

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE GRENOBLE

pour obtenir le grade

DOCTEUR DE 3^{ème} CYCLE

par

FERNANDO CHAVEZ RIVAS

SUJET

SPECTROSCOPIE INTERFERENTIELLE DE
TRÈS BASSE FREQUENCE
APPLICATION À LA MESURE DE L'ABSORPTION
DE QUELQUES MATERIAUX AMORPHES

Soutenue le 15 septembre 1978 devant la commission d'Examen

Président A. LACAZE

Examineurs J. M. LAURANT
 R. MAYNARD
 R. ROMESTAIN

Monsieur Gabriel CAU : Président
Monsieur Pierre JULLIEN : Vice Président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM	AMBLARD Pierre	Clinique de dermatologie
	ARNAUD Paul	Chimie
	ARVIEU Robert	I.S.N
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique Expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BEAUDOING André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture
	BELORIZZY Elie	Physique
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures
	BEZEZ Henri	Pathologie chirurgicale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BELLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Clinique gastro-entérologique
Mme	BONNIER Marie-Jeanne	Chimie générale
MM.	BOUCHERLE André	Chimie et toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées
	BOUTET DE MONTVEL Louis	Mathématiques Pures
	BRAVARD Yves	Géographie
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologique
	CALAS François	Anatomie
	CARLIER Georges	Biologie végétale
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et toxicologie
	CAQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Clinique Oto-rhino-laryngologique
	CHATEAU Robert	Clinique de neurologie
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique
	CONTAMTIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie pathologique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DELORMAS Pierre	Pneumophtisiologie

MM.	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée (IUT I)
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	JANIN Bernard	Géographie
	KAHANE André	Physique générale
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
Mme	LAJZEROWICZ Janine	Physique
MM.	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie Pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LE ROY Philippe	Mécanique (IUT I)
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOISEAUX Pierre	Sciences Nucléaires
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
MM.	MALINAS Yves	Clinique Obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Clinique Cardiologique
	MAZARE Yves	Clinique Médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MICOUD Max	Clinique Maladies infectieuses
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie Nucléaire
	NOZIERES Philippe	Spectrometrie Physique
	OZENDA Paul	Botanique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET Jean	Semeiologie Médicale (Neurologie)
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REVCL Michel	Urologie
	RINALDI Renaud	Physique
	DE ROUGEMONT Jacques	Neuro-Chirurgie
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT I)
	SCUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale

MM.	VAILLANT François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
MM.	VERAIN André	Physique
	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	CRABBE Pierre	CERMO
	DEMBICKI Eugéniuz	Mécanique
	JOHNSON Thomas	Mathématiques appliquées
	PENNEY Thomas	Physique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Gilbert	Géographie
	BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BILLET Jean	Géographie
	BOUCHET Yves	Anatomie
	BRUGEL Lucien	Energétique (IUT I)
	BUISSON René	Physique (IUT I)
	BUTEL Jean	Orthopédie
	COHEN ADDAD Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie
	CONTE René	Physique (IUT I)
	DELOBEL Claude	M.I.A.G.
	DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides
	FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures
	GAUTRON René	Chimie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Appliquées
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	KRARCWIAC Sacha	Mathématiques Appliquées
	KUHN Gérard	Physique (IUT I)
	LUU DUC Cuong	Chimie organique
	MAYNARD Roger	Physique du solide
Mme	MINIER Colette	Physique (IUT I)
MM.	PELMONT Jean	Biochimie
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Minéralogie
	PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
Mle	PIERY Yvette	Physiologie animale

MM.	RAYNAUD Hervé	M. I. A. G.
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	RICHARD Lucien	Biologie végétale
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM.	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	VIALON Pierre	Géologie
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	ARMAND Yves	Chimie (IUT I)
	BACHELOT Yvan	Endocrinologie
	BARGE Michel	Neuro chirurgie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Hélène	Pharmacodynamie
MM.	BOST Michel	Pédiatrie
	BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B) (Personne étrangère habilitée à être directeur de thèse)
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHARDON Michel	Géographie
	CHERADAME Hervé	Chimie papetière
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
	CORDONNIER Daniel	Néphrologie
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	CYROT Michel	Physique du solide
	DENIS Bernard	Cardiologie
	DOUCE Roland	Physiologie végétale
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADGSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	FAURE Gilbert	Urologie
	GAUTIER Robert	Chirurgie générale
	GIDON Maurice	Géologie
	GROS Yves	Physique (IUT I)
	GUIGNIER Michel	Thérapeutique
	GUITTON Jacques	Chimie
	HICTER Pierre	Chimie
	JALBERT Pierre	Histologie
	JUNIEN-LAVILLAVROY Claude	O. R. L.
	KOLGDIE Lucien	Hématologie
	LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et médecine préventive
	MALLION Jean-Michel	Médecine du travail

MM.	MARECHAL Jean	Mécanique (IUT I)
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MASSOT Christian	Médecine interne
	NEMOZ Alain	Thermodynamique
	NOUCARET Marcel	Automatique (IUT I)
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B) (Personnalité étrangère habilitée à être directeur de thèse).
	PEFFEN René	Métallurgie (IUT I)
	PERRIER Guy	Géophysique-Glaciologie
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
	RACHAIL Michel	Médecine Interne
	RACINET Claude	Gynécologie et Obstétrique
	RAMBAUD Pierre	Pédiatrie
	RAPHAEL Bernard	Stomatologie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Bactériologie (Pharmacie)
	ROBERT Jean-Bernard	Chimie-Physique
	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B) (Personnalité étran- gère habilitée à être directeur de thèse.)
	SAKAROVITCH Michel	Maths appliquées
	SCHAEERER René	Cancérologie
Mme	SEIGLE-MURANDI française	Cryptogamie
	STOEBNER Pierre	Anatomie Pathologie
	STUTZ Pierre	Mécanique
	VROUSOS Constantin	Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES.

MM.	DEVINE Roderick	Spectro Physique
	KANEKO AKIRA	Maths pures
	JOHNSON Thomas	Maths appliquées
	RAY Tuhina	Physique

MAITRE DE CONFERENCES DELEGUE

M.	ROCHAT Jacques	Hygiène et Hydrologie (Pharmacie)
----	----------------	-----------------------------------

Président : M. Philippe TRAYNARD

Vice-Présidents : M. René PAUTHENET
M. Georges LESPINARD

PROFESSEURS TITULAIRES

MM BENOIT Jean	Electronique - Automatique
BESSON Jean	Chimie Minérale
BLOCH Daniel	Physique du solide - cristallographie
BONNETAIN Lucien	Génie Chimique
BONNIER Etienne	Métallurgie
*BOUDOURIS Georges	Electronique - Automatique
BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide - cristallographie
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique - Automatique
COUMES André	Electronique - Automatique
DURAND Francis	Métallurgie
FELICI Noël	Electronique - Automatique
FOULARD Claude	Electronique - Automatique
LANCIA Roland	Electronique - Automatique
LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire Corpusculaire
LESPINARD Georges	Mécanique
MOREAU René	Mécanique
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Electronique - Automatique
PERRET René	Electronique - Automatique
POLOUJADOFF Michel	Electronique - Automatique
TRAYNARD Philippe	Chimie - Physique
VEILLON Gérard	Informatique Fondamentale et appliquée

*en congé pour études.

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM BLINAN Samuël	Electronique - Automatique
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique
COHEN Joseph	Electronique - Automatique
GUYOT Pierre	Métallurgie Physique
LACOURNE Jean-Louis	Electronique - Automatique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide - Cristallographie
ROBERT André	Chimie Appliquée et des Matériaux
ROBERT François	Analyse numérique
ZADWORNY François	Electronique - Automatique

MAITRES DE CONFERENCES

MM ANCEAU François	Informatique Fondamentale et appliquée
CHARTIER Germain	Electronique - Automatique
CHIAVERINA Jean	Biologie, biochimie, agronomie
IVANES Marcel	Electronique - Automatique
LESIEUR Marcel	Mécanique
MORET Roger	Physique Nucléaire - Corpusculaire
PIAU Jean-Michel	Mécanique
PIERRARD Jean-Marie	Mécanique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Informatique Fondamentale et appliquée
Mme SAUCIER Gabrielle	Informatique Fondamentale et appliquée
SOHM Jean-Claude	Chimie Physique

.../...

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

CHERCHEURS DU C.N.R.S. (Directeur et Maîtres de Recherche)

M FRUCHART Robert	Directeur de Recherche
M ^l ANSARA Ibrahim	Maître de Recherche
BRONOEL Guy	Maître de Recherche
CARRE René	Maître de Recherche
DAVID René	Maître de Recherche
DRIOLE Jean	Maître de Recherche
KLEITZ Michel	Maître de Recherche
LANDAU Ioan-Doré	Maître de Recherche
MATHIEU Jean-Claude	Maître de Recherche
HERMET Jean	Maître de Recherche
MUNIER Jacques	Maître de Recherche

Personnalités habilitées à diriger des travaux de recherche (Décision du Conseil Scientifique)

E.N.S.E.E.G.

MM BISCONDI Michel	Ecole des Mines ST ETIENNE (dépt.Métallurgie)
BOOS Jean-Yves	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
DRIVER Julian	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
KOBYLANSKI André	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
LE COZE Jean	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
LESBATS Pierre	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
LEVY Jacques	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
RIEU Jean	Ecole des Mines ST ETIENNE (Métallurgie)
SAINFORT	C.E.N. Grenoble (Métallurgie)
SOUCUET	U.S.M.G.
CAILLET Marcel	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
COULON Michel	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
GUILHOT Bernard	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
LALAUZE René	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
LANCELOT Francis	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
SARRAZIN Pierre	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
SOUSTELLE Michel	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
THEVENOT François	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
THOMAS Gérard	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
TOUZAIN Philippe	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)
TRAN MINH Canh	Ecole des Mines ST ETIENNE (Chim.Min.Ph)

E.I.S.E.R.G.

MM BOREL	Centre d'Etudes Nucléaires de GRENOBLE
KAMARINOS	Centre National Recherche Scientifique

E.N.S.E.G.P.

MM BORNARD	Centre National Recherche Scientifique
MmeCHERUY	Centre National Recherche Scientifique
MM DAVID	Centre National Recherche Scientifique
DESCHIZEAUX	Centre National Recherche Scientifique

*
* *
*

à ma mère ISABEL,

à mon père JOSE,

à ma soeur ELYSABET,

à ma soeur LAURA,

à mon frère OCTAVIO

R E M E R C I E M E N T S

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures (C.R.T.B.T., C.N.R.S.) de Grenoble.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur le Professeur A. LACAZE pour l'accueil qu'il m'a réservé dans le cadre de la coopération franco-mexicaine, quand il en était le Directeur.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur le Professeur A. LACAZE pour avoir accepté la présidence de ce jury ainsi qu'à Messieurs J.M. LAURANT, R. MAYNARD, R. ROMENSTAIN pour l'honneur qu'ils me font en participant au jury.

Je suis vivement reconnaissant envers Monsieur J.M. LAURANT, Chargé de Recherches au C.R.T.B.T. qui a efficacement dirigé ce travail. J'ai beaucoup apprécié sa grande compétence, sa générosité et sa disponibilité. Il m'a fait profiter de ses connaissances sans compter le temps ni les efforts et a beaucoup contribué à ma formation professionnelle. J'espère qu'il trouvera ici la marque de mon appréciation sincère.

Je suis désireux d'exprimer ma gratitude à Alain RIBEVRON qui m'a initié aux méthodes spectrométriques. Je lui exprime mes sincères remerciements. Je voudrais aussi remercier Messieurs M. GEVNET, Y. FOUILHE pour l'aide précieuse qu'ils m'ont apportée dans la mise au point des programmes des calculs.

Je suis également reconnaissant à Monsieur A. BOULBES, pour la collaboration à la construction des polariseurs. Je remercie également tous les chercheurs et techniciens qui m'ont apporté une aide amicale pendant ce travail. Je pense en particulier à Messieurs L. PERLI, P. DI CHIARO, M. BLEIN .

Je tiens aussi à remercier Mademoiselle Françoise MAHIEUX qui a effectué avec beaucoup de patience la frappe de ce mémoire et Madame TREVISSON qui en a assuré le tirage.

Enfin, je tiens à exprimer ma gratitude et sympathie à tout le personnel du C.R.T.B.T. pour son aimable esprit de collaboration.

J'ai pu accomplir ce travail grâce à une bourse du Centre Régional des Œuvres Universitaires et Scolaires de GRENOBLE, et du Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología, CONACYT du MEXIQUE.

P L A N

INTRODUCTION

CHAPITRE I : SPECTROSCOPIE OPTIQUE DANS L'INFRAROUGE TRES LOINTAIN

CHAPITRE II : SPECTROSCOPIE INTERFEROMETRIQUE POLARISANTE

CHAPITRE III : TRAITEMENT A L'ORDINATEUR

CHAPITRE IV : ABSORPTION OPTIQUE DANS L'INFRAROUGE TRES LOINTAIN DE MATERIAUX AMORPHES

CONCLUSIONS

ANNEXE : PROGRAMME DE LA TRANSFORMEE DE FOURIER D'UN INTERFEROGRAMME

I N T R O D U C T I O N

Depuis 1970, une grande partie de la Recherche Expérimentale et Théorique faite au Laboratoire des Très Basses Températures de Grenoble a été consacrée à l'étude des systèmes désordonnés.

Parmi ces systèmes, les verres ont suscité de nombreuses recherches. Nous pouvons citer chronologiquement les mesures de chaleur spécifique et de conductivité thermique du Sélénium amorphe, de GeO_2 et SiO_2 ⁽¹⁾ faites par LASJAUNIAS ; les mesures du coefficient d'absorption optique de GeO_2 et du Sélénium amorphe par RIBEYRON⁽²⁾ ; plus récemment, les mesures de la vitesse du son, d'absorption ultrasonore, de SiO_2 et BK7 par PICHE⁽³⁾ ; et finalement les mesures de la partie réelle de la constante diélectrique du verre BK7 à très basse température par FROSSATI⁽⁴⁾. Les résultats ont mis en évidence l'existence d'excitations de basse énergie, qui sont de l'ordre de grandeur de 10^{-6} à 10^{-3} eV. Il semble que ces excitations sont inhérentes à tout système désordonné.

Avec l'objectif d'atteindre ce domaine d'énergies (en fréquence en dessous de 10 cm^{-1}) par la technique de spectroscopie optique interférentielle, nous rapportons la mise au point d'un spectromètre interférentiel à polariseurs permettant la mesure de la transmission optique pour des températures de 1,2 K jusqu'à 300 K dans un domaine de fréquences de $7,5 \text{ cm}^{-1}$ à 40 cm^{-1} .

Dans le premier chapitre, on étudiera les aspects généraux d'un interféromètre à lame séparatrice diélectrique. On montrera les difficultés techniques qu'impose un domaine de fréquences entre 14 et 250 cm^{-1} , et on décrira les solutions possibles pour descendre en fréquence en dessous de 14 cm^{-1} .

Dans le deuxième chapitre, on étudiera la méthode interférentielle à polariseur basée sur l'idée de MARTIN et PUPLETT⁽⁵⁾. Nous montrerons la démarche suivie pour mettre au point un interféromètre à polariseur, travaillant dans une gamme de $7,5 \text{ cm}^{-1}$ à 40 cm^{-1} .

Dans le troisième chapitre, on étudiera, en détail, le traitement à l'ordinateur de l'information fournie par l'interféromètre. En particulier on montrera les corrections mathématiques qui nous permettent d'avoir des mesures du coefficient d'absorption jusqu'à $7,5 \text{ cm}^{-1}$, avec

une résolution en fréquences de $1,2 \text{ cm}^{-1}$.

Dans le dernier chapitre, on montrera les mesures du coefficient d'absorption optique de quelques matériaux amorphes. On montrera l'existence de deux domaines spectraux bien définis de ces matériaux, l'un compris entre 12 et 35 cm^{-1} , dans lequel on observe un mécanisme d'interaction entre le rayonnement et les vibrations acoustiques, l'autre en dessous de 12 cm^{-1} où le coefficient d'absorption est sensible aux variations de température.

REFERENCES

- (1) J.C. LASJAUNIAS and R. MAYNARD,
Journal of Non-Crystalline Solids 6 (1971), 101-106.
- (2) J. BLANC, D. BROCHIER and A. RIBEYRON,
Phys. Letters 31 A (1970), 483.
- (3) L. PICHE, R. MAYNARD, S. HUNKLINGER and J. JACKLE,
Physical Review Letters 32, 25 (1974) ;
S. HUNKLINGER and L. PICHE,
Solid State Comm. (1975).
- (4) G. FROSSATI, R. MAYNARD, R. RAMMAL and D. THOULOZE,
J. Phys. (Paris) 38, L153 (1977).
- (5) D.H. MARTIN, E. PUPLETT,
Infrared Physics, 1969, vol. 10, pp. 105-109, Pergamon Press.

CHAPITRE I - SPECTROSCOPIE OPTIQUE DANS L'INFRAROUGE TRES
LOINTAIN

- I - DESCRIPTION D'UN SPECTROMETRE DE MICHELSON A MIROIR MOBILE
- II - OBTENTION D'UN SPECTRE PAR TRANSFORMEE DE FOURIER, APODISATION
- III - CARACTERISTIQUES D'UN SPECTROMETRE AVEC INTERFEROMETRE A LAME SEPARATRICE DIELECTRIQUE
 - A. RAYONNEMENT PRODUIT PAR LA SOURCE
 - B. EFFICACITE DE LA LAME SEPARATRICE DIELECTRIQUE
 - C. DETECTEUR
 - D. TRAITEMENT A L'ORDINATEUR
- IV - LIMITATION VERS LES BASSES FREQUENCES
 - 1. TRES FAIBLE TAUX DE RAYONNEMENT PRODUIT PAR LA SOURCE ENTRE 2 ET 45 cm^{-1}
 - 2. AMÉLIORATION DU RENDEMENT DU SPECTROMETRE
 - 3. FILTRES ET HUBLOTS
 - 4. ANALYSES DES INTERFEROGRAMMES
 - 5. TAILLE DU BOLOMETRE

REFERENCES

CHAPITRE I

CHAPITRE I

SPECTROMETRIE OPTIQUE DANS L'INFRA-ROUGE TRES LOINTAIN

I - DESCRIPTION D'UN SPECTROMETRE DE MICHELSON A MIROIR MOBILE

Des mesures optiques dans la gamme allant de 14 cm^{-1} à 250 cm^{-1} ont été faites au C.R.T.B.T. en utilisant un spectromètre interférentiel à miroir mobile⁽¹⁾. Un schéma de ce spectromètre est donné sur la figure 1. Les radiations produites par une lampe à mercure haute pression refroidie à l'eau sont concentrées par un système de miroirs au centre de la chambre n° 1 où est placé l'échantillon. Un second système de miroir concentre le faisceau transmis à l'entrée de la chambre n° 2 qui contient l'interféromètre proprement dit.

L'échantillon est placé dans un cryostat à hublots optiques biseautés et peut être porté de 1,5 K à 300 K grâce à un système de régulation de température par chauffage et gaz d'échange.

Dans la 2ème chambre, le faisceau est rendu parallèle par un miroir parabolique, divisé ensuite par une lame séparatrice diélectrique (milar : polyéthylène téréphthalate), puis recombinaé après réflexion sur deux miroirs plans (fig. 1). Un dernier système de miroirs focalise le faisceau sur le détecteur avec une ouverture de $f/4$.

