APPLICATION DES RELATIONS DE DISPERSION A LA DÉTERMINATION SIMULTANÉE DE L'ÉPAISSEUR ET DE L'INDICE COMPLEXE D'UNE COUCHE MINCE MÉTALLIQUE

Par Mme C. FROISSART,

Institut d'Optique et Faculté des Sciences de Paris.

(Reçu le 24 avril 1969.)

Résumé. — On montre que les relations de dispersion (Kramers-Kronig) peuvent être appliquées non seulement à des matériaux massifs mais également à la réflexion et à la transmission sur des couches minces métalliques. Il est alors possible de déterminer l'indice complexe $n - ik$ et l'épaisseur d de la couche. Deux exemples sont donnés pour l'or et l'acier.

Abstract. — It is shown that the dispersion (Kramers-Kronig) relations can be used not only for reflection on bulk materials but for the reflection and transmission through a thin metallic film. It is thus possible to determine both the complex refractive index $n - ik$ and the thickness d of the film from reflection and transmission measurements only. Two examples are given concerning gold and iron.

1. Introduction. — Il existe de nombreuses méthodes de détermination des constantes optiques et de l'épaisseur des couches minces. Il serait trop long d'en donner ici une nomenclature détaillée; nous remarquerons seulement que la détermination simultanée de l'indice complexe $n - ik$ et de l'épaisseur d est à la fois beaucoup moins courante et beaucoup plus compliquée. Nous indiquons dans cet article une nouvelle méthode permettant de connaître en même temps n , k et d . Elle utilise les mesures spectrophotométriques des facteurs de réflexion R et de transmission T sous incidence normale uniquement et fait appel aux relations de dispersion (Kramers-Kronig). Cette méthode nous paraît intéressante pour plusieurs raisons :

a) Son emploi est très simple du point de vue expérimental et ne nécessite pas un équipement de laboratoire très élaboré. Toutefois, la simplicité des manipulations est compensée par la complexité des calculs numériques, ce qui ne présente pas un inconvénient majeur si l'on possède un calculateur électronique.

b) Elle permet d'obtenir l'épaisseur des couches avec une très bonne précision sans que l'on soit obligé de détruire la couche comme l'exigent les mesures interférentielles.

c) Elle s'applique à des couches d'épaisseurs quelconques, ce qui est particulièrement intéressant dans le cas de couches très minces. En effet, si l'on désire déterminer n , k et d à partir de mesures photométriques uniquement, on peut envisager de mesurer non seulement R et T mais aussi le facteur de réflexion côté support R' . On dispose ainsi, pour chaque longueur d'onde, de trois mesures permettant, en principe, de

déterminer les trois quantités n , k et d . Or, pour des couches très minces, c'est-à-dire lorsque le rapport d/λ est très inférieur à l'unité, les trois grandeurs R , R' et T ne sont plus indépendantes. On est donc obligé d'avoir recours à des mesures en incidence oblique, ce qui complique beaucoup le montage expérimental.

La relation de Kramers-Kronig permet de calculer le déphasage à partir du facteur de réflexion. Il en résulte que le calcul simultané de n , k et d est possible puisqu'à trois inconnues il correspond trois relations R , T et δ_r , indépendantes entre elles.

Depuis une vingtaine d'années, les relations de dispersion sont souvent utilisées par les chercheurs, non seulement pour déterminer les constantes optiques, mais aussi pour discuter des transitions interbandes et des oscillations de plasma; ces études étant faites en général sur des métaux massifs ou des cristaux [1-10].

Dans ce qui suit, nous rappellerons la relation de Kramers-Kronig dans le cas simple de la réflexion sur une face plane séparant deux milieux d'épaisseurs infinies. Nous montrerons que cette relation reste valable dans le cas d'une couche mince absorbante. Nous exposerons ensuite les procédés utilisés pour déterminer n , k et d . Remarquons dès maintenant que les mesures expérimentales ne s'étendent jamais de zéro à l'infini, ce qui est nécessaire pour l'application des relations de dispersion. Il en résulte que l'on doit introduire un terme correctif qui peut être plus ou moins arbitraire même si l'on tient compte du comportement de la couche dans les régions des faibles et grandes énergies. Nous verrons enfin l'application de cette méthode à deux types distincts de couches minces

métalliques : *a*) Couche présentant des variations importantes de R et de T (or); *b*) Couches présentant des variations lentes des mêmes grandeurs (acier).

