, les coefficients $(pp)(pp)^*$ et $(ss)(ss)^*$ qui figurent dans (15) sont déterminés avec une grande redondance. Dans de nombreuses expériences sur des surfaces polies on a trouvé que les termes « croisés » ne sont pas tout à fait nuls, le flux reçu par le récepteur variant très peu avec Θ_2 : c'est une bonne indication de possibilité de diffusion multiple ou de diffusion dans la masse par des diffuseurs qui n'ont pas la symétrie sphérique.

Pour aller plus loin il faudrait examiner les voies où on peut affiner le modèle « à réseaux » : couches de passage, diffusions multiples de surface et diffusion dans la masse. On va commencer par ces dernières. Si Θ_1 est différent de Θ_2 et si les défauts en volume n'ont aucune corrélation avec ceux en surface, tous les coefficients $(qr)(uv)^*$ sont la somme de deux termes indépendants : l'un, prépondérant, que l'on vient de voir, de surface et l'autre de

volume. Si les défauts en volume sont ponctuels, les variations de leur diffusion en fonction de Θ_1 et Θ_2 devraient suivre, en gros, celles de la diffusion de surface mais d'une façon qui dépend de l'indicatrice de diffusion de ces défauts.

Les diffusions multiples au contraire, étant donné le grand nombre de parcours possibles, doivent conduire à des variations lentes en fonction des Θ aussi bien en s qu'en p . Parmi les différentes fréquences spatiales $|\mathbf{K}|$ des rugosités celles pour lesquelles $1/|\mathbf{K}|$ est voisin des longueurs d'onde de la lumière dans l'air et le milieu doivent jouer un rôle important. En effet elles créent avec une relativement grande excitation des ondes, qu'on peut appeler au sens large de surface, qui ont ensuite une forte probabilité de se rediffuser. Ces ondes sont retardées par rapport à la diffusion simple ; elles apportent des contributions différentes, mais partiellement corrélées, à (pp), (ps), (sp), (ss) et entraînent donc des changements dans l'état de polarisation. Ces quelques remarques donnent à penser que, par une étude approfondie, on devrait pouvoir préciser l'origine des écarts que l'on observe par rapport au modèle « à réseaux ».

Quant aux produits d'ordre supérieur à 2, on va donner un exemple de l'intérêt qu'ils peuvent présenter. Toujours dans la diffusion par les surfaces polies, grâce au modèle « à réseaux », l'étude expérimentale permet de remonter directement au spectre de puissance de ces rugosités [9] : on trouve alors que la décroissance de ce spectre est, pour le verre poli au feu (« float glass »), en $1/\mathbf{K}^2$ quand le vecteur d'onde $\mathbf{K} = \mathbf{k}_{td} - \mathbf{k}_{ti}$ des rugosités augmente et en $1/|\mathbf{K}|$, du moins pour une partie du spectre, pour le verre poli mécaniquement. Cela peut s'expliquer par des rugosités en forme de rayures pour le poli mécanique et, pour le poli au feu, par des ondes de capillarités thermiques qui existent à la surface et qui se figeraient quand la température du verre baisse, en accord avec les modes de fabrication. Or, dans le montage habituel où on n'étudie la diffusion que dans le plan d'incidence, les rayures ne diffusent dans ce plan que si elles lui sont perpendiculaires et alors donnent une très forte diffusion dans tout ce plan ; il doit donc y avoir corrélation entre les intensités $\langle E^2(\Theta_2) \rangle$ et $\langle E^2(\Theta'_2) \rangle$ diffusées dans ce plan suivant les angles Θ_2 et Θ'_2 quels que soient ces angles et $\langle E^2(\Theta_2) \cdot E^2(\Theta'_2) \rangle$ doit être plus grand que $\langle E^2(\Theta_2) \rangle \cdot \langle E^2(\Theta'_2) \rangle$. Tandis que pour le verre poli au feu il n'y a pas de raison pour qu'une telle corrélation existe entre les différentes ondes superficielles qui « créent » la diffusion dans ces deux angles Θ_2 et Θ'_2 , du moins en première approximation, et on doit avoir :

$$\langle E^2(\Theta_2) \cdot E^2(\Theta'_2) \rangle = \langle E^2(\Theta_2) \rangle \cdot \langle E^2(\Theta'_2) \rangle .$$

Pour le verre poli mécaniquement, doit donc apparaître une deuxième distance de corrélation liée à la longueur des rayures. Cette distance, qui est très grande, n'a pas été déterminée expérimentalement car la lumière diffusée correspondant à la portion du spectre qu'il aurait fallu déterminer est dans une direction trop voisine de celle de la lumière réfléchie spéculairement [9]. D'une façon générale la détermination de la partie du spectre correspondant aux faibles fréquences spatiales devrait être très intéressante mais ne peut évidemment se faire que sur de grandes surfaces et par conséquent sur de grands montages : notamment avec de grandes distances spécimen diaphragme.