Des filtres optiques placés entre les chambres 1 et 2 permettent de choisir la gamme de fréquence à analyser. Le déplacement maximum du miroir mobile est de un centimètre, ce qui correspond à une différence de marche de 2 cm, donc à une résolution de $0,5 \text{ cm}^{-1}$.

II - OBTENTION D'UN SPECTRE PAR TRANSFORMEE DE FOURIER - APODISATION

Pour une onde incidente de fréquence K et d'intensité $S(K)$, l'intensité de l'onde après passage dans l'interféromètre est fonction de la différence de marche X et est donnée par :

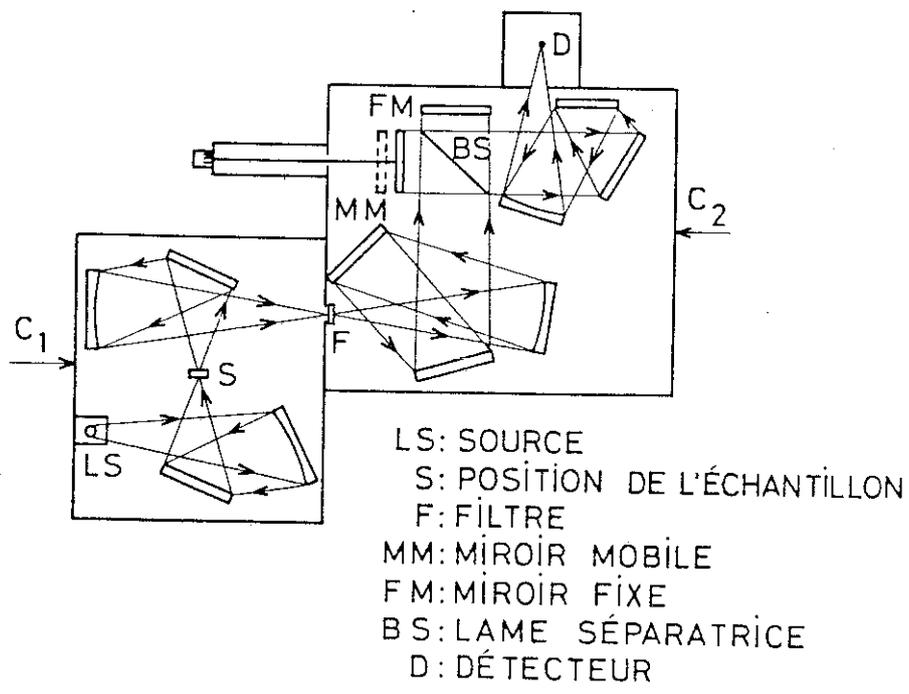


FIGURE 1

$$I(X) = \frac{S(K)}{2} (1 + \cos 2\pi K X) \quad \text{I.1}$$

Pour une distribution spectrale, on a :

$$\begin{aligned} I(X) &= \frac{1}{2} \int_0^{\infty} S(K) [1 + \cos 2\pi K X] dK \\ &= \frac{I(0)}{2} + \int_0^{\infty} S(K) \cos 2\pi K X dK \end{aligned} \quad \text{I.2}$$

où $I(0)$ est l'intensité à différence de marche nulle.

Par transformée inverse de Fourier, on a :

$$S(K) = 4 \int_0^{\infty} \left[I(X) - \frac{I(0)}{2} \right] \cos 2\pi K X dX \quad \text{I.3}$$

En pratique, il n'est pas possible de mesurer un interférogramme jusqu'à des valeurs infinies de X et on se limite à un déplacement maximum du miroir mobile de X_{\max} . Le spectre obtenu est alors donné par la substitution de l'équation I.2 dans l'équation I.3.

$$S_c(X_{\max}, K) = 4 \int_0^{X_{\max}} \left[\int_0^{\infty} S(K') \cos 2\pi K' X dK' \right] \cos 2\pi K X dX$$

En sommant sur X , on obtient :

$$S_c(X_{\max}, K) = 4 \int_0^{\infty} S(K') \cdot R(K, K', X_{\max}) dK' \quad \text{I.4}$$

où $R(K, K', X_{\max})$ est donné par :

$$R(K, K', X_{\max}) = \left[\frac{\sin 2\pi(K-K')X_{\max}}{2\pi(K-K')X_{\max}} + \frac{\sin 2\pi(K+K')X_{\max}}{2\pi(K+K')X_{\max}} \right] \cdot 2X_{\max} \quad \text{I.5}$$

Le spectre calculé $S_c(K)$ est donc la convolution du vrai spectre $S(K')$ par la fonction instrumentale $R(K, K')$, qui est la transformée de Fourier de la fonction limitatrice $A(X)$ (fig. 2) avec :

$$\begin{aligned} A(X) &= 1 \quad \text{pour } X < X_{\max} \\ &= 0 \quad \text{pour } X > X_{\max} \end{aligned} \quad \text{I.6}$$

La fonction $R(K, K')$ tracée sur la figure 3 montre que sa largeur à mi-hauteur est de $0,71/X_{\max}$. Donc le plus petit intervalle de fréquence que

l'on peut mesurer est :

$$\Delta K = 0,71/X_{\max}$$

I.7

La présence des oscillations résiduelles dans la fonction $R(K, K')$ distord fortement le spectre $S_c(K)$. Ces oscillations sont produites par le passage brusque de la fonction rectangulaire $A(X)$ en X_{\max} . Pour les réduire, il faudrait avoir une variation plus douce au niveau de X_{\max} . Ce procédé est appelé apodisation et consiste à modifier la fonction $R(K, K')$.

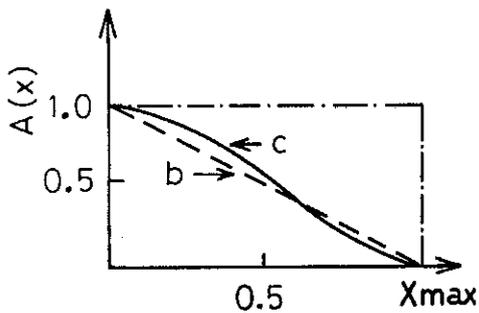


fig.2 Fonctions de Apodisation

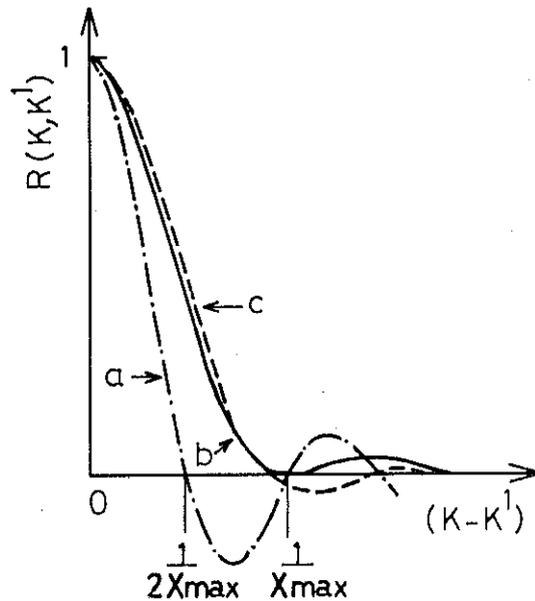


fig.3 Fonctions d'appareil théorique

On peut envisager plusieurs techniques différentes d'apodisation dépendant, soit du type de mesure à faire (reflexion ou transmission), soit de la gamme de fréquences à explorer ou de l'importance de la résolution souhaitée.

La méthode la plus simple consiste à changer la forme de la fonction rectangulaire $A(X)$ par la fonction triangulaire $A_1(X)$, telle que :

$$A_1(X) = 1 - \frac{X}{X_{\max}}$$

qui a comme transformée de Fourier :

$$R_1(K, K') = X_{\max} \frac{\sin \pi(K-K')X_{\max}}{[\pi(K-K')]^2} \quad \text{I.8}$$

Dans ce cas, la fonction d'apodisation a la forme de la fonction de RAYLEIGH⁽²⁾. D'après le critère de Rayleigh, on a une résolution :

$$\Delta K = 1/X_{\max}$$

Une autre fonction d'apodisation suggérée par CONNES⁽³⁾ est la fonction A_3 :

$$A_3(X) = \left(1 - \frac{X^2}{X_{\max}^2}\right)^2 \quad \text{I.9}$$

dont la transformée de Fourier est :

$$R_2(K, K') = 1.066 X_{\max} [2\pi(K - K')X_{\max}]^{-5/2} J_{5/2}[2\pi(K - K')X_{\max}]$$

avec une résolution :

$$\Delta K = 1,2/X_{\max}$$

La fonction $R_2(K, K')$ montre un compromis raisonnable entre la largeur à mi-hauteur et l'intensité des oscillations secondaires.

III - CARACTERISTIQUES D'UN SPECTROMETRE A LAME SEPARATRICE DIELECTRIQUE

Les caractéristiques essentielles de ce spectromètre sont sa gamme de fréquences restreinte à la zone de 14 cm^{-1} à 250 cm^{-1} et sa résolution maximale de 1 cm^{-1} fixée par la course du miroir mobile. Ces caractéristiques proviennent de quatre aspects intrinsèques au spectromètre.

A) Rayonnement produit par la source.

Comme source lumineuse on utilise une lampe à vapeur de mercure haute pression HPK 125 W. D'après HANDI⁽⁴⁾, la température effective du corps noir de la source est approximativement de 5000 K pour les fréquences en dessous de 50 cm^{-1} et décroît rapidement jusqu'à 1200 K pour les fréquences au-dessus de 100 cm^{-1} . La raison de cette chute vient du fait que les basses fréquences sont produites par l'arc de mercure tandis que les hautes fréquences sont produites par l'enveloppe de silice qui est opaque au-dessus de 70 cm^{-1} (fig. 4).

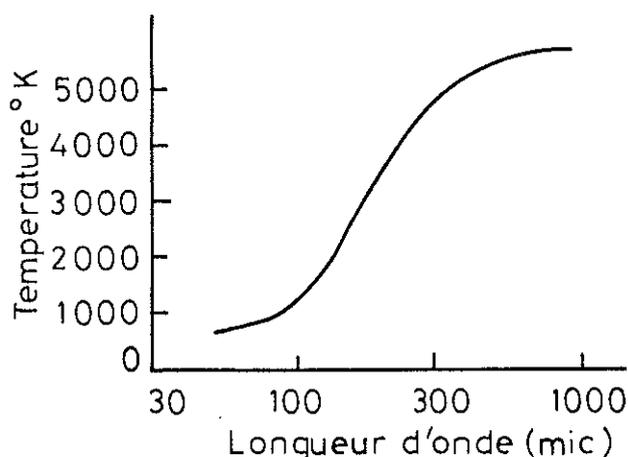


fig 4 - Temperature effective de la lampe HPK 125W dans l'infrarouge lointain

Un système de refroidissement à eau stabilise la température de la lampe et diminue ainsi les fluctuations d'intensité de longue période qui affectent principalement la partie basse fréquence du spectre⁽⁵⁾

B) Efficacité de la lame séparatrice diélectrique.

Le problème le plus délicat de l'interféromètre de Michelson

dans l'infra-rouge lointain est posé par la lame séparatrice. Si R et T sont les coefficients de réflexion et de transmission de la lame, l'efficacité est donnée par le produit R.T. Les variations de l'indice et de l'absorption de la lame avec la fréquence ainsi que les réflexions multiples à l'intérieur de la lame font que l'efficacité varie fortement avec la fréquence. La figure 5 donne l'efficacité de trois lames séparatrices de téréphthalate de polyéthylène d'épaisseurs 12,5, 25 et 50 μ . Les maxima sont obtenus lorsque la longueur d'onde λ est égale à $2n\cos\theta$, où n est l'indice de réfraction, e l'épaisseur et θ l'angle d'incidence. Si on s'intéresse aux fréquences élevées, il faut donc prendre une lame séparatrice mince (25 μ pour la gamme de 30 à 120 cm^{-1}) alors que pour les basses fréquences, on a intérêt à prendre une lame séparatrice épaisse (50 μ pour la gamme de 13 à 60 cm^{-1}).

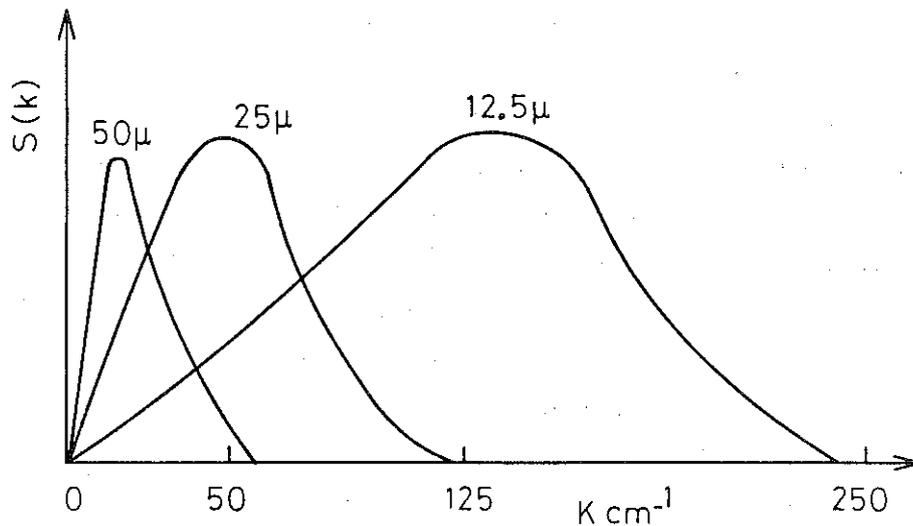


fig. 5

Il faut remarquer que, de toutes façons, l'efficacité est proportionnelle au carré de la fréquence à basses fréquences, ce qui aggrave la situation puisque l'énergie de la source est très faible dans cette gamme.

C) Détecteur.

Les mesures ont été faites avec un bolomètre au germanium dopé à l'or développé par LOW⁽⁶⁾. A l'origine, en 1961, Low avait développé un bolomètre pour détecter le rayonnement dans l'infra-rouge lointain par absorption par des électrons fortement couplés au réseau. Ensuite le noircissement de la surface du bolomètre a permis la détection de radiations dans une gamme de fréquence plus étendue allant de l'infra-rouge proche jusqu'à la région des ondes submillimétriques. La couche noire est d'abord chauffée, puis l'énergie est ensuite transmise par phonons à l'ensemble du bolomètre, réseau plus électrons. Chaque gamme de fréquences peut alors être étudiée en éliminant par des filtres optiques les radiations non souhaitées.

Les caractéristiques importantes de ce détecteur sont d'une part son faible bruit, très près du bruit Johnson, et d'autre part sa détectivité de l'ordre de 10^{12} W^{-1} pour les fréquences au-dessus de 100μ et de 10^{14} W^{-1} au-dessous de 100μ .

L'élément bolométrique travaille à une température de 2 K, sa résistance est de $330 \text{ K}\Omega$, sa sensibilité de $2,5 \times 10^5 \text{ V/W}$, sa constante de temps de $400 \mu\text{s}$ et sa puissance équivalente de bruit de $4,5 \times 10^{-14} \text{ W}$. Il fonctionne à $16 \frac{2}{3}$ hertz, fréquence à laquelle son rendement est de l'ordre de 80% ⁽⁷⁾.

La taille du bolomètre est de 1 mm^2 et $0,3 \text{ mm}$ d'épaisseur. Il est recouvert par une demi-sphère en saphir de 2 mm de diamètre qui sert de lentille convergente et est placée dans un système optique qui amène l'ouverture de $f/4$ à $f/1$, ce qui réduit l'image d'un facteur 4 (fig. 6). Un filtre en téflon de $1,5 \text{ mm}$ d'épaisseur refroidi à 2 K et un hublot de polyéthylène blanc de $1,4 \text{ mm}$ d'épaisseur limitent la gamme de fréquences entre 14 et 250 cm^{-1} . Dans ces conditions, la puissance moyenne reçue par le bolomètre est de l'ordre de $5 \times 10^{-7} \text{ W}$.

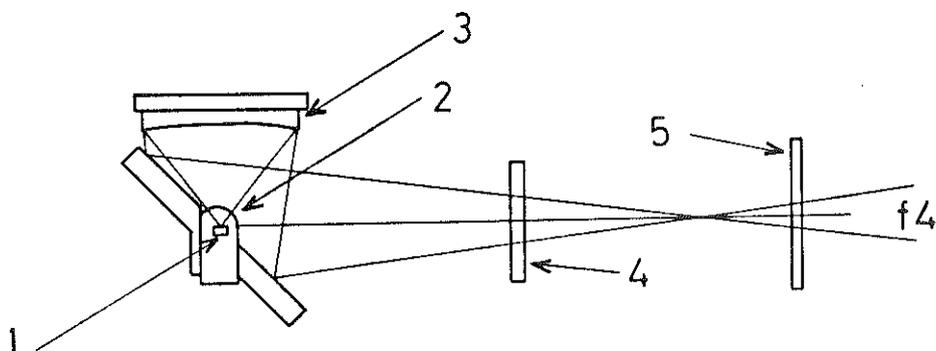


Fig 6 Schema optique du bolometre

- 1 Bolometre
- 2 Lentille en saphir
- 3 Miroir spherique
- 4 Filtre froid
- 5 Filtre chaud

Le bolomètre est couplé au spectromètre par un système mécanique qui permet, d'une part de diminuer le bruit microphonique produit par les pompes et d'autre part, de pouvoir régler la focalisation du faisceau sur le détecteur.

D) Traitement à l'ordinateur.

FELLGETT⁽⁸⁾ en 1957 a été le premier à calculer un spectre par une transformée de Fourier de la quantité $I(X)$. Cette transformée de Fourier de $I(X)$ nous donne une distribution spectrale à toute fréquence K (cm^{-1}), donnée par :

$$S(K) = 4 \int_0^{\infty} \left[I(X) - \frac{1}{2} I(0) \right] \cos(2\pi KX) . dX$$

où X est la différence de marche entre les deux faisceaux ;

$I(0)$ est l'intensité à différence de marche nulle.

Dans la pratique, les intensités de l'interférogramme sont mesurées pour des valeurs discrètes, de la différence de marche $n\Delta X$, jusqu'à une valeur maximale $N\Delta X$ égale au déplacement maximal du miroir mobile.

n prend des valeurs entières de 0, 1, 2, ... N et ΔX est l'intervalle entre chaque mesure de l'interférogramme.

D'après le théorème de l'échantillonnage, toutes les informations concernant une fonction à spectre limité sont contenues dans une infinité dénombrable de valeurs discrètes de cette fonction et on peut trouver des formules d'interpolation, qui, à partir de ces points, permettent de reconstituer toutes les fonctions⁽⁹⁾. Donc toutes les informations contenues dans un interférogramme dont on sait qu'il a un spectre limité sont contenues dans des valeurs discrètes de $I(X)$. Il suffit en conséquence pour calculer le spectre, de traiter un certain nombre de valeurs équidistantes, relevées sur l'interférogramme. On remplace le calcul de l'intégrale :

$$S(K) = 4 \int_0^{X_{\max}} \left[I(X) - \frac{1}{2} I(0) \right] \cos(2\pi KX) dX \quad \text{I. 10}$$

par celui de la somme :

$$S(K) = 4 \sum_{n=0}^{n=N} \left[I(n.\Delta X) - \frac{1}{2} I(0) \right] . \cos(2\pi Kn\Delta X) . \Delta X \quad \text{I. 11}$$

avec la condition d'avoir un intervalle ΔX donné par :

$$\Delta X < \frac{1}{2(K_2 - K_1)}$$

où $K_2 - K_1 = \delta K$, définit la largeur totale des fréquences optiques que reçoit le détecteur.