2. Les relations de dispersion. — Les relations de dispersion relatives à une fonction complexe sont valables dans le cas d'équations linéaires et lorsque le principe de causalité est respecté. Ceci implique que la réponse à un signal donné n'ait pas lieu avant le départ du signal. Ces relations, souvent employées en électricité, se présentent toujours sous la forme d'équations intégrales, reliant les parties imaginaire et réelle d'une fonction. Elles ont été mises en évidence par Kramers [11] au Congrès de Come en 1927 et par Kronig [12]. Ces auteurs montrent que les relations de dispersion sont applicables à la constante diélectrique et à l'indice de réfraction d'une substance, ces deux grandeurs étant considérées comme des fonctions de la fréquence. L'intérêt de ce travail s'est révélé très grand et beaucoup de chercheurs ont discuté depuis des relations de dispersion, aussi bien du point de vue théorique que de leurs applications et justifié leur utilisation à la mesure des constantes optiques et à la détermination du déphasage. C'est le cas de Bell [13] et surtout de Toll [14], Stern [15] et Moss [16].

Pour notre part, nous nous sommes servis d'une relation indiquée par Bode [17] qui permet le calcul de la partie imaginaire d'une fonction analytique lorsqu'on en connaît la partie réelle dans tout le domaine de fréquence.

Soient A et B les parties réelle et imaginaire d'une fonction $\theta = A + iB$. Bode impose à θ les conditions suivantes ([17], page 278) :

- a*) A est une fonction paire de la fréquence;
- b*) B est une fonction impaire de la fréquence;
- c*) Il n'existe pas de singularités à l'intérieur du demi-plan d'intégration (demi-cercle);
- d*) S'il existe des singularités en un point ω_0 de l'axe des fréquences réelles, elles doivent être telles que $(\omega - \omega_0)\theta$ tend vers zéro quand ω tend vers ω_0 . Ceci suppose qu'il n'y a pas de pôles sur l'axe des fréquences réelles, mais qu'il peut exister des singularités logarithmiques;
- e*) θ est une fonction analytique pour toutes les fréquences comprises entre zéro et l'infini.

Si θ vérifie les conditions énoncées ci-dessus, Bode démontre que A et B ne sont pas indépendants et qu'il existe entre eux la relation suivante ([17], page 307) :

$$B_0 = \frac{2\omega_0}{\pi} \int_0^\infty \frac{A - A_0}{\omega^2 - \omega_0^2} d\omega \quad (1)$$

où ω_0 représente la valeur de la fréquence pour laquelle on veut calculer B_0 et A_0 la valeur de A pour la même fréquence.

Bode transforme la relation (1) et montre qu'elle peut finalement s'écrire ([17], page 318) :

$$B_0 = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{dA}{d\omega} \operatorname{Log} \left| \frac{\omega + \omega_0}{\omega - \omega_0} \right| d\omega. \quad (2)$$

Il s'agit maintenant de discuter la validité de cette relation lors de son application à la réflexion sur une surface séparant deux milieux d'épaisseur infinie.

2.1. RELATION DE DISPERSION DANS LE CAS DE LA RÉFLEXION. — Soient deux milieux caractérisés par les indices n_0 et $n - ik$. Nous savons mesuré le facteur de réflexion $R = |r|^2$ qui est relié au coefficient de Fresnel par la relation $r = |r| e^{i\delta_r}$ où δ_r est le déphasage. De ceci nous déduisons que :

$$\operatorname{Log} r = \operatorname{Log} |r| + i\delta_r.$$

On constate que $\operatorname{Log} r$ et θ se présentent sous une forme analogue, d'où, par analogie avec la relation (2) :

$$\delta_r = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{d}{dE} \operatorname{Log} |r| \operatorname{Log} \left| \frac{E + E_0}{E - E_0} \right| dE \quad (3)$$

où $E = h\nu$ représente l'énergie exprimée en électron-volts.