Pour terminer on signalera une autre catégorie très importante de modèles : celle où l'amplitude diffusée par une somme de défauts est la somme des amplitudes diffusées par chacun d'eux, les diffusions multiples qui font intervenir plusieurs défauts étant négligeables. Le modèle « à réseaux » en est un exemple ; un autre, très simple, est constitué par une surface presque parfaite, pas ou très peu diffusante, sauf en certaines plages séparées les unes des autres par des distances grandes devant leurs dimensions propres (piqûres, poussières). S'il y a M plages diffusantes, qu'on supposera pour simplifier de même forme et superposables par translation, la position de chacune étant caractérisée par ρ_j , chaque

coefficient D est déterminé par la moyenne obtenue en faisant varier tous les j sur la surface diffusante de

$$\prod_{g', N} \sum_{g, N} \sum_{j=1}^M \beta_{g'g} \cdot \exp 2 \pi i (\varepsilon_{i,g} \cdot \mathbf{k}_{ti,g} - \varepsilon_{d,g'} \cdot \mathbf{k}_{td,g'}) \cdot \rho_j \quad (17)$$

où les nombres $\beta_{g'g}$ sont soit $\alpha_{gg'}$, soit $\alpha_{gg'}^*$, suivant que le nombre $\varepsilon_{d,g'}$ correspondant vaut $+1$ ou -1 ; ces $\alpha_{gg'}$ et $\alpha_{gg'}^*$ sont ceux qui figurent dans les équations (2) ou (2') dans le cas d'une surface ne comportant qu'une plage diffusante. Si les relations (3) ne peuvent être satisfaites par un sous-ensemble de n couples $\varepsilon_{i,g}$, $\mathbf{k}_{ti,g}$ et de n couples $\varepsilon_{d,g'}$, $\mathbf{k}_{td,g'}$ de l'ensemble des $2N$ couples associé à D , pour un $n < N$, tout terme obtenu dans le développement des sommes de (17) qui comportera des ρ relatifs à deux ou plusieurs plages disparaîtra dans la moyenne ; un tel coefficient D pourra être appelé simple, sa valeur est proportionnelle au nombre M de plages. Les coefficients non simples de plus faible ordre sont ceux relatifs à la diffusion vers l'avant et à la diffusion dans la direction du rayon réfléchi, pour $N = 2$ (paragraphe 4.1 et 4.2) ; ils correspondent évidemment au même dispositif que pour les D_1 trouvés pour $N = 1$ (début du paragraphe 4). Pour illustrer ceci l'exemple le plus élémentaire est celui de la diffusion en volume de molécules sphériques toutes semblables : l'intensité diffusée est proportionnelle au nombre de molécules sauf vers l'avant où elle est proportionnelle au carré de ce nombre car l'amplitude diffusée par chaque molécule est alors en phase avec celle des autres.

8. Conclusion.

En somme, l'interprétation de la diffusion de la lumière par des milieux où la surface joue un rôle important conduira probablement à proposer des modèles de plus en plus compliqués. A mesure que l'on progressera dans leur élaboration, on devrait être amené à faire un nombre croissant de mesures : d'abord pour déterminer les paramètres de plus en plus nombreux de ces modèles, mais aussi et plus encore pour avoir une redondance nécessaire, dans cette voie indirecte, à leur crédibilité. Le classement donné dans cet article, et la méthode suivie pour l'établir, pourrait aider à faire des choix sûrs et judicieux parmi la très grande variété des mesures possibles ; il pourrait aider aussi à relier les résultats expérimentaux ainsi obtenus aux propriétés physiques des spécimens. D'autre part, si une présentation classique a été adoptée, il n'y aurait que peu de choses à changer pour avoir une présentation quantique : E et E^* devraient être remplacés par des opérateurs destruction et création et les moments d'ordre 2 deviendraient des matrices densité associées aux états de spin. Comme les raisonnements sont fondés sur les propriétés d'invariance aux symétries et à l'inversion du temps, les résultats se transposent immédiatement à des particules de spin différent en tenant compte de la façon dont les matrices densité se transforment par le renversement du temps ou par ces symétries.

Remerciements.

Les expériences citées dans cet article ont été réalisées par Monsieur Prod'homme. Je tiens à remercier Monsieur J. Meunier pour avoir relu le manuscrit et pour les suggestions, nombreuses et utiles, qu'il a formulées.

Bibliographie

- [1] VAN DE HULST H. C., *Light Scattering by Small Particules* (Wiley réimprimé par Dover) 1957, chapitre 4.
- [2] SWINDELL W., *Polarized Light* (Halsted press) 1975 (réimpression d'articles en particulier de [3]).
- [3] PERRIN F., *J. Chem. Phys.* **18** (1942) 415.
- [4] LANDAU L. et LIFCHITZ E., *Electrodynamique des milieux continus* (Editions Mir, Moscou) 1969, Chapitre X.
- [5] WEYL H., *The Group Theory and Quantum Mechanics* (Dover).
- [6] ELSON J. M. and BENNETT J. M., *Opt. Eng.* **18** (1979) 116.
- [7] CROCE P., *Nouv. Rev. Opt.* **14** (1983) 213.
- [8] CROCE P. et PROD'HOMME L., *Nouv. Rev. Opt.* **7** (1976) 121.
- [9] CROCE P. et PROD'HOMME L., *Opt. Commun.* **35** (1980) 20.