D'autre part, la limite de résolution dépend essentiellement de la différence de marche maximale atteinte X_{\max} et accessoirement de la forme de la fonction d'apodisation choisie. Donc l'exploration d'un domaine spectral donné à une résolution donnée pose deux problèmes distincts : détermination de X_{\max} et choix du pas ΔX . Le nombre total de points à relever est donné, à une unité près, par $N = X_{\max} / \Delta X$ et il existe une relation entre N et le nombre M des éléments spectraux contenus dans le spectre à étudier. L'élément spectral est la portion du spectre comprise entre deux points qu'on peut considérer comme juste séparé par l'instrument ; il vaut donc ΔK et M vaut $M = \frac{\delta k}{\Delta K}$.

Dans le cas de $K_1 = 0$ et $K_2 = M\delta K$, M étant un nombre entier, on a $\Delta X = \frac{1}{2} \frac{1}{K_{\max}}$ et $N = \frac{X_{\max}}{\Delta X} = 2 X_{\max} \delta K$.

Si l'interférogramme n'est pas apodisé, $\Delta K = \frac{1}{2X_{\max}}$ et $N = \frac{\delta K}{\Delta K} = M$, c'est-à-dire que le nombre de points à relever est égal au nombre d'éléments spectraux.

Si on apodise comme il a été indiqué, on a sensiblement $\Delta K = 1/X_{\max}$ et $N = 2M'$, M' étant le nouveau nombre d'éléments spectraux. Il vaut la moitié de M .

Nous pouvons considérer maintenant X et K comme des variables discrètes et écrire :

$$X = \frac{n}{2K_{\max}} \quad \text{entre } 0 \text{ et } X_{\max}$$

et
$$K = \frac{m}{2X_{\max}} \quad \text{entre } 0 \text{ et } K_{\max}.$$

Le nombre de points de mesure est : $N = X_{\max} \cdot 2K_{\max}$.

Il vient :

$$K = \frac{m2K_{\max}}{2N} = \frac{mK_{\max}}{N}$$

et
$$X \cdot K = \frac{mK_{\max}}{N} \frac{n}{2K_{\max}} = \frac{n \cdot m}{2N}$$

et l'expression I.11 devient :

$$S(K) = S\left(\frac{m}{2X_{\max}}\right) = 4 \sum_0^N \left(I(m) - \frac{I(0)}{2} \right) \cos\left(\frac{\pi mn}{N}\right) \frac{1}{2K_{\max}} \quad \text{I.12}$$

IV - LIMITATION VERS LES BASSES FREQUENCES

Les caractéristiques développées précédemment nous ont permis de mettre en évidence quelques facteurs qui rendent difficiles la spectroscopie optique dans la région des très basses fréquences, entre 2 et 20 cm^{-1} . Ceux-ci peuvent être résumés en 5 points :

1) très faible taux de radiation produite par la source entre 2 et 45 cm^{-1} .

Prenons une température de 4000 K, température d'émission de la source, pour des longueurs d'onde comprises entre 0,5 mm et 0,02 mm.

Dans l'approximation de Rayleigh-Jeans, ($h\nu \ll kT$), le flux de rayonnement d'une source par unité de surface, par demi espace est :

$$F_K dK = 2\pi k T C K^2 dK$$

Le taux de rayonnement, par unité de surface, par unité d'angle solide, par vecteur d'onde et par degré Kelvin, s'écrit :

$$F_K dK = 8.26 \cdot 10^{-13} T K^2 dK \text{ Watts cm}^{-2} \text{ vecteur d'onde}^{-1} \text{ OK}^{-1} \text{ sr}^{-1}$$

En prenant $\Omega = 0.2954 \text{ st}$,

$$T = 4000 \text{ K}$$

$$\text{surface} = 0,628 \text{ cm}^2$$

et en intégrant entre 2 et 45 cm^{-1} , on trouve $F_K = 1,8647 \cdot 10^{-5} \text{ W}$.

Ceci correspond bien à la valeur mesurée pour la lampe HPK-125 W.

Ce faible taux d'énergie sera encore atténué d'un facteur 10 par tous les éléments qui se trouvent sur le chemin optique entre l'arc d'émission de la lampe et le détecteur.

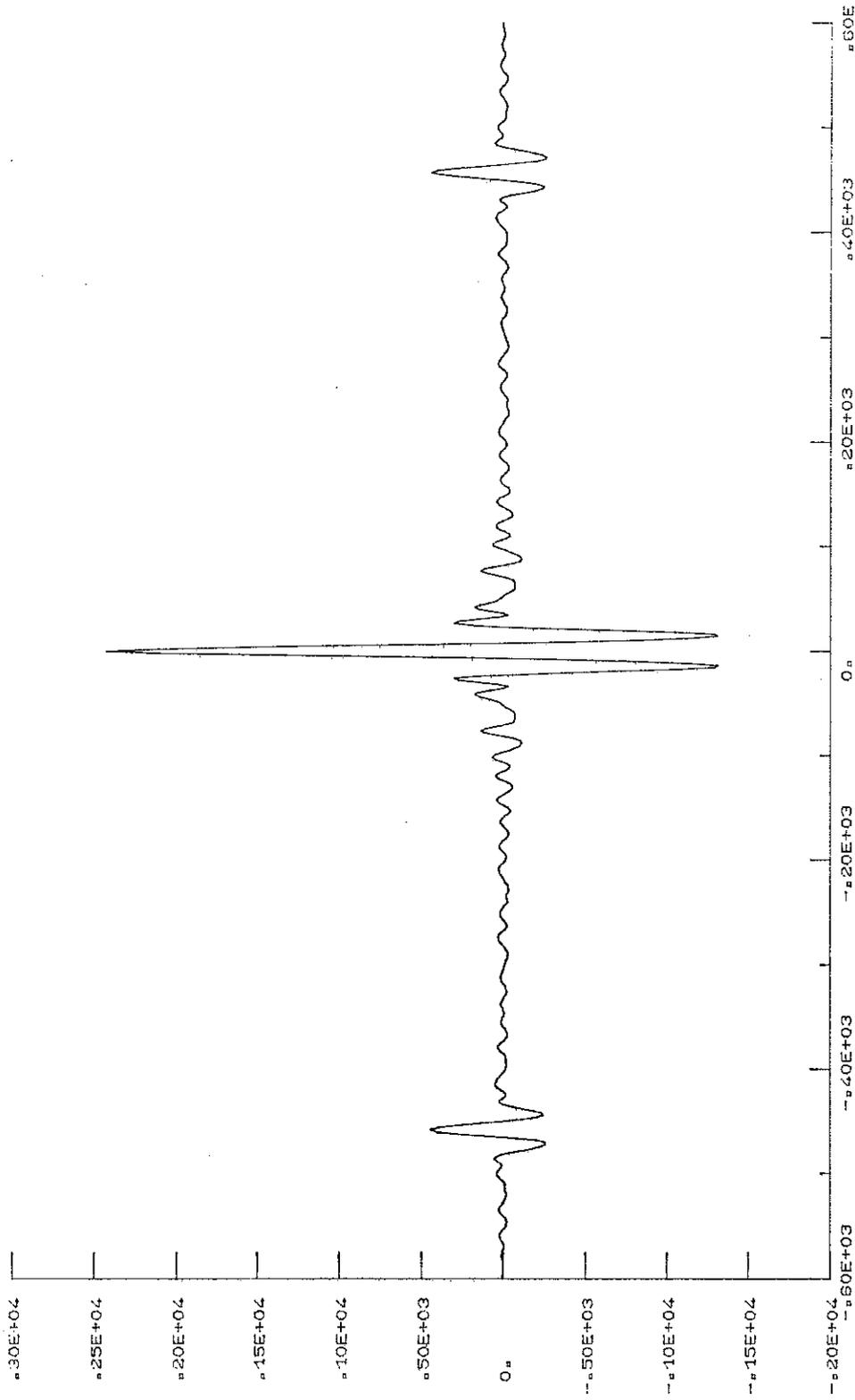
2) Amélioration du rendement du spectromètre :

La partie basse fréquence du rendement des diverses lames séparatrices diélectriques varie proportionnellement au carré de la fréquence. Cette dépendance en fréquence complique fortement la détection du rayonnement dans la plage de 2 à 20 cm^{-1} . Pour augmenter le rendement de ce spectromètre nous sommes partis de l'idée proposée par MARTIN et PUPLETT⁽¹⁰⁾, qui consiste à remplacer le système "lame séparatrice - miroirs plans de renvoi" par un système à lame séparatrice polarisante et miroirs de changement de polarisation. Sur cette méthode, qui sera décrite en détail dans le chapitre suivant, nous dirons seulement que ce système donne théoriquement un rendement constant et proche de 50 % dans la région des très basses fréquences.

3) Filtres et hublots.

Les systèmes de filtres et de hublots placés dans la trajectoire optique du rayonnement, produisent des interférences qui perturbent les mesures de transmission dans la région de basses fréquences. Une série de modifications de ces éléments est décrite dans le chapitre II. Nous montrerons les améliorations apportées par le nouveau spectromètre. Il faut remarquer que les interférences produites par des éléments à faces parallèles ne posent pas de problèmes pour des mesures effectuées dans la région des hautes fréquences où elles se compensent lorsqu'on fait le rapport des spectres avec et sans échantillon⁽¹¹⁾.

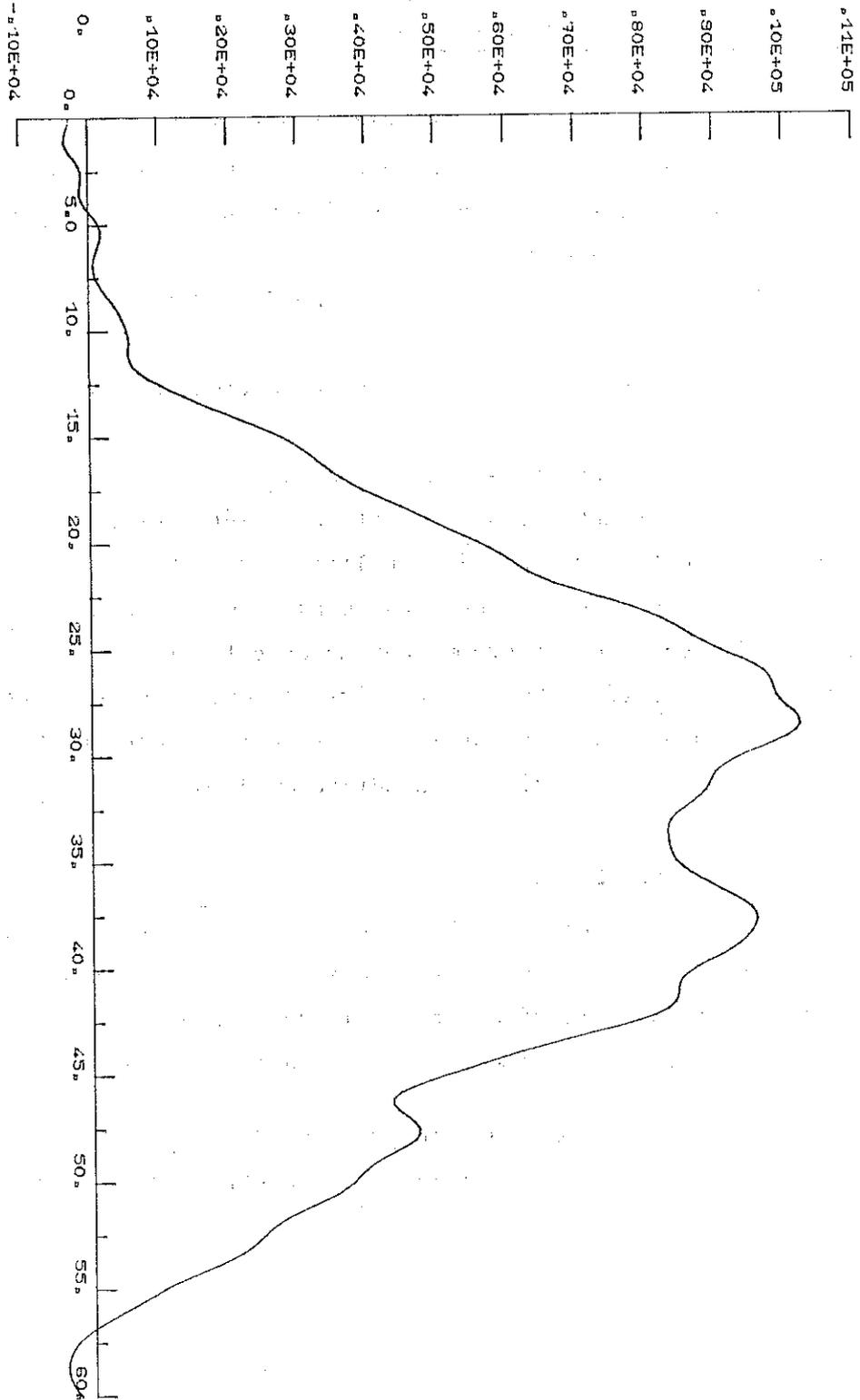
INTENSITE (U.A.)



X*10(MIC)

FIGURE 7-a Interférogramme avec lame séparatrice diélectrique
50 microns et miroirs de renvoi plans

DENSITE SPECTRALE (U.A.)



K (CM-1)

FIGURE 7-b Spectre avec lame séparatrice diélectrique
50 microns et miroirs de renvoi plans

4) Analyse des interférogrammes.

Les spectres calculés à partir de l'expression I.12 supposent la parfaite symétrie des interférogrammes $I(X)$ par rapport au maximum du pic central. On suppose aussi que la quantité $\frac{I(0)}{2}$ qu'on retranche correspond à la valeur de $I(X)$ quand X tend vers l'infini, et que le taux d'interférence à différence de marche nulle est égal à $2I(X)$ quand $X \rightarrow \infty$.

Dans la pratique, ces conditions ne sont pas tout à fait remplies.

On montrera dans le chapitre III une analyse détaillée des différentes corrections qu'on fait sur l'interférogramme. Ces corrections nous ont permis aussi d'améliorer la qualité des spectres dans la région de très basses fréquences. Comme exemple, nous montrons sur la figure 7-a un interférogramme obtenu avec l'interféromètre à lame séparatrice diélectrique 50μ et miroirs de renvoi plans, avec $X_{\max} = 0,6$ cm. Sur la figure 7-b, nous montrons le spectre obtenu par transformée de Fourier Cosinus de $I(X)$ avec apodisation de Connes.

5) Taille du bolomètre :

En regardant le spectre de la figure 7-b, on s'aperçoit que le début de la densité spectrale se situe aux alentours de 5 cm^{-1} ; cette limite pour la détection de fréquences plus basses que 5 cm^{-1} est due à la taille du bolomètre de "LOW" qui est de 1 mm^2 .

Pour résoudre le problème de la taille bolométrique nous avons essayé de mettre au point un bolomètre d'une taille supérieure à 40 mm^2 .

Dans un premier temps, nous avons testé 4 bolomètres en silicium implanté d'une taille de 1 cm^2 fournis par le L.E.T.I. Nous avons retenu celui qui présente la plus grande variation de résistance avec la température, c'est-à-dire $\alpha(R) = \frac{1}{R} \frac{dR}{dT} = -1.3 \text{ K}^{-1}$, à une température de 2,3 K. Ce bolomètre a une résistance de 1Ω à la température ambiante. Le bolomètre a été placé au point de focalisation du faisceau provenant du spectromètre, sous un angle de vue de 50° , qui est 7 fois plus grand qu'avec le bolomètre au germanium, qui a une ouverture de F/4.5.

Pour réduire le bruit des photons du Background nous avons placé un filtre en silice vitreuse de 5 mm d'épaisseur et de 3,5 cm de diamètre, à une température de 2,3 K. En gardant fixes les paramètres de capacité thermique et de fréquence du hacheur nous avons fait varier la conductance thermique des fils en or qui relient le bolomètre au bain thermique ainsi que le courant de polarisation.

Nous avons constaté que le bruit dû au passage de ce courant masque le signal de la source et de ce fait nous avons abandonné ce système.

Un détecteur à thermocouple or-fer placé sur une plaque réceptrice en cuivre de 1 cm^2 de surface et 5μ d'épaisseur, a été essayé comme bolomètre. Le signal détecté par le thermocouple a été amplifié par un transformateur à froid, blindé par un matériau supraconducteur. La sensibilité du thermocouple était de $10 \mu\text{V/K}$ et le rapport d'amplification du transformateur était de 3300. De faibles intensités ont été détectées avec ce système qui était limité surtout par le bruit microphonique apporté par le transformateur.

Un troisième détecteur a été testé : le détecteur In-Sb du type n.

Le fonctionnement de ce détecteur est basé sur le processus d'absorption d'énergie par les électrons libres de la bande de conduction. L'échauffement des électrons par rapport au réseau produit un changement dans la mobilité qui se répercute sur la conductivité qu'on mesure.

La résistance de ce détecteur de dimension $5 \times 3 \times 0,5 \text{ mm}$ est de 80Ω à la température de 4,2 K avec une concentration électronique de $5,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

En faisant travailler le hacheur à des fréquences supérieures à 100 Hz, nous avons obtenu d'excellents résultats en ce qui concerne le bruit qui était comparable à celui du bolomètre en germanium. En revanche la sensibilité était réduite par un facteur 200, ce qui nous a contraint à revenir au bolomètre en germanium.

REFERENCES

1. A. RIBEYRON,
Thèse, Doctorat du Troisième Cycle, Faculté des Sciences de l'Université de Grenoble (1970).
2. A.P. THORNE,
Spectrophysics, Science Paperbacks, Rayleigh's criterion, p. 126-8, 176, 183.
3. J. CONNES,
Le Journal de Physique et le Radium, 19, mars 1958, p. 197.
4. A. HANDI, E. DECAMPS, J.M. MUNIER,
Rev. Opt. 11, 584, 1963.
5. R. POPULAR,
Infrared Physics 4, 137 (1964).
6. W.B. LOW,
J. Opt. Soc. Am. 51 (1961) 1300.
7. Note Technique, Infrared Laboratories. Inc.,
P.O. Box 17015, Tucson, Arizona 8710.
8. FELLGETT,
J. Phys. Radium, 19 (1958) 187 and 273.
9. J. CONNES,
Revue d'Optique, 40e année n° 2, février 1961.
10. MARTIN et PUPLETT,
Ref. 4 de l'introduction.
11. A. RIBEYRON
Thèse Docteur-es-Sciences Physiques, l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble (1978).