L'analogie de forme entre $\operatorname{Log} r$ et θ ne suffit pas pour que la relation (2) soit applicable à $\operatorname{Log} r$; il faut également que celui-ci satisfasse aux conditions énoncées pour θ .

2.1.1. $\operatorname{Log} |r|$ est une fonction paire. — Stern [15] démontre que la constante diélectrique $\epsilon_1 - i\epsilon_2$ est telle que ϵ_1 est une fonction paire et ϵ_2 une fonction impaire de la fréquence. D'autre part :

$$\epsilon_1 - i\epsilon_2 = (n - ik)^2$$

ce qui s'écrit :

$$n^2 - k^2 = \epsilon_1$$

et :

$$2nk = \epsilon_2. \quad (4)$$

Or, lorsque la fréquence ω tend vers l'infini, nous savons que ϵ_1 tend vers 1 et que ϵ_2 tend vers zéro. Les relations (4) montrent que n^2 et k se comportent respectivement comme ϵ_1 et ϵ_2 ; il en résulte que n est une fonction paire et k une fonction impaire de la fréquence; par contre, k^2 est une fonction paire de la fréquence.

Le facteur de réflexion s'écrit :

$$R = |r|^2 = \frac{(1 - n)^2 + k^2}{(1 + n)^2 + k^2}$$

si nous considérons que le premier milieu, d'indice n_0 , est l'air ($n_0 = 1$).

De cette dernière expression nous déduisons que R est une fonction paire de la fréquence et par conséquent $|r|$ et $\operatorname{Log} |r|$.

2.1.2. δ_r est une fonction impaire. — Le coefficient de Fresnel r s'écrit :

$$r = |r| e^{i\delta_r} = \frac{(1 - n) + ik}{(1 + n) - ik}.$$

A partir de cette expression, on détermine la valeur de δ_r , soit :

$$\delta_r = \operatorname{Arctg} \frac{2k}{1 - n^2 - k^2}$$

k étant une fonction impaire de la fréquence, il en résulte que δ_r est une fonction impaire.

2.1.3. *Log r est une fonction analytique.* — Nous savons que n et k sont des fonctions de la fréquence et qu'elles ne présentent ni l'une ni l'autre des singularités pour une fréquence quelconque. Il en résulte que n et k sont dérivables par rapport à ω , et par conséquent $\text{Log } r$, celui-ci est donc une fonction analytique de ω comme la fonction θ .

Nous constatons que $\text{Log } r$ vérifie les conditions imposées à la fonction θ , on pourra donc appliquer à $\text{Log } r$ la relation (2) et calculer le déphasage à partir du facteur de réflexion à l'aide de la relation (3).

2.2. RELATIONS DE DISPERSION DANS LE CAS D'UNE COUCHE MINCE. — Nous venons de voir que les relations de dispersion sont valables dans le cas de deux milieux infinis. Lorsqu'il s'agit d'une couche mince, celle-ci est entourée de deux milieux que l'on suppose infinis (air et support). Pour déterminer la valeur du coefficient de Fresnel, on procède comme dans le cas de deux milieux en écrivant les conditions aux limites, aux surfaces de séparations air-couche et couche-support.

Ce que nous avons dit précédemment reste valable, seule l'expression mathématique de r a changé. Cette fonction de ω est maintenant plus compliquée, mais elle conserve les mêmes propriétés analytiques. Il s'ensuit que les relations de dispersion sont valables dans le cas d'une couche mince ainsi que dans celui d'un empilement de couches.

Connaissant le facteur de réflexion R , on pourra donc calculer le déphasage à la réflexion à l'aide de la relation (3).

En remplaçant dans celle-ci $|r|$ par $|t|$, on peut également calculer δ_t . En effet, $|t| = \sqrt{n_0/n_s} \sqrt{T}$, et tant que la mesure de T est possible on peut obtenir δ_t .