C H A P I T R E I I

CHAPITRE II - SPECTROSCOPIE INTERFEROMETRIQUE POLARISANTE

I - INTERFEROMETRE A POLARISEURS

II - RENDEMENTS DES SPECTROMETRES AVEC INTERFEROMETRES A LAME SEPARATRICE DIELECTRIQUE ET LAME SEPARATRICE POLARISANTE

1. INTERFERENCE AVEC LAME SEPARATRICE DIELECTRIQUE
50 MICRONS ET MIROIRS DE RENVOIS A DOUBLE
REFLEXIONS

2. INTERFERENCE AVEC LAME SEPARATRICE DIELECTRIQUE
100 MICRONS ET MIROIRS DE RENVOIS A DOUBLE
REFLEXIONS

3. RENDEMENT D'UN INTERFEROMETRE A POLARISEURS

4. COMPARAISON DES RESULTATS

III - OPTIMISATION DE FILTRES

REFERENCES

C H A P I T R E . . . I I

SPECTROSCOPIE INTERFEROMETRIQUE POLARISANTE

I - INTERFEROMETRE A POLARISEURS

Nous avons vu que la spectroscopie optique de basses fréquences reste encore limitée principalement par la faible intensité continue fournie par les sources thermiques. Etant donné une telle source, deux problèmes technologiques se posent : d'une part concevoir des spectromètres avec des transmissions les plus grandes possibles de l'énergie fournie par la source et d'autre part améliorer la sensibilité des détecteurs.

Dans ce chapitre, nous allons considérer le premier problème en analysant les caractéristiques d'un spectromètre avec un interféromètre à polariseurs. Et pour le deuxième aspect nous utiliserons le détecteur décrit dans la section 1.7, dans lequel nous avons placé un filtre en silice vitreuse de 5 mm d'épaisseur. Ce filtre sert à éliminer le rayonnement au-dessus de 50 cm^{-1} . La transmission dans la région de $15 \text{ à } 60 \text{ cm}^{-1}$ de ce filtre dont la température est de 4.2 K, est montrée sur la figure 1.

Suivant les travaux effectués par D.H. MARTIN et E. PUPLETT⁽¹⁾ relatifs à un interféromètre à polariseurs dans la région millimétrique et submillimétrique, nous avons transformé un spectromètre à interféromètre à lame séparatrice diélectrique, en un spectromètre avec un interféromètre à polariseurs. La méthode interférométrique décrite par Martin utilise une lame séparatrice polarisante ayant une grande efficacité dans le domaine de 2 cm^{-1} à 100 cm^{-1} ; trois variantes de cette méthode sont montrées dans les figures 2, 3 et 4.

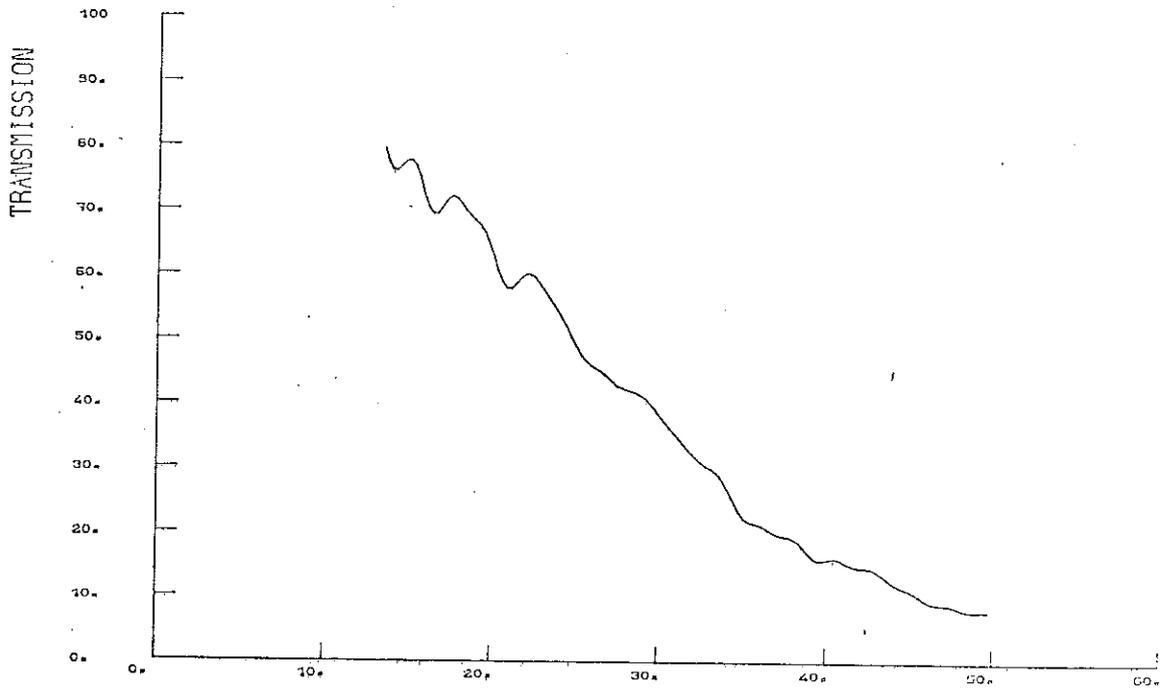


FIG. 1 TRANSMISSION DE SiO_2 W. TEM=4.2K K(CM-1)

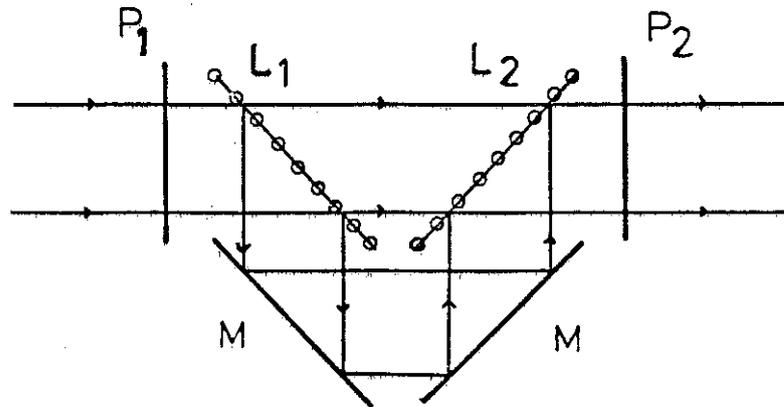


FIG. 2

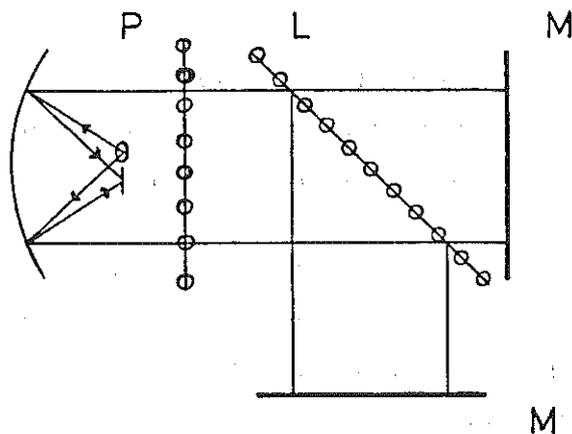


FIG. 3

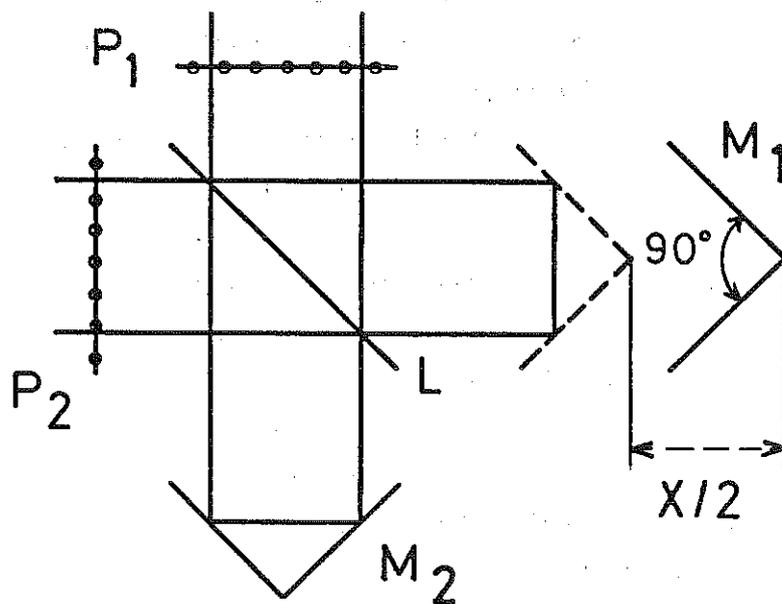


fig 4.

- L : Separatrice polarisante
- P_1 : Polariseur
- P_2 : Polariseur
- M_1 : Miroir a double reflexion
- M_2 : Miroir mobile a double reflexion
- X : Difference de marche optique

Nous avons choisi celle de la figure 4 qui permet des adaptations faciles à notre système existant.

L'énergie produite par la source arrive au niveau du polariseur P_1 où elle est polarisée linéairement suivant son axe optique ; ensuite ce rayonnement polarisé linéairement est divisé en deux faisceaux A et B par le polariseur L dont l'axe optique est à 45° de celui de P_1 . Le faisceau A, réfléchi vers M_1 , a une polarisation perpendiculaire à l'axe optique de L et le faisceau B transmis vers M_2 a une polarisation linéaire suivant l'axe optique de L. Le faisceau A subit deux réflexions sur le miroir M_1 en tournant de $\pi/2$ sa polarisation et en arrivant au polariseur L, il est transmis vers P_2 . Le faisceau B tourne aussi sa polarisation de $\pi/2$ et il est réfléchi par le polariseur L vers P_2 .

Avec un rayonnement monochromatique le faisceau est polarisé elliptiquement après avoir été recombinaé en L avec une ellipticité qui varie périodiquement avec l'augmentation de la différence de marche entre le faisceau A et le faisceau B. Après le passage à travers le polariseur P_2 le faisceau est polarisé linéairement avec une amplitude variant périodiquement avec la différence de marche de la même manière que dans un interféromètre à Michelson à lame séparatrice diélectrique et miroirs plans.

Soient trois vecteurs unitaires, \hat{p} , \hat{n} et \hat{t} , liés au faisceau lumineux. \hat{p} vecteur unitaire dans la direction du plan de la page, direction des axes optiques des polariseurs P_1 et P_2 .

\hat{n} le vecteur unitaire à 45° par rapport à la normale à la page, direction de l'axe optique du polariseur L.

Et \hat{t} le vecteur unitaire dans la direction perpendiculaire à l'axe optique du polariseur L.

Pour un rayonnement monochromatique d'amplitude \vec{E} , nous avons :

à la sortie de P_1 en arrivant au polariseur L :

$$\vec{E}_1 = a \hat{p} \cos \omega t = -\frac{a}{\sqrt{2}} \hat{t} \cos \omega t + \frac{a}{\sqrt{2}} \hat{n} \cos \omega t$$

à la sortie du polariseur séparateur L :

$$\vec{E}_t = -\frac{a}{\sqrt{2}} \hat{n} \cos(\omega t + \Delta_A) + \frac{a}{\sqrt{2}} \hat{t} \cos(\omega t + \Delta_B)$$

et à la sortie du polariseur P_2 :

$$\begin{aligned} [E_o] &= \vec{E}_t \cdot \hat{p} = \frac{a}{2} [\cos(\omega t + \Delta_A) + \cos(\omega t + \Delta_B)] \\ &= a \cos(\omega t + \bar{\Delta}) \cos \frac{\Delta}{2} \end{aligned}$$

avec $\bar{\Delta} = \frac{\Delta_A + \Delta_B}{2}$ et $\Delta = \Delta_A - \Delta_B$

où Δ_A et Δ_B sont les déphasages des faisceaux A et B ;

$\bar{\Delta}$ est la moyenne de Δ_A et Δ_B ;

$$\Delta = \Delta_A - \Delta_B = 2\pi KX ;$$

X étant la différence de marche entre les deux faisceaux.

L'intensité sortante sera :

$$\begin{aligned} J &= \langle |E_o|^2 \rangle = \frac{a^2}{2} \cos^2 \frac{\Delta}{2} = \frac{a^2}{4} (1 + \cos \Delta) \\ &= \frac{S_o}{2} (1 + \cos 2\pi KX) \end{aligned}$$

Ce résultat est le même que celui obtenu dans l'équation I.1 avec un interféromètre à lame séparatrice diélectrique.

D'une manière analogue, pour une distribution spectrale $S(K)$ nous avons :

$$I(X) = \frac{I(0)}{2} + \int_0^{\infty} S(K) \cos 2\pi K x dk \quad \text{II.1}$$

Expression à travers laquelle, en suivant les mêmes étapes décrites dans le paragraphe 2 du chapitre I, nous savons que la densité spectrale est donnée par la transformée de Fourier, cosinus de $I(X)$:

$$S_e(X_{\max}, K) = 4 \int_0^{\infty} S(K') R(K, K', X_{\max}) dK' \quad \text{II.2}$$

avec X_{\max} égal au déplacement maximum du miroir mobile,

et $R(K, K', X_{\max})$ la fonction d'appareil déjà définie dans la section I.2 est donnée par :

$$R(K, K', X_{\max}) = 2X_{\max} \left[\frac{\sin 2\pi(K - K')X_{\max}}{2\pi(K - K')X_{\max}} + \frac{\sin 2\pi(K + K')X_{\max}}{2\pi(K + K')X_{\max}} \right]$$

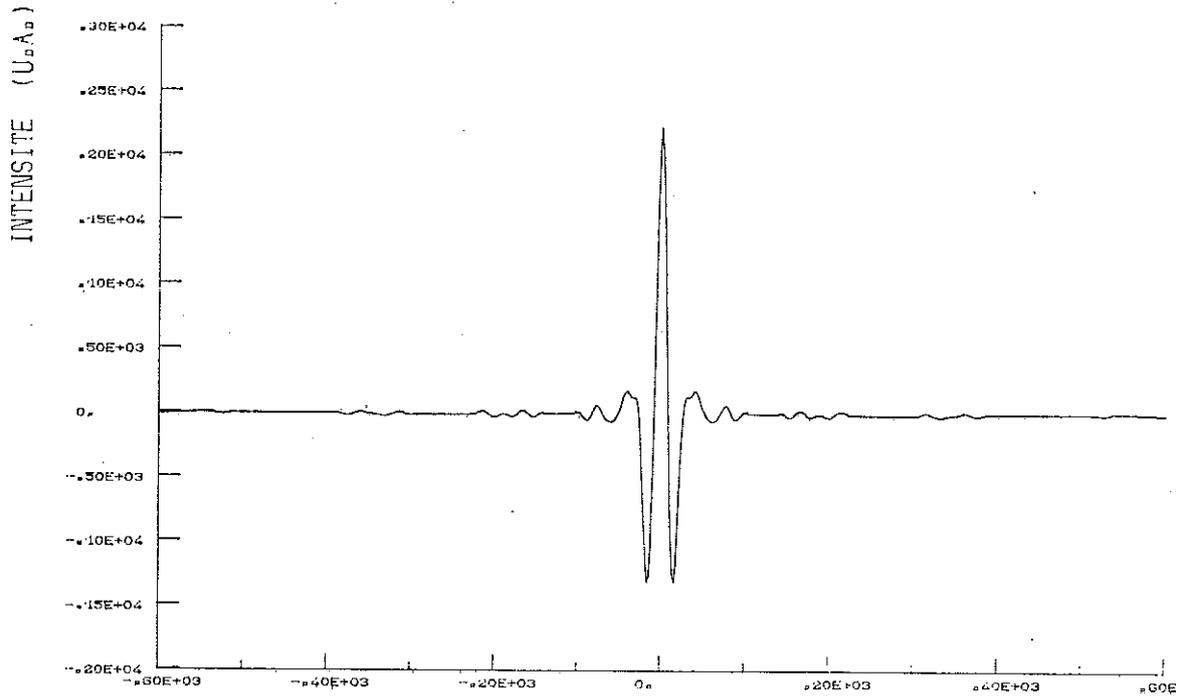


FIG. 5-a INTERFEROGRAMME L.S.D. 50 MIC. X * 10 (MIC.)

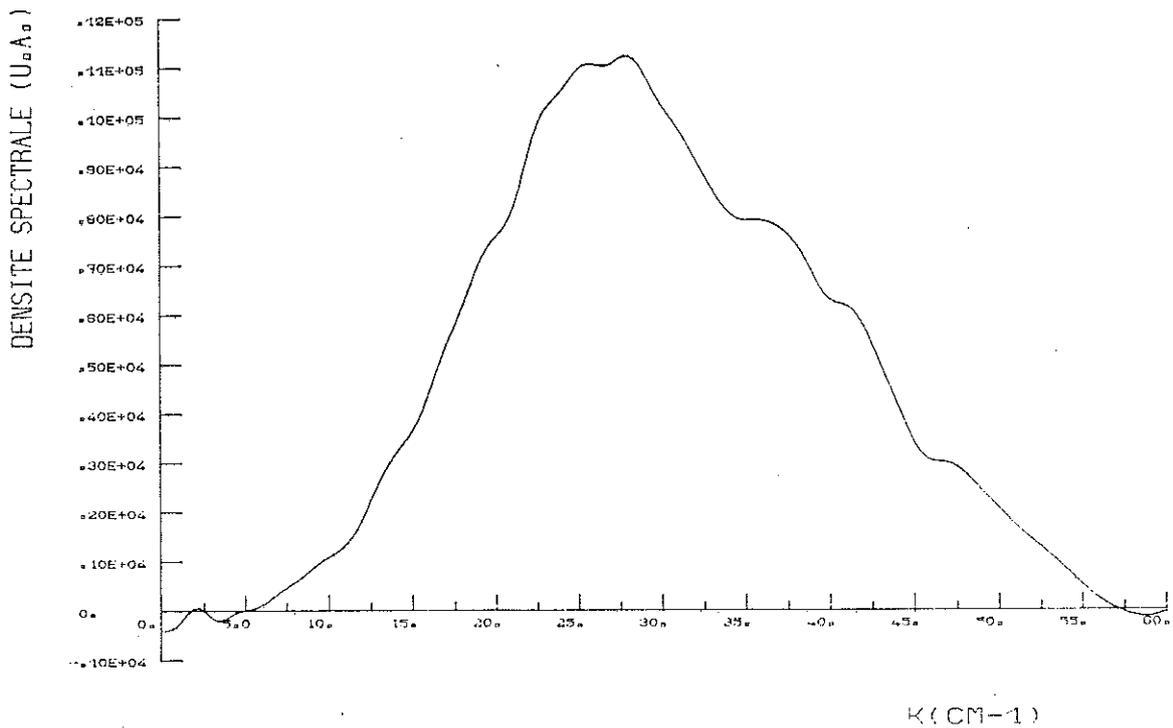


FIG. 5-b SPECTRE DE L.S.D. 50 MIC. ET MIROIRS
A DOUBLE REFLEXION.

II - RENDEMENTS DES SPECTROMETRES AVEC INTERFEROMETRES A LAME SEPARATRICE

DIELECTRIQUE ET LAME SEPARATRICE POLARISANTE

Avant de montrer les détails de l'obtention des spectres mesurés par transformée cosinus de Fourier d'un interférogramme, soit par l'expression I.1, soit par l'expression II.1, nous allons décrire les principales étapes qui nous ont permis d'améliorer le rendement de l'interféromètre, dans la région des basses fréquences.

Trois étapes nous ont permis de mettre au point le système interférométrique à polariseurs, à savoir :

1) Interféromètre avec lame séparatrice diélectrique 50 microns et miroirs de renvois à double réflexion :

D'abord nous avons remplacé dans l'interféromètre chacun des miroirs plans par des miroirs à double réflexion avec un angle de 90° , dit miroir en oeil de chat (voir figure 4), en gardant la lame séparatrice diélectrique de 50 microns d'épaisseur (par la suite, on notera : L.S.D. 50 μ). D'autre part on a augmenté la taille de la source, passant d'un diaphragme de 2 mm de diamètre à un autre de 8 mm.

Nous montrons dans la figure 5.a et 5.b l'interférogramme obtenu avec le spectre correspondant. Cette expérience a été faite à une température de 300 K, avec un filtre en polyéthylène noir pour éliminer le rayonnement dans le visible et un autre également en polyéthylène pour éliminer le rayonnement au-dessous de 140 cm^{-1} .

2) Interférence avec lame séparatrice diélectrique 100 microns et miroirs de renvois à double réflexion :

En gardant les mêmes miroirs et la même taille de la source de 8 mm, mais en remplaçant la lame de 50 microns par une lame de 100 microns, nous obtenons l'interférogramme montré sur la figure 6.a et le spectre correspondant sur la figure 6.b. La température à laquelle nous avons fait cette expérience est aussi de 300 K, avec un filtre en polyéthylène noir pour éliminer le rayonnement dans le visible et un autre pour éliminer celui au-dessus de 100 cm^{-1} .

Une preuve de l'amélioration après ces deux modifications

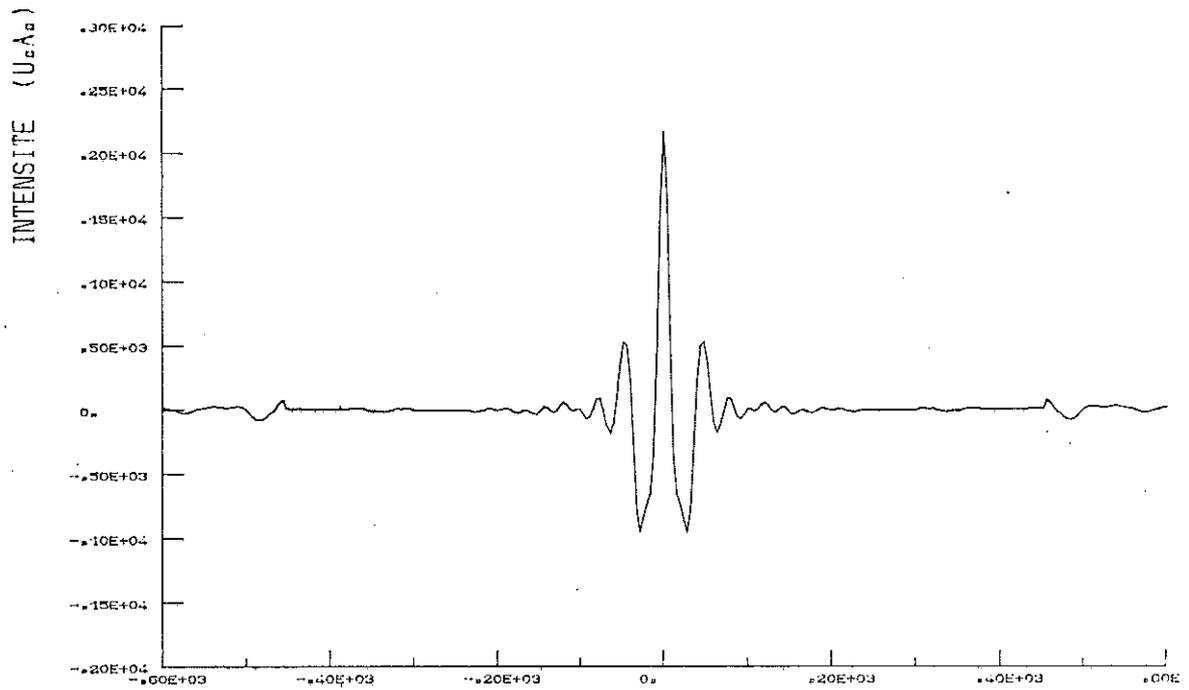


FIG. 6-a INTERFEROGRAMME L.S.D. 100MIC X*10(MIC.)

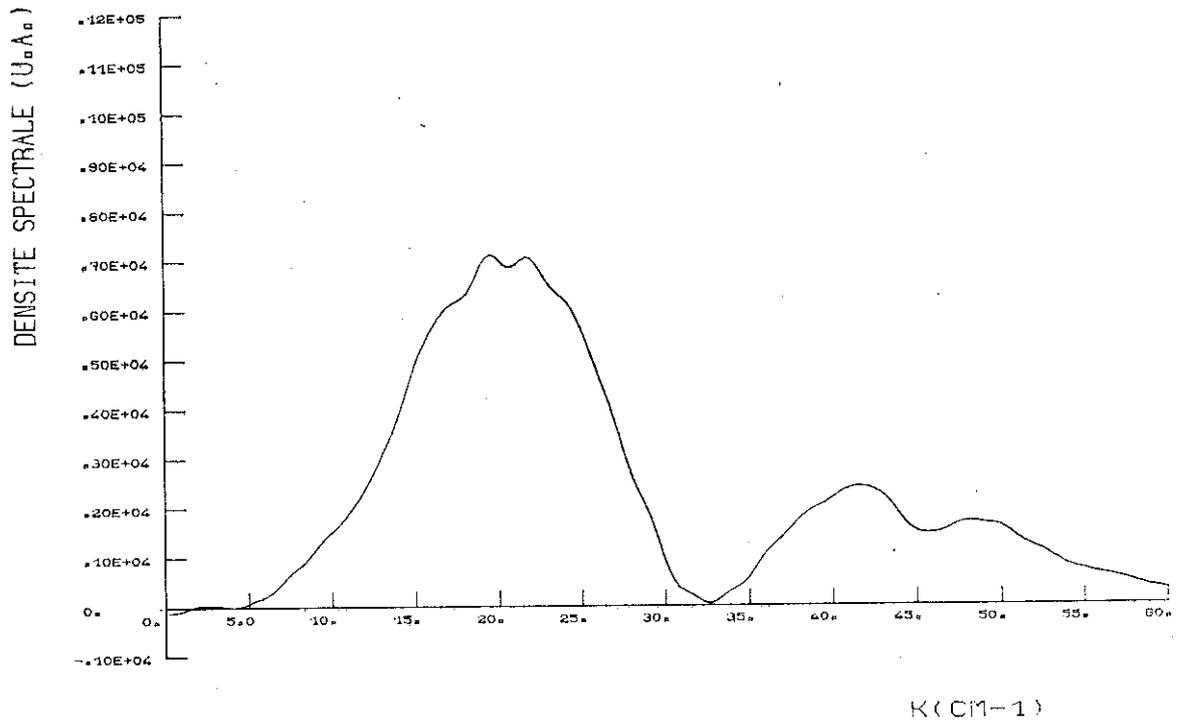


FIG. 6-b SPECTRE DE LAME 100 MIC. TEM 300K.

DENSITE SPECTRALE (U_aA_a)

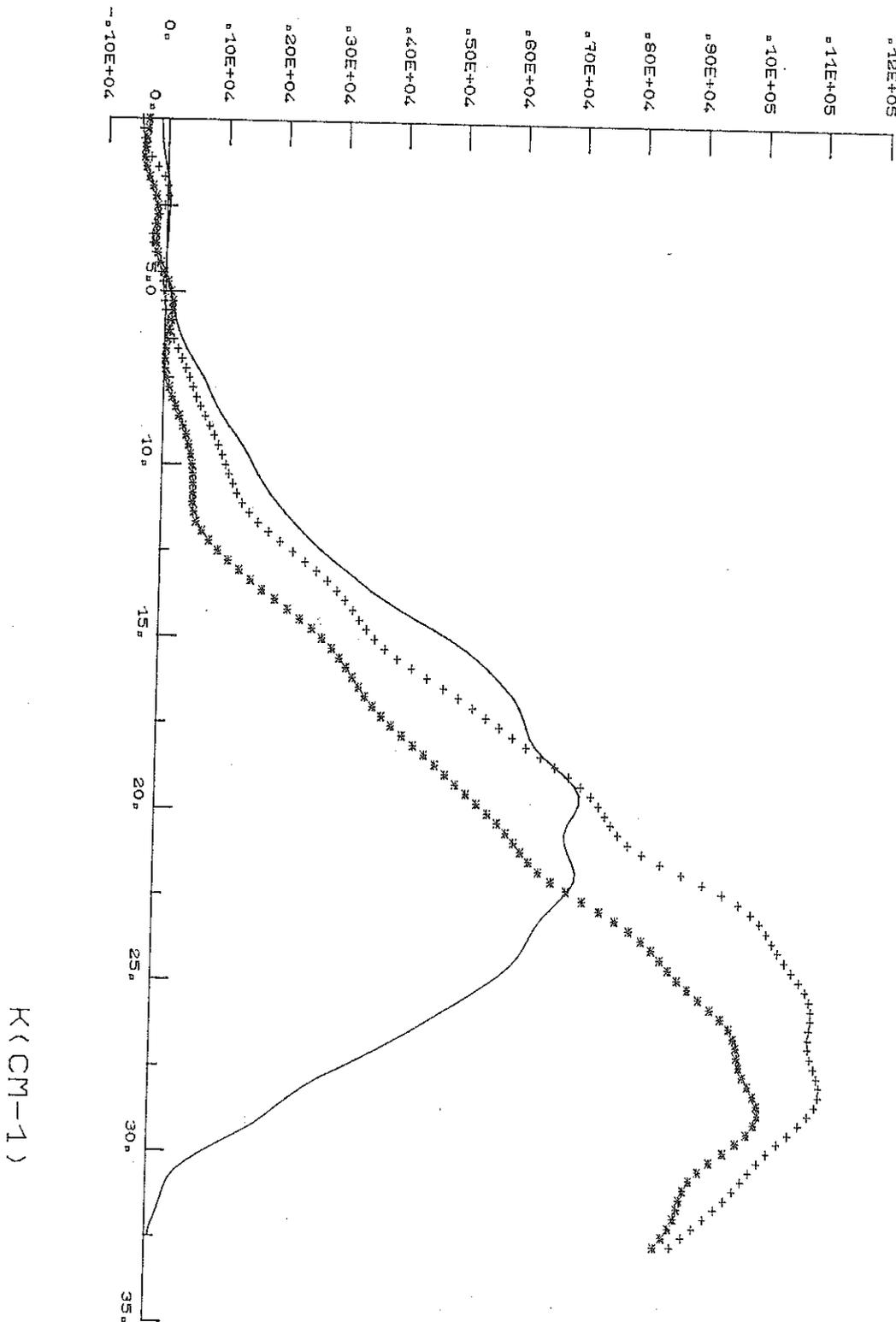


FIG. 7 PARTIE BASSES FREQUENCES

K (CM-1)

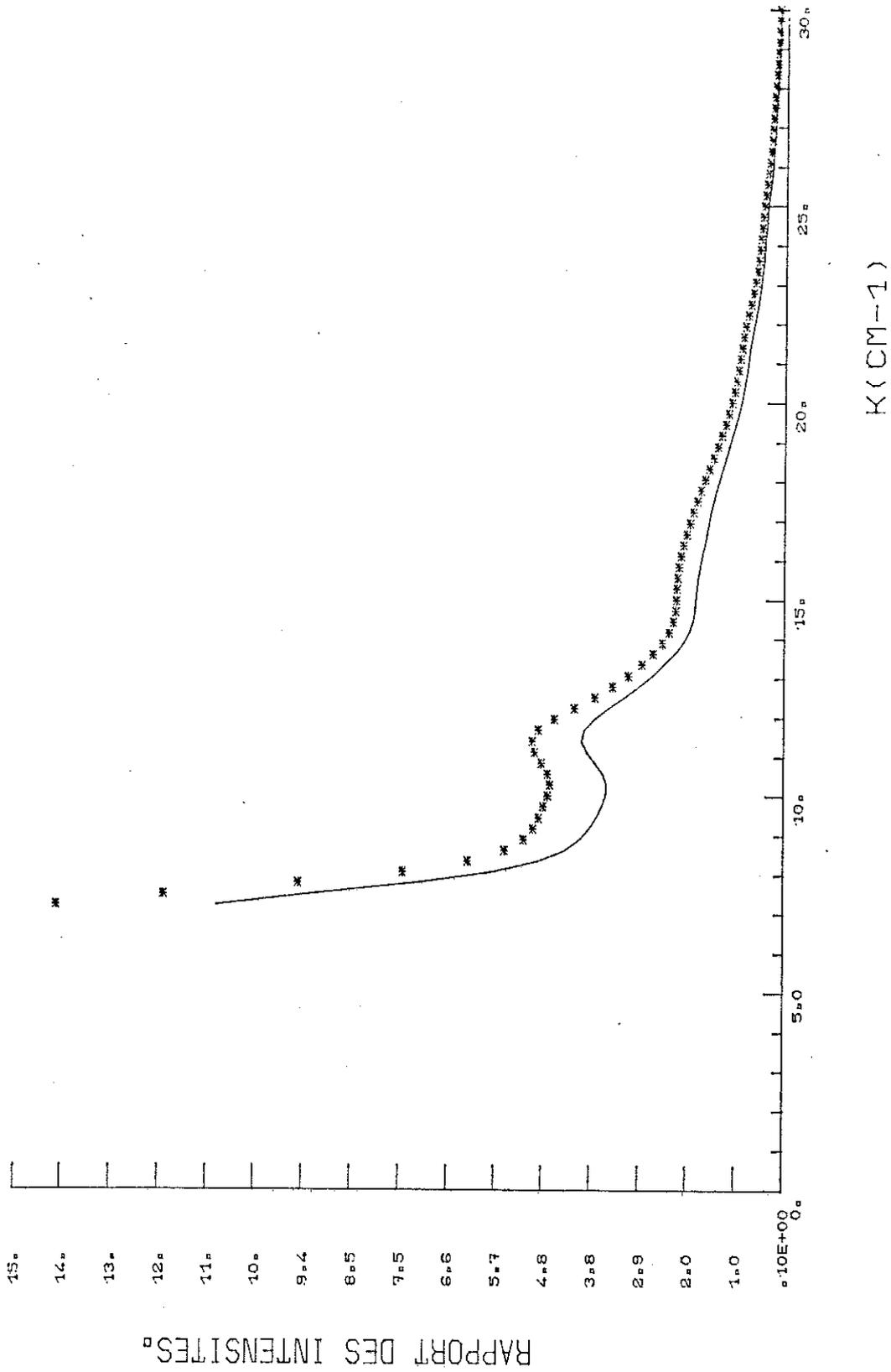
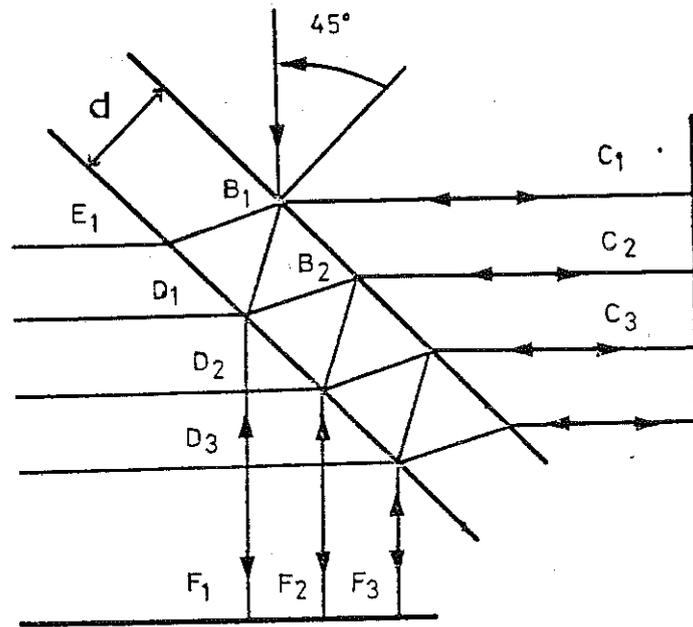
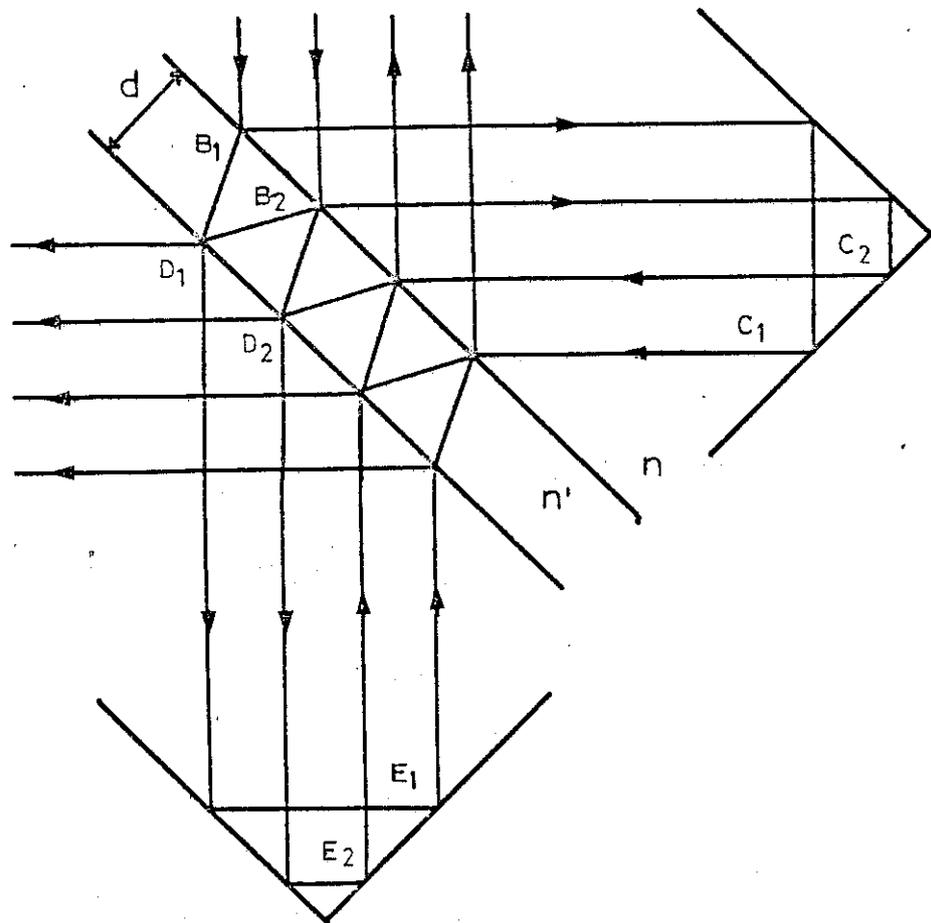


FIG. 8 COMPARAISON DES RENDEMENTS DE L.S.P. A 300K (COURBE ***) ET L.S.P. A 4.2K (COURBE ---) PAR RAPPORT AU L.S.P. 50 MIC ET MIROIRS PLANS.



Interference d'une onde plane sur une lame
à faces parallèles et miroirs plans

FIG. 9



Interference d'une onde plane sur une lame
a faces paralleles et miroirs a double reflexion

FIG. 10

est donnée par un meilleur taux d'interférence : $\frac{I(0)}{2I}$

- $I(0)$ est l'intensité à différence de marche nulle ;
- I l'intensité à différence de marche très grande.