Une remarque s'impose au sujet de la transmission. Dans les calculs, nous avons négligé les variations de n_s avec la fréquence, ce qui ne perturbe en rien les résultats, étant donné qu'un simple calcul numérique montre que les variations de T avec l'énergie sont environ 25 fois plus grandes que celles de n_s .

3. **Utilisation des relations de dispersion au calcul de n , k et d .** — Nous avons vu précédemment que les relations de dispersion étaient valables dans le cas d'une couche mince et d'un empilement de couches. Si l'équipement du laboratoire permet la mesure de R et T en incidence normale, dans une certaine région spectrale, il est possible de calculer δ_r et δ_t à l'aide de la relation (3). A partir de mesures d'intensité très simples, nous obtenons donc, pour chaque longueur d'onde, quatre relations indépendantes entre elles, ce qui permet le calcul simultané de n , k et d . En fait, ce calcul exige seulement l'emploi de trois relations, par exemple R , T et δ_r . La relation non utilisée (δ_t) peut servir à vérifier les résultats obtenus. Pour cela, on calcule δ_t à partir de n , k et d et l'on compare la valeur obtenue pour δ_t à celle donnée par la relation de dispersion.

Dans ce travail, nous avons procédé d'une façon un

peu différente. Nous calculons n , k et d à l'aide de R , T et δ_r ou de R , T et δ_t . En outre, nous admettons que l'épaisseur trouvée est la « vraie épaisseur » de la couche lorsque le d calculé comme nous l'avons indiqué est le même à 2 ou 3 Å près. Cette exigence sur la détermination de l'épaisseur nous permet d'obtenir celle-ci avec une très bonne précision, comme nous le verrons.

Le principe de calcul que nous venons d'exposer semble *a priori* d'application très simple, surtout si l'on dispose d'un calculateur électronique. En fait, nous nous heurtons à la difficulté bien connue de tous les utilisateurs des relations de dispersion : pour pouvoir appliquer la relation (3), il est nécessaire de connaître R ou T pour toutes les fréquences. Il est évident que les facteurs de réflexion et de transmission ne sont connus que dans un intervalle spectral limité (E_1 , E_2) (dans notre cas $E_1 = 0,49$ eV et $E_2 = 6,19$ eV) et qu'en dehors de cet intervalle leur mesure précise est impossible. Pour obtenir une valeur de δ_r ou de δ_t aussi exacte que possible, il est donc indispensable de compenser le manque de connaissances expérimentales par l'introduction de termes correctifs. Pour notre part, nous avons résolu le problème de la manière suivante :

La relation (3) peut s'écrire comme une somme de trois intégrales :

$$\frac{\delta_r}{\delta_t} = \frac{1}{\pi} \int_0^{E_1} + \frac{1}{\pi} \int_{E_1}^{E_2} + \frac{1}{\pi} \int_{E_2}^{\infty}$$

$$\frac{\delta_r}{\delta_t} = U + V + W.$$

C'est ainsi qu'ont procédé Andermann, Caron et Dows [18]. Pour connaître la quantité V , il suffit de programmer la relation (3) et d'introduire comme données dans le calculateur électronique l'énergie et les facteurs de réflexion ou de transmission correspondants. Ainsi V est connu définitivement pour une couche donnée. Le problème qui se pose alors est de déterminer U et W . Pour cela nous supposons que, dans un domaine très restreint de fréquences, le terme correctif $U + W$ varie linéairement avec la fréquence ou la longueur d'onde, c'est-à-dire que :

$$U + W = A\lambda + B$$

A et B étant des constantes à déterminer. Dans ce cas, nous ne faisons aucune hypothèse sur la forme de R ou de T dans l'ultraviolet et dans l'infrarouge lointains. Les déphasages s'écrivent donc :

$$\frac{\delta_r}{\delta_t} = V_1 + A_1\lambda + B_1.$$

4. **Démonstration mathématique de la valeur de $U + W$.** — 4.1. VALEUR DE $U + W$ EN FONCTION DE L'ÉNERGIE. — Soit E_0 l'énergie pour laquelle nous voulons calculer $U + W$ et supposons que E_0 soit approximativement au milieu de l'intervalle (E_1 , E_2).