Sa valeur est de 93.5 % pour les deux expériences décrites. En général, on obtient une valeur de 88 % pour un interférogramme réalisé avec une L.S.D. et miroirs de renvois plans comme celui de la figure 7.a du chapitre I.

Nous montrons sur un même graphique (figure 7) la partie basses fréquences de l'intensité spectrale obtenue dans les cas suivants :

- ** sans modification ;
- ++ miroir à double réflexion et L.S.D. 50 μ ;
- — miroir à double réflexion et L.S.D. 100 μ .

Le point de départ de ces trois courbes est aux alentours de 5 cm^{-1} , fréquence correspondant à la limite donnée par la taille du bolomètre. On observe un certain gain en énergie par rapport aux spectres obtenus avec l'interféromètre à L.S.D. avec des miroirs plans (courbe tracée en étoiles ***).

Pour mieux apprécier le gain en énergie en fonction de la fréquence, figure 8, nous reportons les rapports des spectres obtenus après modifications avec le spectre obtenu avec la L.S.D. 50 microns.

Cette amélioration dans le taux d'interférence du système L.S.D. avec miroirs à double réflexion est principalement liée à la nouvelle géométrie rencontrée par les faisceaux divisés (voir figures 9 et 10), le recouvrement de 2 faisceaux étant meilleur avec les miroirs en oeil de chat qu'avec les miroirs plan.

3) Interféromètre à polariseurs :

La méthode qui est la plus couramment utilisée pour polariser linéairement le rayonnement dans l'infrarouge lointain, est celle dans laquelle la polarisation est produite par transmission à travers un réseau de fils métalliques parallèles, ayant une structure périodique dans une direction donnée. Cette période doit être du même ordre de grandeur que la longueur d'onde qu'on désire polariser. Selon LARSEN⁽²⁾, pour un réseau de fils métalliques séparés par une distance d , on peut obtenir un degré de polarisation d'à peu près 98 % en transmission pour des longueurs d'onde trois fois supérieures à d ; $\lambda > 3d$.

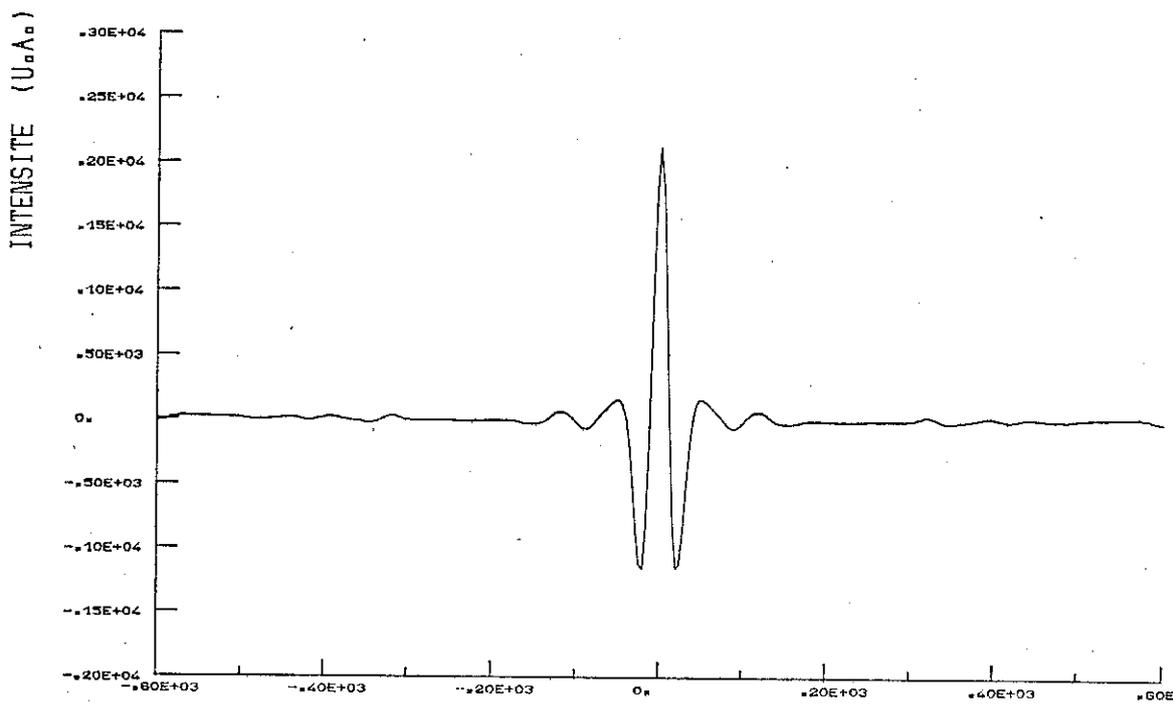
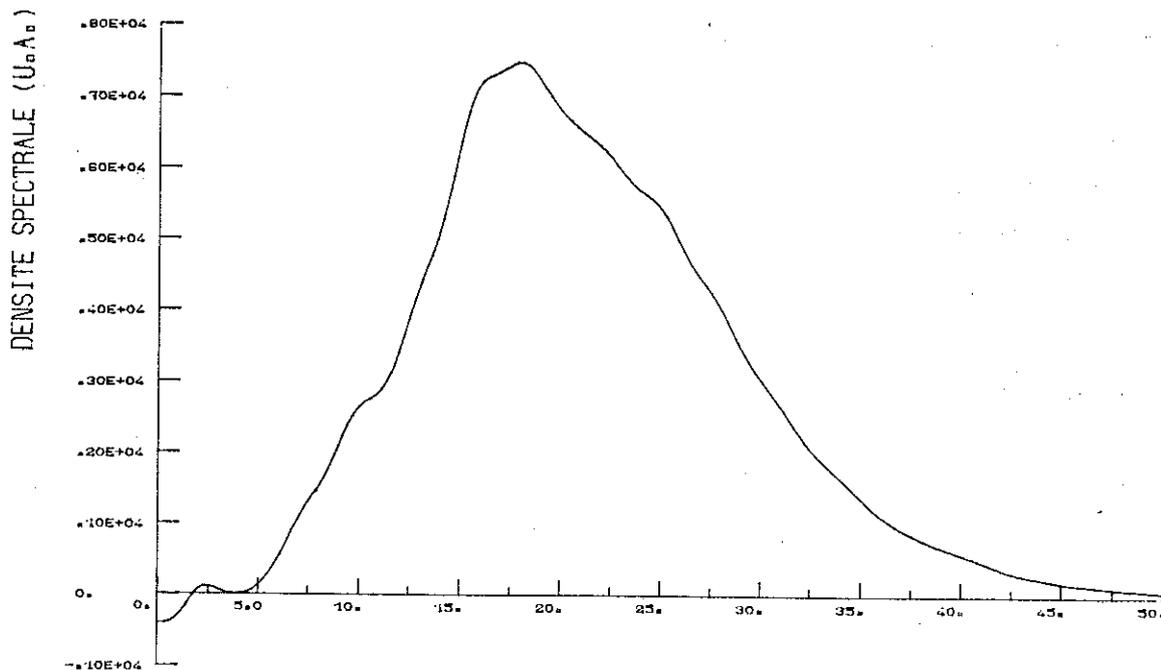


FIG. 11-a INTERFEROGRAMME L₂S₂P₂ TEM=300 K X*10(MIC.)



K(CM-1)

FIG. 11-b SPECTRE DE L₂S₂P₂ TEM=300K

AUTON⁽³⁾ a conçu d'excellents polariseurs dans la gamme de 16 mic à 1 000 mic en utilisant un réseau métallique. Ces polarisateurs sont posés sur un substrat en polyéthylène. BACKEY MEAR INC.⁽⁴⁾ fabrique aussi des polariseurs en fils d'or, posés sur un substrat en MYLAR avec 1 000 fils par pouce, polarisant linéairement des longueurs d'onde supérieures à 100 mic.

Après avoir effectué différents tests sur des polariseurs avec substrat et d'autres sans substrat, nous avons constaté qu'il valait mieux utiliser des polariseurs en fils de cuivre sans support et nous avons élaboré une technique pour leur construction. Ces polariseurs sont composés de fils de cuivre nus de 40 μ de diamètre, avec un espacement moyen de 70 mic et une surface de l'ordre de 100 cm².

Trois de ces polariseurs ont été utilisés dans l'interféromètre selon la disposition de la figure 4. On atteint ainsi la méthode interférentielle proposée par Martin et Puplett.

On constate que le taux d'interférence à différence de marche nulle est de 95 % (fig. 11-a).

Nos résultats montrent une amélioration du taux d'interférence de l'ordre de 2 % par rapport aux expériences 1 et 2 et de 7 % par rapport aux interférogrammes obtenus avec un système classique. D'autre part, nous obtenons une remontée plus rapide de l'intensité du spectre dans la partie basses fréquences (fig. 11-b). Ceci nous permet de conclure que le taux de polarisation est de près de 98 % dans la lame séparatrice polarisante.

On observe aussi que la coupure en fréquence des polariseurs se situe à 50 cm⁻¹ ce qui vérifie la condition de Larsen : dans notre cas, on a $d \approx 70$ mic et par conséquent $3d \approx 210$ mic qui correspond à une fréquence de 47,7 cm⁻¹.

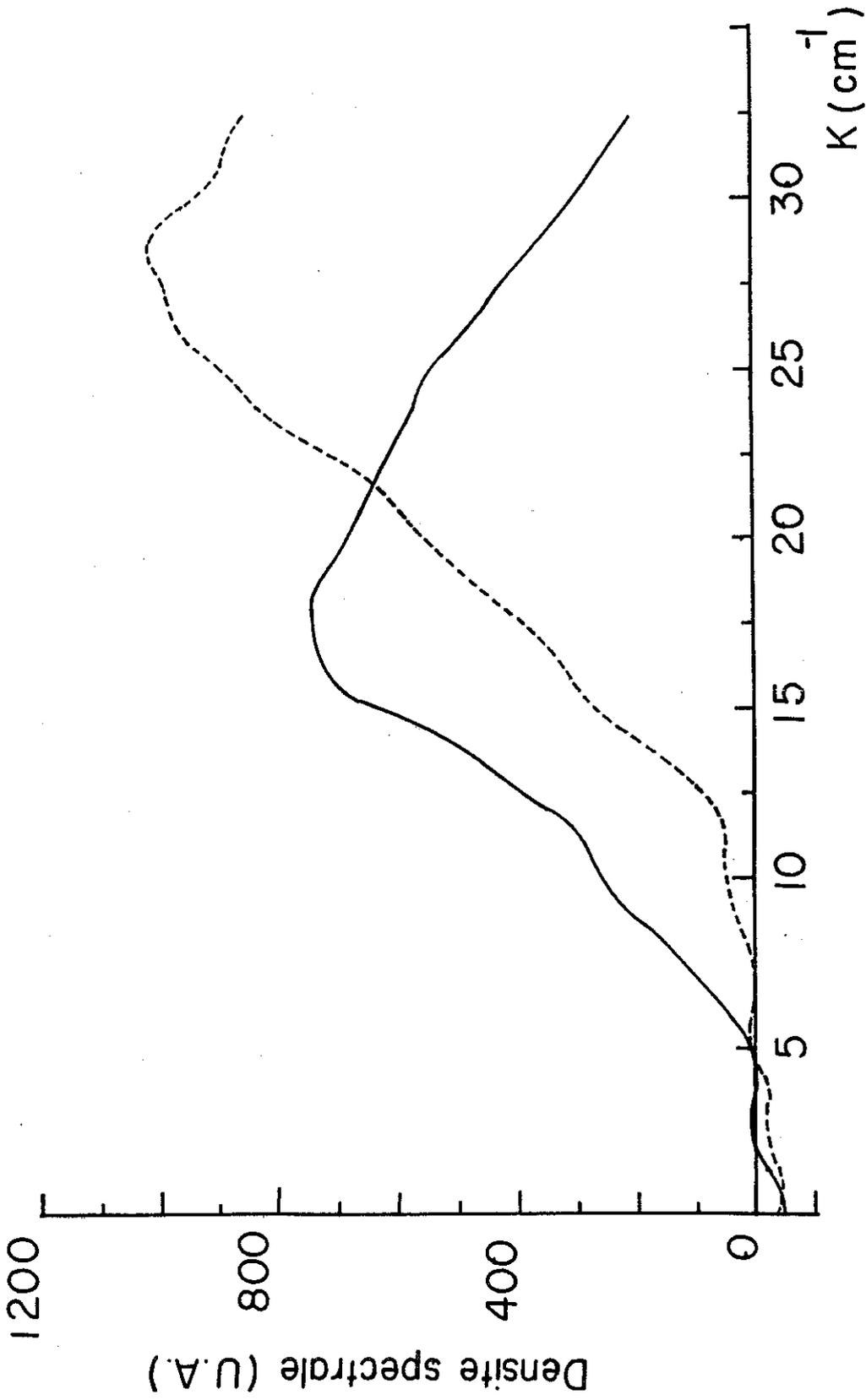
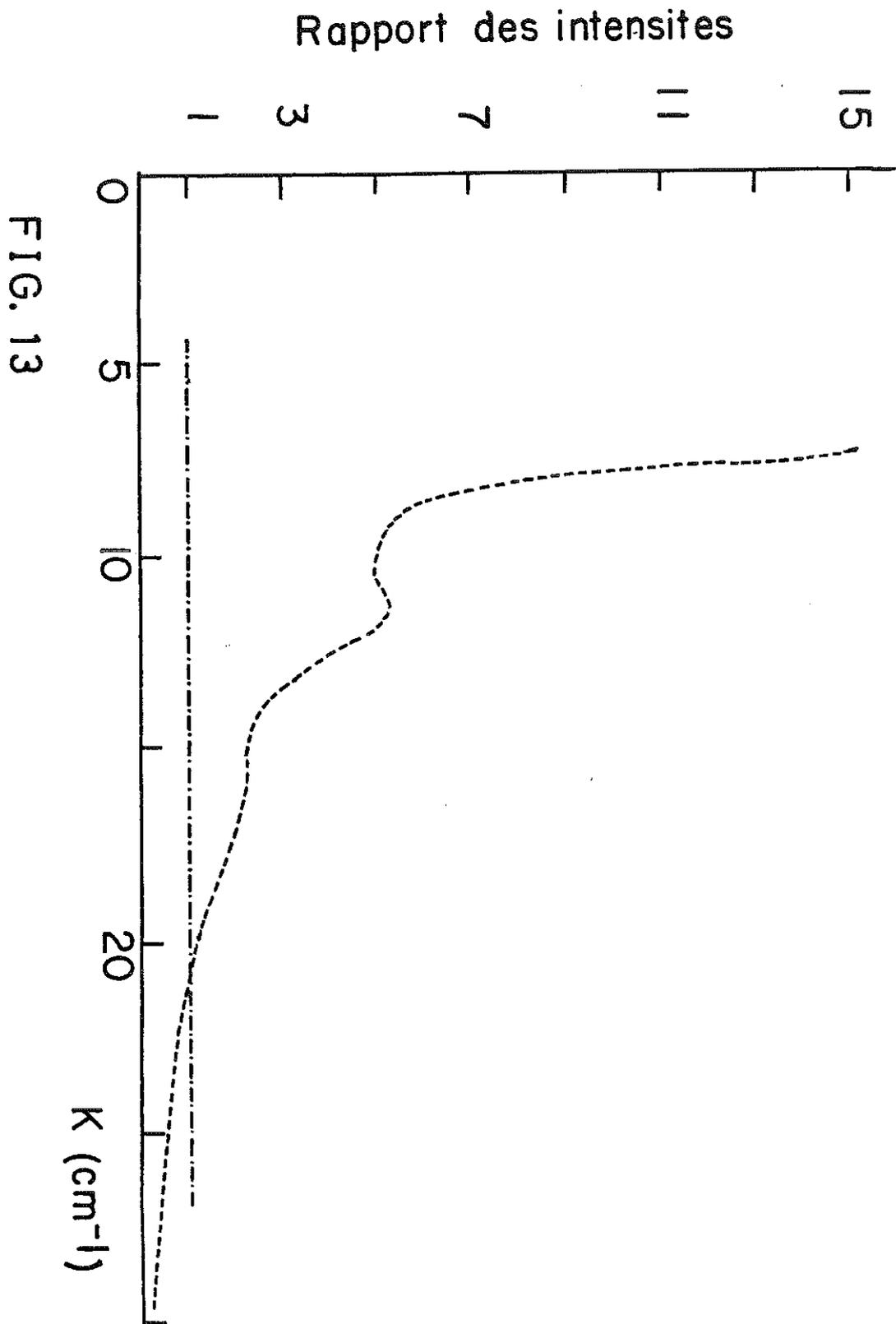


FIG.12 PARTIE BASSES FREQUENCES

- Rendement interféromètre à polariseurs
- - - Rendement interféromètre à lame séparatrice



4) Comparaison des résultats :

Dans la figure 12, nous montrons la partie des basses fréquences des spectres obtenus avec la lame séparatrice polarisante (courbe continue), ainsi que le spectre obtenu avec L.S.D. 50 mic. et miroirs plans (courbe ---). On observe que la courbe en continu à basse fréquence une pente plus importante que celle en tirets, ce qui montre un rendement meilleur du système à polariseur pour ces fréquences. Sur la figure 13, nous montrons les mêmes résultats dans un diagramme qui met bien en évidence le meilleur rendement du système à polariseurs : on y a porté en fonction de la fréquence les rapports des intensités spectrales du système polarisant (courbe 11-b) par rapport au spectre de la L.S.D. 50 mic et miroirs de renvois plans.

On constate, grâce aux améliorations de la méthode interférométrique à polariseurs, que la détection dans la région des basses fréquences est augmentée dans la région de 5 cm^{-1} jusqu'à 20 cm^{-1} pour la lame séparatrice polarisante (par la suite on notera L.S.P.). Par exemple un gain d'un facteur 6 est constaté à 10 cm^{-1} .

Bien entendu, le rendement obtenu avec la L.S.P. est aussi plus important que dans les expériences décrites dans 1 et 2. A titre de comparaison nous montrons sur la figure 14 la partie basses fréquences du spectre obtenu avec L.S.P. et la L.S.D. 100 microns avec miroirs de renvois à double réflexion.

Pour faire ces comparaisons qualitatives des spectres, nous avons reporté à un même niveau de référence tous les interférogrammes, ce niveau de référence étant celui de LSD 100 μ .