Le terme correctif $U + W$ que nous posons égal à $\delta(E_0)$ s'écrit :

$$\delta(E_0) = \frac{1}{\pi} \int_0^{E_1} f(E) \operatorname{Log} \left| \frac{E + E_0}{E - E_0} \right| dE + \frac{1}{\pi} \int_{E_2}^{\infty} f(E) \operatorname{Log} \left| \frac{E + E_0}{E - E_0} \right| dE.$$

Dans cette expression, $f(E) = \frac{d}{dE} \operatorname{Log} |r|$ ou $\frac{d}{dE} \operatorname{Log} |t|$, c'est-à-dire que $f(E)$ est une fonction bien déterminée et indépendante de E_0 .

Nous étudions maintenant les variations de $\delta(E_0)$. Supposons que l'on groupe les deux termes de l'expression de $\delta(E_0)$. Ceci oblige à ne donner aucune précision sur les bornes de l'intégrale, ni sur la participation respective de U et W . Dans ce cas, nous obtenons :

$$\delta(E_0) = \frac{1}{\pi} \int f(E) \operatorname{Log} \left| \frac{E + E_0}{E - E_0} \right| dE.$$

Soit $E_0 + \varepsilon$ une énergie très voisine de E_0 .

Nous pouvons connaître la valeur de $\delta(E_0 + \varepsilon)$ en faisant un développement en série de Taylor par rapport à $\delta(E_0)$:

$$\delta(E_0 + \varepsilon) = \delta(E_0) + \varepsilon \delta'(E_0) + \frac{\varepsilon^2}{2!} \delta''(E_0) + \frac{\varepsilon^3}{3!} \delta'''(E_0).$$

Calculons la valeur de chacune des dérivées :

$$\delta'(E_0) = \frac{1}{\pi} \int f(E) \left(\frac{1}{E + E_0} - \frac{1}{|E - E_0|} \right) dE$$

$$\delta''(E_0) = \frac{1}{\pi} \int f(E) \left(\frac{1}{(E + E_0)^2} - \frac{1}{(E - E_0)^2} \right) dE.$$

La quantité entre crochets diminue en valeur absolue chaque fois que l'ordre de dérivation augmente. Il en résulte qu'en première approximation on peut négliger les termes du deuxième ordre dans le développement en série. La variation du terme correctif $U + W$ entre les énergies E_0 et $E_0 + \varepsilon$ s'écrira :

$$\delta(E_0 + \varepsilon) - \delta(E_0) = \varepsilon \delta'(E_0).$$

L'expression de $\delta'(E_0)$ montre que pour E tendant vers zéro ou l'infini, $\delta'(E_0)$ tend vers zéro. De ceci nous déduisons que si E_0 est suffisamment éloigné de E_1 et E_2 , nous pouvons négliger l'influence de $\delta'(E_0)$ à l'extérieur de l'intervalle (E_1, E_2) . Ceci permet de ne faire aucune hypothèse sur $f(E)$ en dehors de l'intervalle (E_1, E_2) ; c'est-à-dire que les variations de R ou de T avec l'énergie n'ont pas besoin d'être connues pour $E < E_1$ et $E > E_2$.

Or, la fonction $f(E)$ est connue entre E_1 et E_2 , et par conséquent pour E_0 . Pour cette énergie, nous considérons donc $f(E)$ comme une constante égale à K . Dans ce cas, $\delta'(E_0)$ prend la valeur suivante :

$$\delta'(E_0) = \frac{K}{\pi} \int \left(\frac{1}{E + E_0} - \frac{1}{|E - E_0|} \right) dE.$$

La variation du terme correctif au voisinage de E_0 devient alors :

$$\delta(E_0 + \varepsilon) - \delta(E_0) = \frac{K\varepsilon}{\pi} \int \left(\frac{1}{E + E_0} - \frac{1}{|E - E_0|} \right) dE.$$

Cette expression peut se simplifier. En effet, nous savons que $E = E_0 + \varepsilon$, par conséquent :

$$E + E_0 = 2E_0$$

et :

$$|E - E_0| = |\varepsilon|$$

or, ε et E_0 sont connus; le terme entre crochets de l'expression ci-dessus est une constante, d'où :

$$\delta(E_0 + \varepsilon) - \delta(E_0) = \frac{K_1}{\pi} \int dE = \frac{K_1 E}{\pi} + K_2 = K_3 E + K_2.$$

Entre deux énergies voisines, le terme correctif est donc une fonction linéaire de l'énergie.