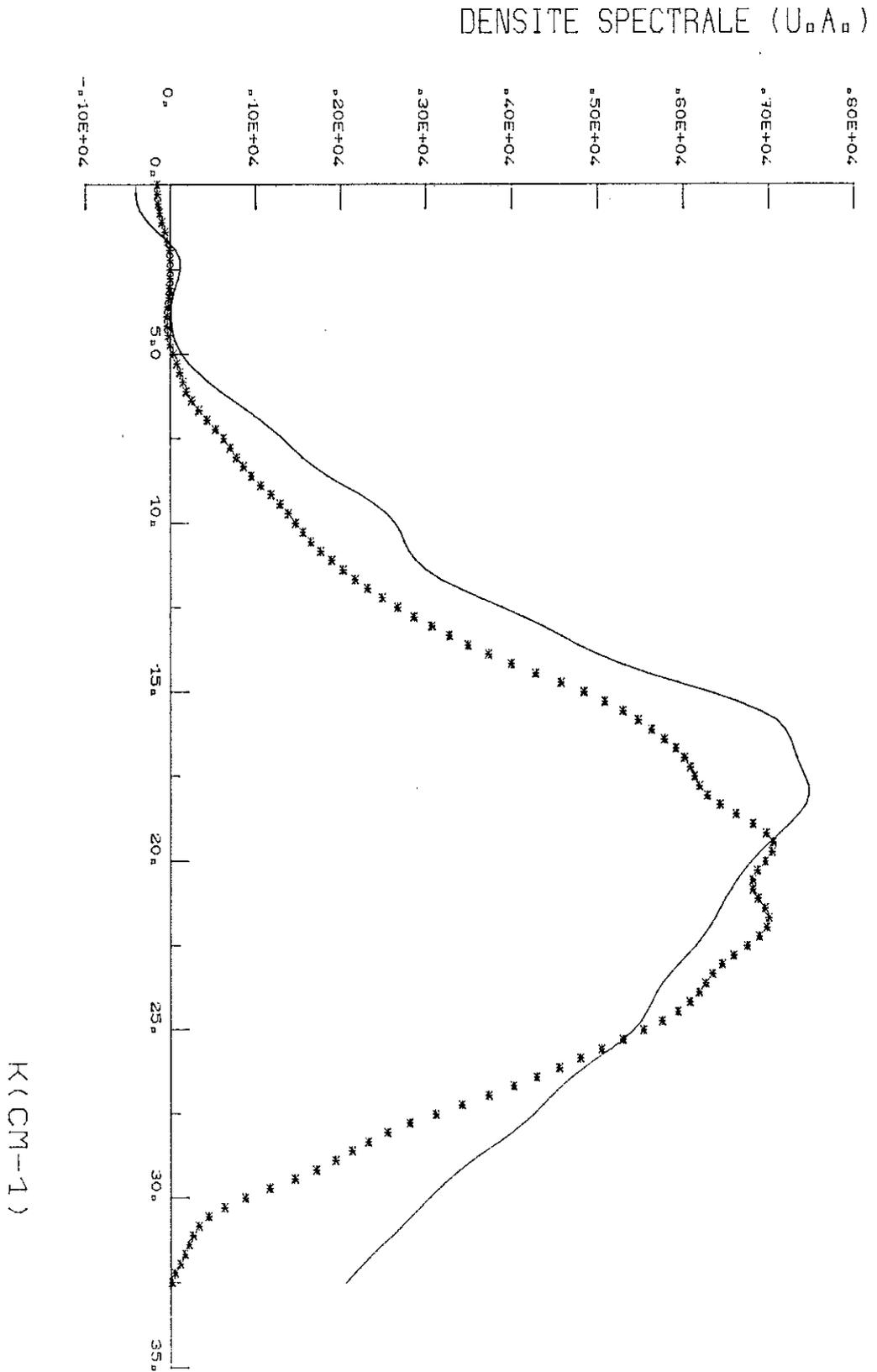


FIG. 14 PARTIE BASSES FREQUENCES DE L.S.P. A 300K ET L.S.D. 100 MIC A 300K.

III - OPTIMISATION DES FILTRES

Une des limitations dans la performance des spectromètres analysant le rayonnement dans l'infrarouge lointain est l'utilisation des filtres nécessaires pour enlever le rayonnement dans l'infrarouge proche et le visible. Cette limitation provient du fait de ne pas disposer de filtres à coupures aigües dit "shap cut-off filters", lesquels atténuent l'énergie qu'on désire analyser, d'un facteur 1/2 ou 1/3. D'autre part, ces filtres et aussi d'autres éléments à faces parallèles produisent des interférences supplémentaires qui perturbent fortement la partie des basses fréquences. Une meilleure performance est obtenue en utilisant le système interférométrique à polariseurs, décrit auparavant, avec lequel nous avons écarté le système de filtres utilisé dans l'interféromètre à L.S.D.

Sur la figure 16, nous montrons tous les éléments qui se trouvent sur la trajectoire optique du rayonnement dans un interféromètre à L.S.D. A partir de la source d'émission jusqu'au détecteur, nous avons : enveloppe en silice de la lampe de mercure, d'épaisseur 1 mm approximativement ; quatre hublots bisotés au niveau du cryostat, dont deux en polyéthylène à l'extérieur, à température ambiante et deux en shaphir à 4,2 K ; ensuite deux filtres en polyéthylène pour éliminer le visible et l'infrarouge proche d'épaisseur 0,5 mm ; lame séparatrice diélectrique à l'ambiante ; et au niveau du détecteur, un hublot en polyéthylène blanc d'épaisseur 1,4 mm à 300 K ; un filtre en téflon d'épaisseur 1,5 mm à la température de 2 K et la lentille convergente en shaphir d'épaisseur 1 mm à la température de 2 K. Nous avons dans ce système 7 éléments, à faces parallèles.

Dans tous les composants à faces parallèles, le faisceau subit des réflexions à l'intérieur de celles-ci, avec des interférences constructives pour des longueurs d'onde qui satisfont à la condition⁽⁵⁾

suivante : $2nE \cos \theta = m\lambda$;
où n est l'indice de réfraction,

E l'épaisseur de l'élément,

θ l'angle de réfraction,

m un nombre entier,

et λ la longueur d'onde du rayonnement.

Le pic d'interférence produite par réflexions internes d'un de ces éléments se trouve à une distance d par rapport au maximum central de l'interférogramme, distance égale au déphasage $m\lambda$ du rayonnement qui interfère. Dans le cas présent, nous avons une incidence normale sur les éléments et on a : $d = 2nE$.

Cette interférence est traduite comme une oscillation de période $K = \frac{1}{d}$ superposée au spectre, quand on fait la transformée de Fourier de l'interférogramme. L'intensité de cette oscillation devient de plus en plus importante au fur et à mesure que l'intensité du signal du spectre diminue, c'est-à-dire dans la région de basses fréquences.

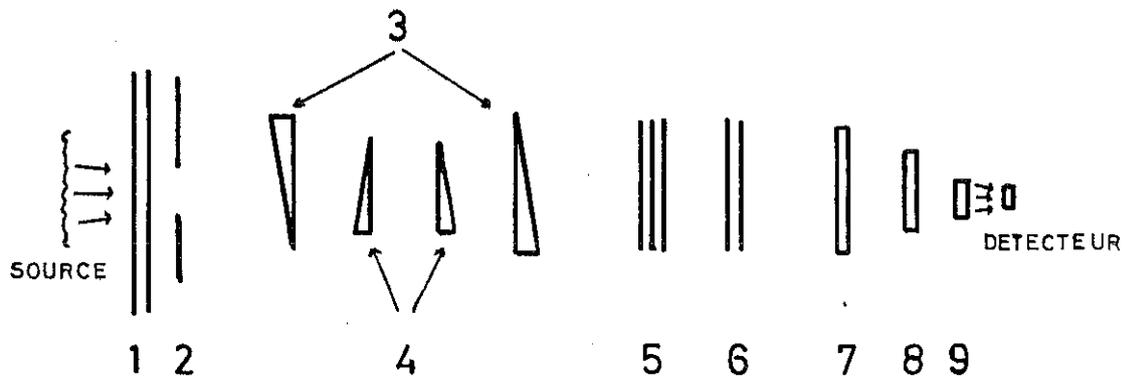


FIGURE 16

- 1 - Enveloppe de la lampe ;
- 2 - Diaphragme ;
- 3 - Hublots extérieurs du cryostat ;
- 4 - Hublots intérieurs du cryostat ;
- 5 - Filtres ;
- 6 - lame séparatrice diélectrique ;
- 7 - Hublot extérieur du détecteur ;
- 8 - Filtre en téflon ;
- 9 - Lentille en saphir.

Dans l'interféromètre à polariseurs nous avons éliminé d'abord les pertes en énergie par réflexion à l'intérieur de la L.S.D.; les filtres qu'on utilise pour éliminer le visible et l'infrarouge proche, étant remplacés par le fonctionnement à la manière d'un filtre du polariseur ; nous avons remplacé le filtre en téflon par un filtre en silice de 5 mm d'épaisseur dont la première interférence constructive se trouve à une distance d égale à 2 cm, c'est-à-dire deux fois plus grande que le déplacement maximal du miroir mobile. Pour enlever les interférences provenant de l'enveloppe de la lampe nous avons déformé fortement celle-ci de manière à détruire le parallélisme.

D'un système présenté sur la figure 16, nous sommes passés au montage montré sur la figure 17. Dans ce dernier montage, il nous reste en principe deux éléments à faces parallèles au niveau du détecteur. Comme nous le montrerons dans le prochain chapitre, les interférences de ces éléments peuvent être supprimées mathématiquement.

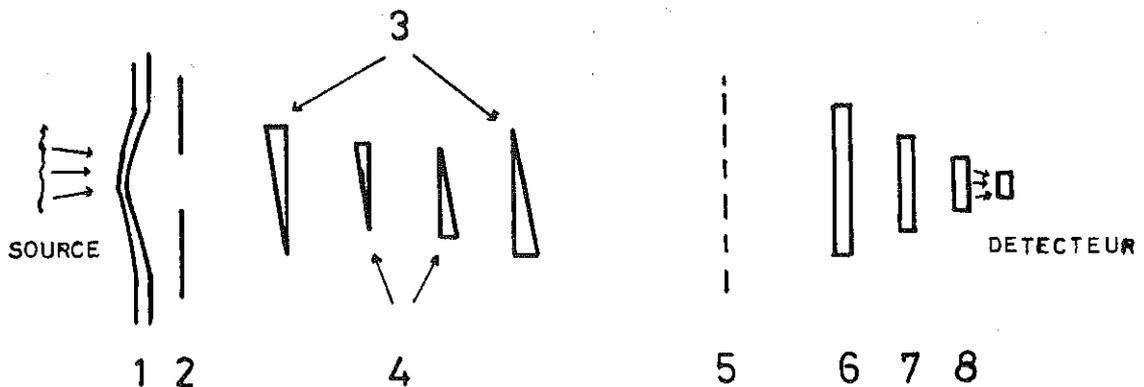


FIGURE 17

- 1 - Enveloppe de la lampe, déformée ;
- 2 - Diaphragme ;
- 3 - Hublots extérieurs du cryostat ;
- 4 - Hublots intérieurs du cryostat ;
- 5 - Polariseurs ;
- 6 - Filtre extérieur du détecteur ;
- 7 - Filtre en silice ;
- 8 - Lentille en saphir.

En principe la disposition de la figure 17 ne devrait pas nous donner de pics supplémentaires entre 5 mm et 12 mm, mais nous avons trouvé la présence d'un pic d'interférences au niveau de 1 cm de déplacement du miroir mobile. Des spectres obtenus avec et sans la présence du cryostat, ont révélés que celui-ci apporte des interférences à 1 cm, même s'il est constitué avec des hublots bisotés. Pour éliminer ces interférences nous avons tourné de π un des hublots en saphir nous donnant comme résultat la disparition de celles-ci.

Nous reportons sur la figure 18 l'interférogramme obtenu avant de tourner un hublot en saphir, qui donne un pic d'interférence vers 1 cm de différence de marche et l'autre interférogramme obtenu après avoir tourné de π le hublot en saphir qui montre la disparition de ce pic d'interférence .

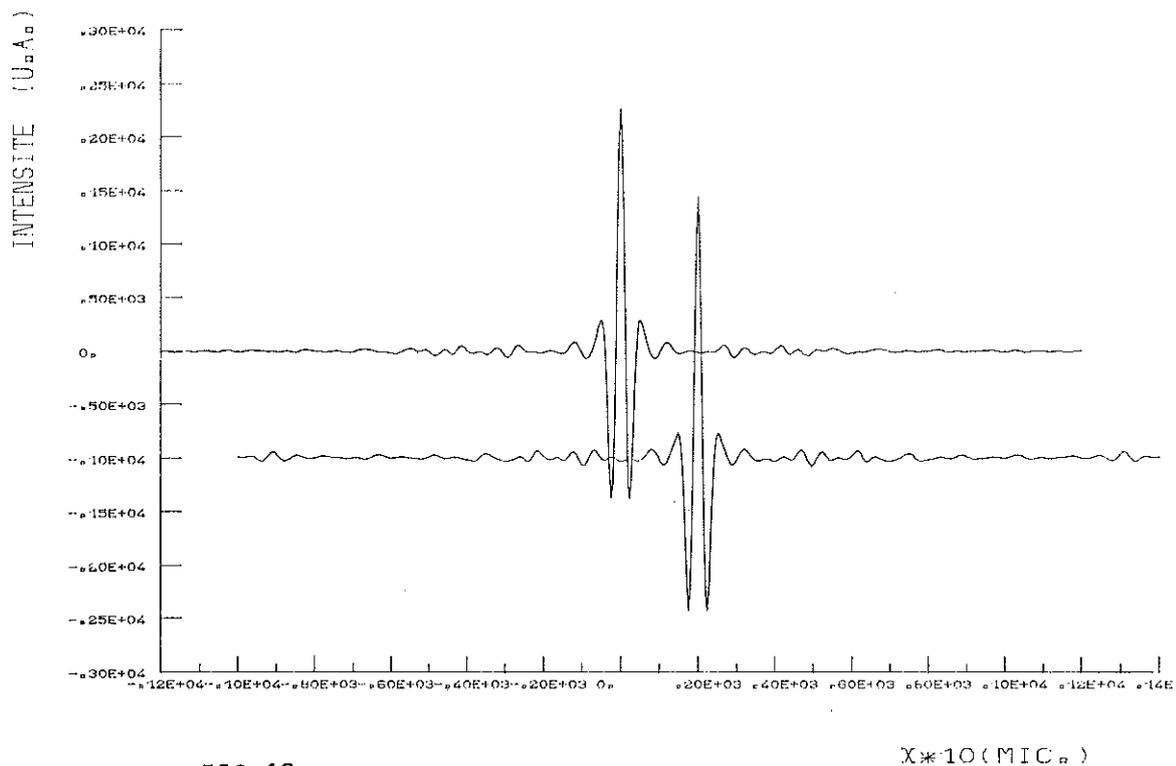


FIG.18

X*10(MIC)

REFERENCES

1. D.H. MARTIN, E. PUPLETT,
Infrared Physics, 1969. Vol. 10, pp. 105-109. Pergamon Press.
2. T. LARSEN,
I.R.E. Trans., on M.T.T. 10 (1962) 191.
3. J.P. AUTON,
Applied Optics, vol. 6, n° 6 (1967) 1023.
4. BUCKBEE-MEARS Company, Saint Pool I,
Minnesota, U.S.A.
5. M. BORN and E. WOLF,
Principles of Optics, New York, Pergamon, 1964, sec. 7.6.2. The Fabry-
Perot interferometer, p. 329.

CHAPITRE III

CHAPITRE III - TRAITEMENT A L'ORDINATEUR

- I - CORRECTION DES INTERFEROGRAMMES A L'ORDINATEUR
- II - SPECTRE NON CORRIGE
- III - EFFACEMENT DES INTERFERENCES DUES AU SPECTROMETRE
- IV - CORRECTION DE LA LIGNE DE BASE
- V - CORRECTION DU POINT ZERO
- VI - OBTENTION DES SPECTRES D'ABSORPTION
 - A) CALCUL DE LA TRANSMISSION
 - B) CALCUL DE L'ABSORPTION

REFERENCES

C H A P I T R E I I I

TRAITEMENT A L'ORDINATEUR

I - CORRECTION DES INTERFEROGRAMMES A L'ORDINATEUR

Pour effectuer une correcte analyse numérique de Fourier, il est nécessaire de transmettre l'information enregistrée vers l'ordinateur d'une manière efficace.

Pour cela, nous utilisons le système montré sur la fig. I, Pour la lecture et l'enregistrement des interférogrammes. Le faisceau provenant de l'interféromètre est focalisé sur le détecteur ; ensuite le signal détecté est amplifié d'un facteur 1000 par un amplificateur à bande étroite et faible bruit. Ensuite, une détection synchrone fonctionnant à une fréquence $16 \frac{2}{3}$ C.P.S. redresse et amplifie le signal (facteur 100) pour donner une tension continue ; celle-ci est proportionnelle à l'intensité du rayonnement reçu par le détecteur. Ce signal est codifié et perforé en quatre digites sur une bande pour être lu à l'ordinateur (fig. I). La symétrie que présente le système interférométrique à polariseurs nous donne en principe une quantité $I(x)$ symétrique par rapport à $x = 0$; cependant, le circuit de mesure apporte un fort bruit $i(x)$ qui s'ajoute à la quantité $I(x)$; pour réduire le bruit $i(x)$ on fait la mesure de $I(x)$ à travers un filtre passe-bas. Ce filtre distord principalement la mesure de l'interférogramme aux alentours de $x = 0$, c'est-à-dire qu'il déforme le pic central. Les effets d'une telle distorsion seront analysés dans la section 3 de ce chapitre.

Nous supposerons par la suite que nous avons un interférogramme symétrique et à partir de là nous allons voir les corrections qu'on effectue sur lui afin d'obtenir des bonnes mesures en transmission jusqu'à 7.5 cm^{-1} . Ces corrections sont :

- effacement des interférences supplémentaires,
- correction de la ligne de base (correction parabolique),
- correction d'origine,
- apodisation.