Calculons la valeur de $d/dE(U + W)$ entre les énergies E_0 et $E_0 + \varepsilon$. Nous obtenons :

$$\frac{d}{dE}(U + W) = \frac{K_1}{\pi} \int_{E_0}^{E_0 + \varepsilon} dE = \frac{K_1 \varepsilon}{\pi} + K_2 = A$$

A est une constante puisque ε est connu. Il en résulte que :

$$U + W = AE + B.$$

L'expression complète du déphasage s'écrit :

$$\begin{matrix} \delta_r \\ \delta_t \end{matrix} = V_i + A_i E + B_i.$$

4.2. VALEUR DE $U + W$ EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE. — Une démonstration identique peut être faite en utilisant les longueurs d'onde puisque $\lambda = \text{Cte}/E$. Les expressions des déphasages s'écrivent donc :

$$\begin{matrix} \delta_r \\ \delta_t \end{matrix} = V_i + A'_i \lambda + B'_i.$$

4.3. DÉTERMINATION DE n , k ET d . — Dans le cas présent, le problème ne réside pas uniquement dans la résolution d'un système de trois équations (R , T , δ_r par exemple) à trois inconnues (n , k , d). En effet, le terme correctif $U + W$ introduit deux constantes A et B qu'il faut déterminer, ce qui augmente de deux le nombre des inconnues. Pour résoudre le problème, nous devons faire appel à trois longueurs d'onde successives proches les unes des autres, ce qui introduit neuf équations pour neuf inconnues : A , B , d et les valeurs de n et k pour chacune des trois longueurs d'onde.

La résolution du système de neuf équations est faite à l'aide d'un calculateur électronique, par un programme d'itérations successives.

Nous déterminons donc n , k et d à partir de R , T , δ_r et R , T , δ_t , et nous admettons que les deux valeurs

de l'épaisseur calculées pour un groupe de trois longueurs d'onde sont correctes lorsque leur différence ne dépasse pas quelques angströms.

Remarques. — a) Les valeurs de départ de A et B , introduites comme données dans le programme, ont toujours été prises égales à zéro.

b) La détermination de n , k et d peut être faite en fonction de l'énergie ou de la longueur d'onde. Pour notre part, nous avons préféré prendre λ , ce qui ne change rien aux résultats définitifs.

5. Étude d'une couche d'or réelle. — Il s'agit d'une couche évaporée sous vide, dont l'épaisseur de 338 Å a été déterminée aux rayons X.

La figure 1 représente les variations de R et T en fonction de l'énergie $h\nu$. Sur la figure 2 nous indiquons

FIG. 1.

FIG. 2.

les valeurs de n et k obtenues dans l'intervalle 0,30 à 0,4 μ. La courbe en trait plein correspond aux valeurs de n et k déterminées à partir de R et T pour $d = 338$ Å. Nous n'avons indiqué sur la courbe que les valeurs moyennes de n et k . En effet, étant donné le mode de

calcul par groupe de trois longueurs d'onde, il est possible de retrouver la même longueur d'onde dans trois groupes successifs. En tenant compte des calculs effectués à partir de δ_r et de δ_i , on peut donc obtenir six valeurs de n et k pour une seule longueur d'onde.

On remarque une certaine dispersion pour les valeurs de n , par contre celles de k sont meilleures. En prenant comme référence les valeurs de n et k obtenues par la méthode classique (à partir de R , T et d), on note que les incertitudes relatives sont au plus de 3,6 % pour n et de 1,7 % pour k . Ceci se produit aux environs de $E = 3,5$ eV, c'est-à-dire dans une région spectrale où la détermination de n et k est la plus difficile. Quant à l'épaisseur, nous obtenons une valeur de 339 Å, ce qui correspond à une incertitude relative de 0,3 %.

En fait, nous nous sommes surtout préoccupés de la valeur obtenue pour l'épaisseur. En effet, cette dernière étant connue, il est toujours possible de déterminer n et k à partir de R et T .

6. Étude d'une couche idéale d'acier de 250 Å. — Sur la figure 3, nous représentons les variations de R et T en fonction de l'énergie. Ces courbes sont très différentes de celles de la figure 1 relatives à l'or. Il

FIG. 3.

était donc intéressant d'étudier ce métal en raison même de ses différences avec l'or et non pas pour lui-même. En effet, pour l'acier, le domaine de variations de R et de T est beaucoup plus réduit ($0,22 < R < 0,42$ et $0,20 < T < 0,47$) que pour l'or ($0,98 < R < 0,25$ et $0,002 < T < 0,28$).

Sur la figure 4, nous représentons les valeurs moyennes de n et k (croix). La courbe en trait plein correspond aux valeurs de n et k [19 et 20] utilisées pour le calcul de R et de T . Dans l'ensemble, n est déterminé avec plus de précision que k , c'est-à-dire le contraire de ce que nous avons obtenu pour l'or. Dans l'intervalle spectral étudié, soit entre 0,39 et 0,51 μ, la valeur moyenne de l'épaisseur est de 251 Å, ce qui correspond à une incertitude relative de 0,4 %.

FIG. 4.

Nous savons que le déphasage s'écrit sous la forme :

$$\delta_r = A\lambda + B + V$$

où V représente la partie calculée à partir du facteur de réflexion par la relation de dispersion; $A\lambda + B$ étant le terme correctif que nous considérons linéaire dans un petit domaine de longueurs d'onde. Au cours de la détermination des constantes optiques, nous connaissons également la valeur de $A\lambda + B$ pour chaque longueur d'onde. Nous représentons sur la figure 5 a les variations de ce terme correctif en fonction de la longueur d'onde pour le déphasage à la réflexion. La courbe se compose de segments de droite, relatifs chacun à trois longueurs d'onde successives. On constate sur cette courbe que le terme correctif n'a pas

FIG. 5.

toujours la même valeur pour une longueur d'onde donnée. Ceci explique la dispersion des résultats obtenus pour les constantes optiques et le fait que nous n'avons donné sur la figure 4 qu'une valeur moyenne de n et k pour chaque longueur d'onde. Cependant, nous remarquons que, pour des longueurs d'onde comprises entre 0,43 et 0,47 μ , les valeurs de $A\lambda + B$ sont moins dispersées que pour $\lambda < 0,43 \mu$.

A partir de ces valeurs, nous traçons la droite de la figure 5 b représentant les variations du terme correctif en fonction de λ .

Nous calculons ensuite le déphasage δ_r (croix) représenté sur la figure 6 où la courbe en trait plein est

FIG. 6.

relative au déphasage réel. Nous constatons qu'entre 0,40 μ et 0,47 μ les valeurs calculées et réelles sont très proches les unes des autres. Après examen du terme correctif, il est donc possible d'améliorer les valeurs de δ_r et, par conséquent, la détermination de n , k et d .

Les résultats obtenus pour une couche d'acier étant satisfaisants dans l'ensemble, on peut penser qu'il est possible d'appliquer cette méthode à des substances très différentes de l'or, ce qui élargit le domaine d'application de la méthode proposée.

7. Conclusion. — Dans tous les cas étudiés, la détermination la plus importante est celle de l'épaisseur. En effet, cette dernière connue, il est facile de calculer n et k à partir de R et T . Les très bons résultats obtenus pour l'épaisseur sont intéressants dans la mesure où ils peuvent dispenser d'une manipulation toujours délicate lorsqu'il s'agit de déterminer d par un procédé interférentiel.

Nous nous sommes également intéressés à une couche de cuivre. Les résultats obtenus sont loin d'être satisfaisants, vraisemblablement à cause de l'oxydation rapide du cuivre à l'air. Les valeurs mesurées pour R et T correspondent en fait à deux couches superposées, l'une de cuivre, l'autre d'oxyde. Nous avons évidem-

ment traité la question comme s'il s'agissait d'une couche unique, d'où une deuxième source d'erreurs. En fait, nous avons espéré trouver dans les calculs des anomalies qui auraient pu prouver la présence d'une couche d'oxyde, tout au moins d'une manière qualitative. Il semble d'ailleurs qu'il soit difficile d'employer notre méthode pour un système à deux couches. En effet, quel que soit le nombre de longueurs d'onde introduites dans la machine, il y a toujours plus d'inconnues que de relations.

Nous avons également vérifié la validité de la méthode qui vient d'être exposée sur une couche d'argent. Avec ce métal, très voisin de l'or quant à ses propriétés spectrophotométriques, nous avons obtenu d'excellents

résultats, en particulier dans la détermination de l'épaisseur.

D'après l'étude précédente, il semble que la détermination de n , k et d à l'aide de deux mesures seulement soit possible. Du point de vue expérimental, il s'agit de mesures relativement aisées, par contre l'emploi d'un ordinateur est indispensable pour les calculs numériques. Un dernier avantage de cette méthode est qu'elle se contrôle en quelque sorte elle-même, ce qui est important dans tous les cas.

Je tiens à adresser tous mes remerciements à M. le Professeur Abelès pour l'aide très efficace que j'ai trouvée auprès de lui au cours de ce travail.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] ROBINSON (T. S.), *Proc. Phys. Soc.*, 1952, B **65**, 910.
- [2] PHILIPP (H. R.) et EHRENREICH (H.), *Phys. Rev.*, 1963, **129**, 1550.
- [3] PHILIPP (H. R.) et TAFT (E. A.), *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 1002.
- [4] RIMMER (M. P.) et DEXTER (D. L.), *J. Appl. Phys.*, 1960, **31**, 775.
- [5] RUSTGI (P.), NODVIK (J. S.) et WEISSLER (G. L.), *Phys. Rev.*, 1961, **122**, 1131.
- [6] TAFT (E. A.) et PHILIPP (H. R.), *Phys. Rev.*, 1961, **121**, 1100.
- [7] PHILIPP (H. R.) et TAFT (E. A.), *Phys. Rev.*, 1962, **127**, 159.
- [8] SPITZER (W. G.), MILLER (R. C.), KLEIMANN (D. A.) et HOWARTH (L. E.), *Phys. Rev.*, 1962, **126**, 1710.
- [9] MILOSLAVSKII (V. K.), *Opt. i Sp.*, 1966, **21**, 343.
- [10] KOZIMA (K.), SUETAKA (W.) et SCHATZ (P. N.), *J.O.S.A.*, 1966, **56**, 181.
- [11] KRAMERS (H. A.), *Atti del Congresso Internazionale dei Fisici 1927* (Nicolas Zanidrelli), 1928, **2**, 545.
- [12] DE L. KRONIG (R.), *J.O.S.A.*, 1926, **12**, 547.
- [13] BELL (E. E.), *Handbuch der Physik*, Springer Verlag, Berlin, 1967, p. 1.
- [14] TOLL (J. S.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 1760.
- [15] STERN (F.), *Solid State Physics*, 1963, **15**, 327.
- [16] MOSS (T. S.), *Optical properties of semiconductors*, Butterworths, London, 1961.
- [17] BODE (H. W.), *Network Analysis and Feedback Amplifier Design*, D. Van Nostrand Co, 1945.
- [18] ANDERMANN (G.), CARON (A.) et DOWS (D. A.), *J.O.S.A.*, 1965, **55**, 1210.
- [19] MINOR (R. S.), *Ann. Physik*, 1903, **10**, 581.
- [20] INGERSOLL (L. R.), *Astrophys. J.*, 1910, **32**, 282.