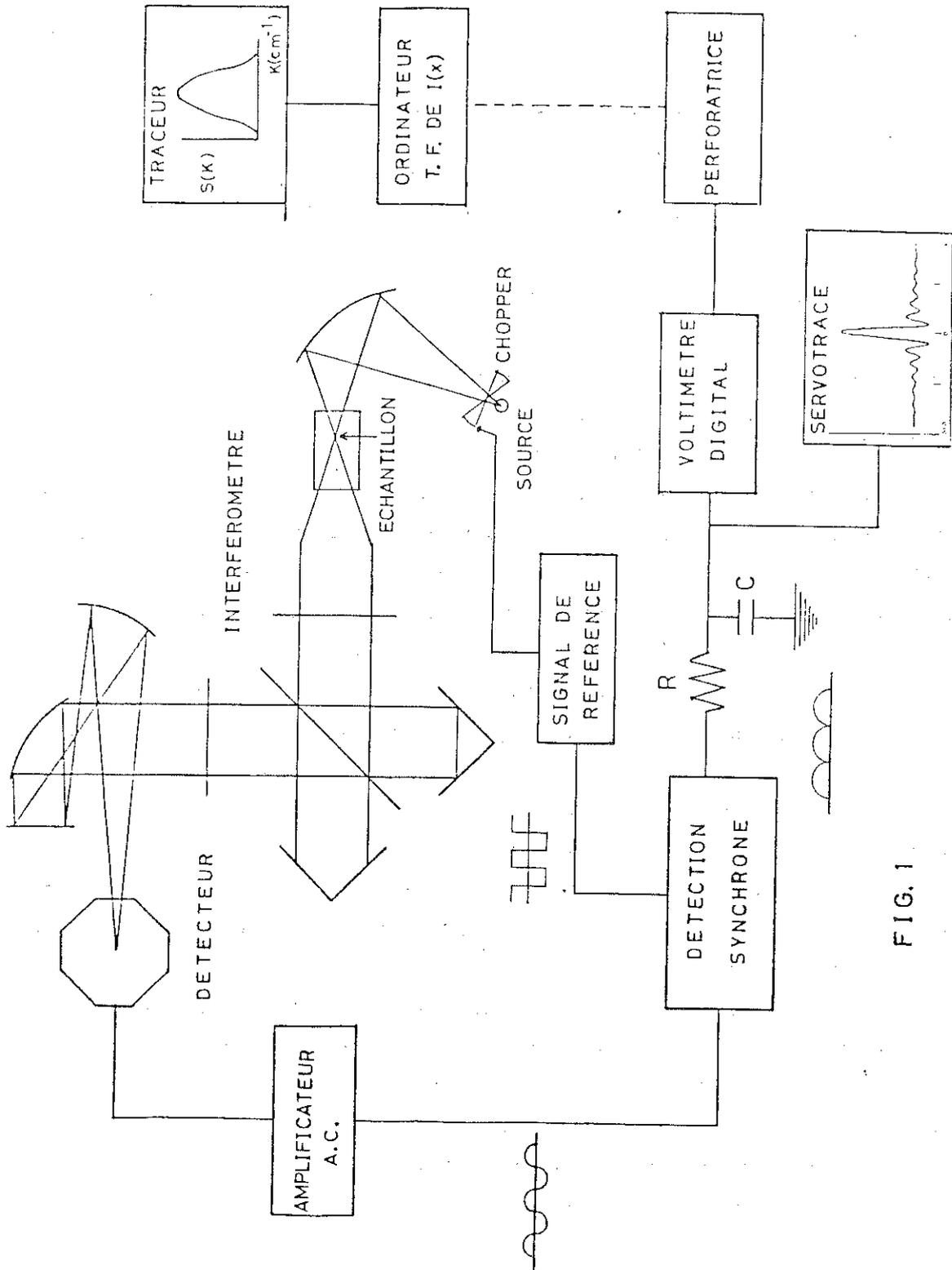


FIG. 1

II - SPECTRE NON CORRIGE

Nous avons montré que l'intensité du rayonnement $I(x)$ mesuré à la sortie de l'interféromètre à deux ondes et à différence de marche variable est la transformée de Fourier cosinus du spectre du rayonnement fourni par la source. Puisque la transformée de Fourier est une opération réciproque⁽¹⁾, il suffit donc, pour reconstruire le spectre étudié, de faire la transformée de Fourier cosinus de la quantité $I(x)$; cette transformée de Fourier est donnée par l'expression suivante :

$$\begin{aligned}
 S(n\Delta K) = S(K) &= 4 \sum_0^N \left(I(m) - \frac{I(0)}{2} \right) \cos\left(\pi \frac{mn}{N}\right) \frac{1}{2K_{\max}} \\
 &= 4 \sum_0^N I'(m) \cos\left(\pi \frac{mn}{N}\right) \frac{1}{2K_{\max}} \quad (1)
 \end{aligned}$$

Nous montrons sur la figure 2-a un interférogramme non corrigé qui correspond à la quantité $I'(x)$ de l'expression (1).

Cet interférogramme présente à différents endroits des bosses provenant des interférences du rayonnement à l'intérieur des éléments à faces parallèles qu'il y a dans le spectromètre. Dans cet interférogramme, le niveau qui définit la ligne de base donnée par $I'(x)$ (voir figure 2.a) a été obtenu en prenant $\frac{I(0)}{2}$ égal à la moyenne de 20 derniers points autour des positions extrêmes du miroir mobile ($\pm X_{\max}$). Les figures 2-b et 2-c montrent les spectres obtenus par transformée de Fourier de l'interférogramme 2-a, soit directement (2-b), soit apodisé (2-c).

On observe sur ces deux spectres de fortes oscillations, en particulier à basse fréquence. Elles sont atténuées par l'apodisation, mais restent cependant très importantes.

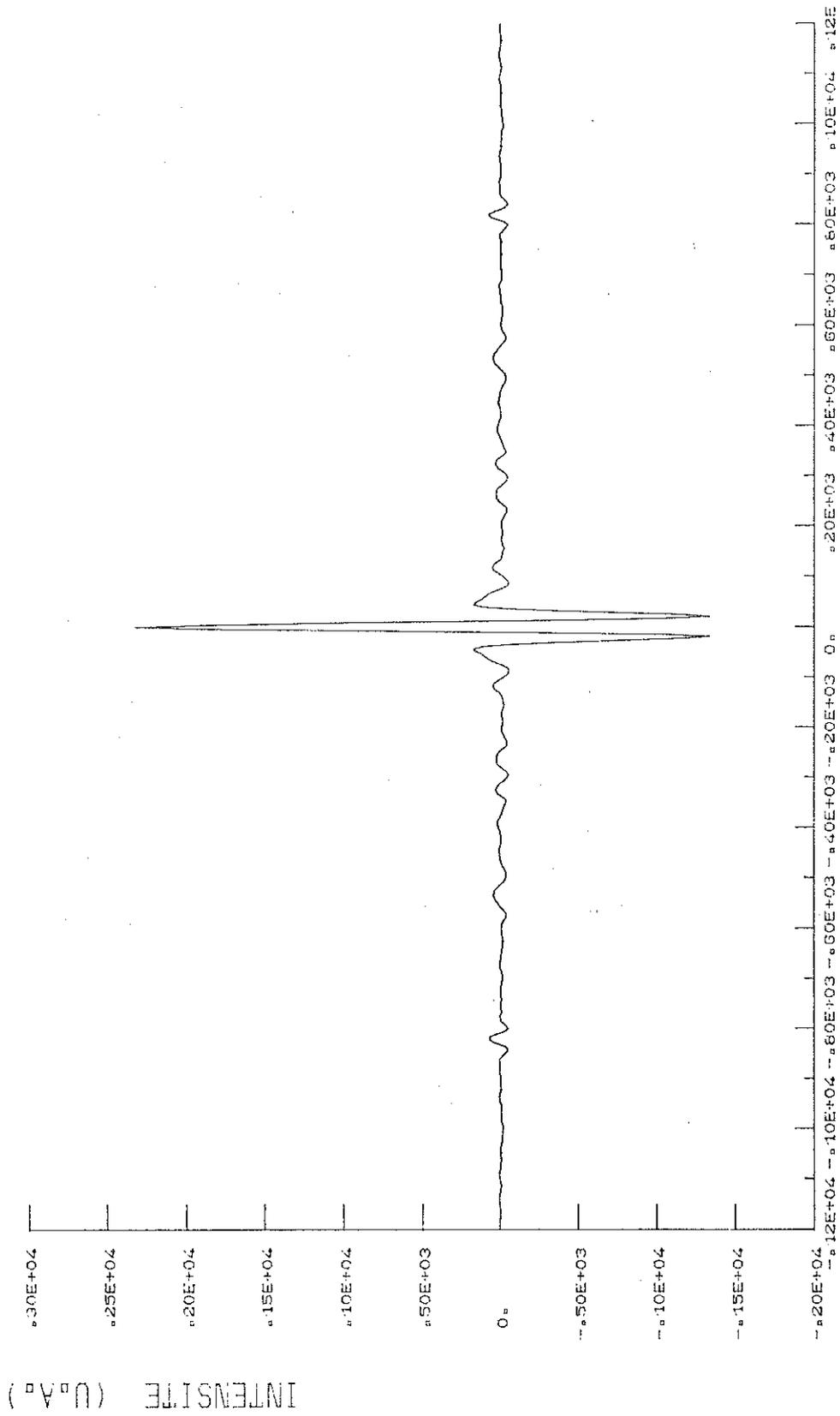


FIG. 2.a INTERFEROGRAMME NON CORRIGE XMAX=1.2CM X=10 (MIC)

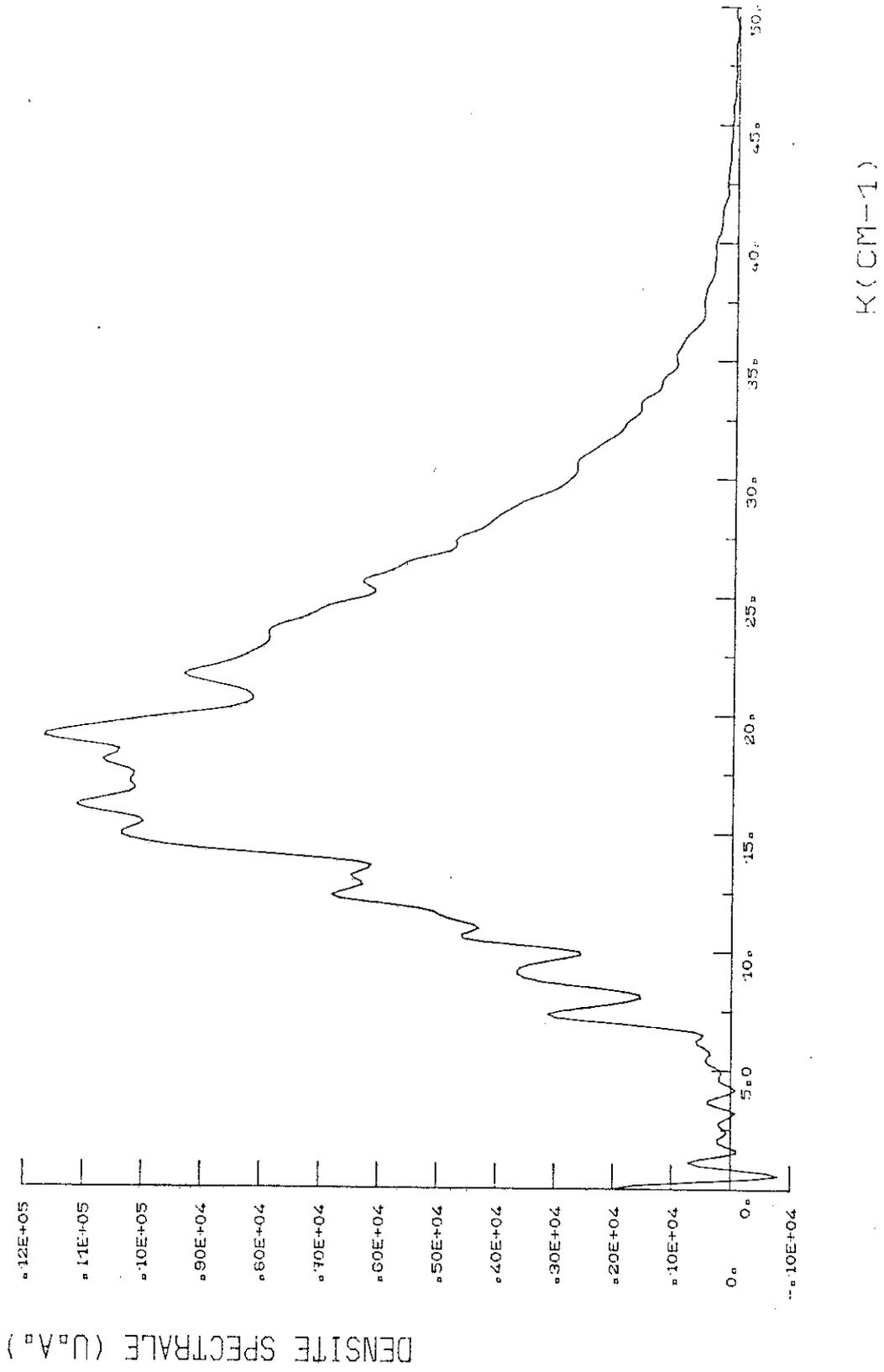


FIG 2-b Spectre non corrigé

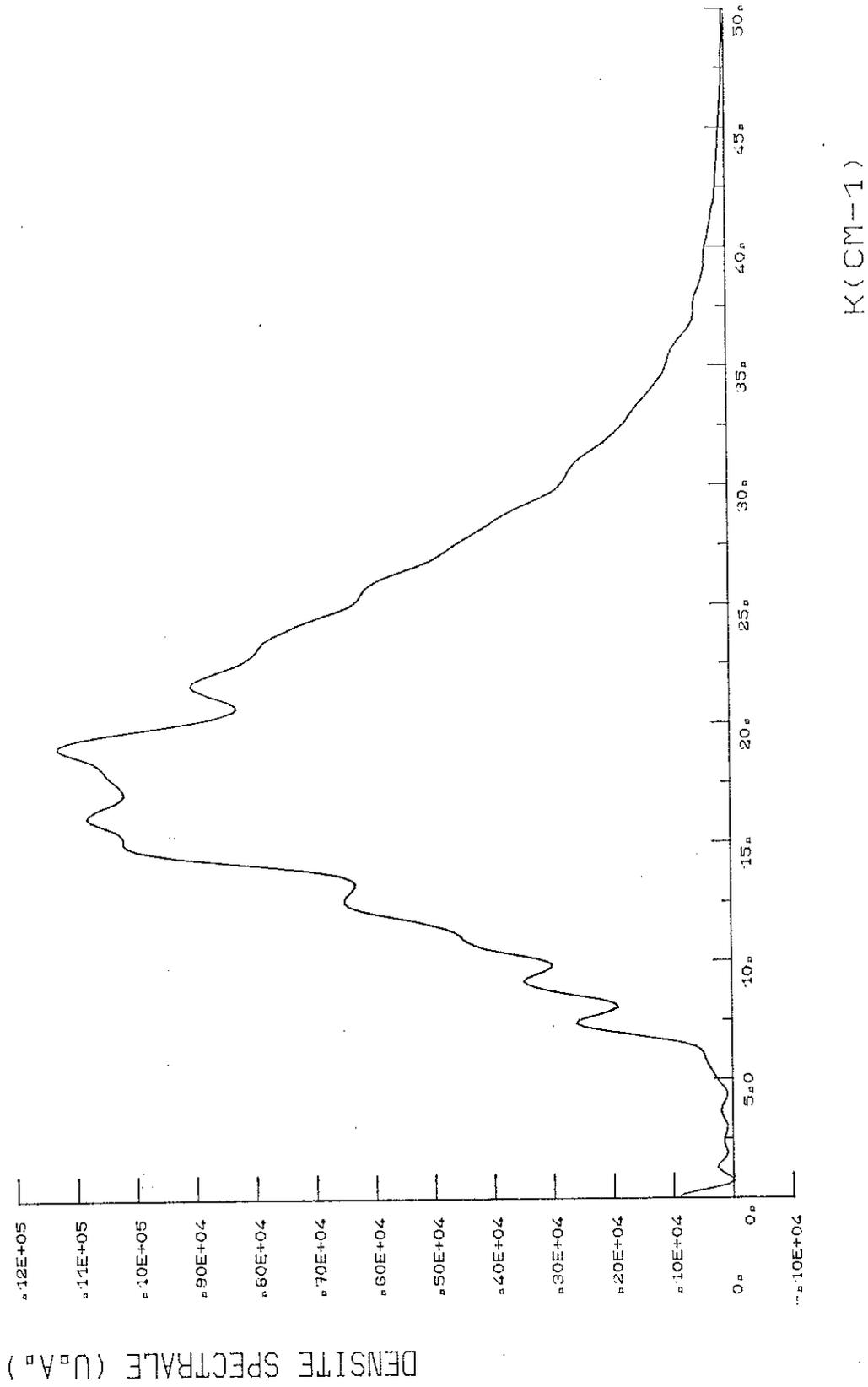


FIG 2.c Spectre apodisé et non corrigé

III - EFFACEMENT DES INTERFERENCES DUES AU SPECTROMETRE

Sur la figure 3-a, nous montrons l'interférogramme de la figure 2.a, dans lequel nous avons effacé les pics d'interférences placés à une distance de 2 mm, 4,5 mm et 8 mm par rapport au pic central. Nous remplaçons chaque pic d'interférence par une moyenne de 30 points autour de celui-ci ; nous voyons que dans le cas où nous avons un pas en x de 40 microns, nous effaçons un total de 3,6 mm d'information sur l'interférogramme.

Si le déplacement maximal est de 1,2 cm, nous réduisons ce déplacement à 0,84 cm, par conséquent nous passons d'une résolution pour chaque spectre de $0,6 \text{ cm}^{-1}$ à $0,77 \text{ cm}^{-1}$ pour des spectres non apodisés, et de $0,83 \text{ cm}^{-1}$ à $1,2 \text{ cm}^{-1}$ pour des spectres apodisés.

Sur la figure 3-b, nous montrons le spectre non apodisé correspondant à l'interférogramme 3-a. On s'aperçoit que l'allure du spectre est plus régulière, en particulier, les fortes oscillations autour de $7,5 \text{ cm}^{-1}$ ont diminué et la forte variation autour de 21 cm^{-1} a disparu.

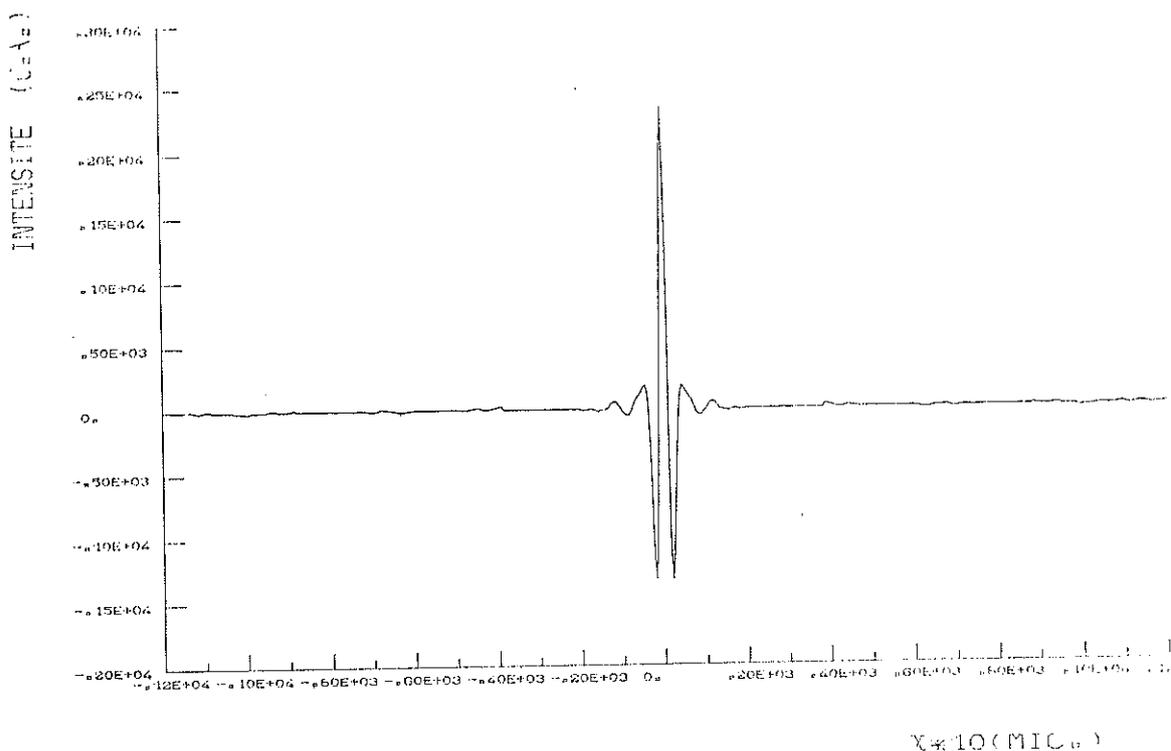


Figure 3-a Interférogramme avec corrections des interférences

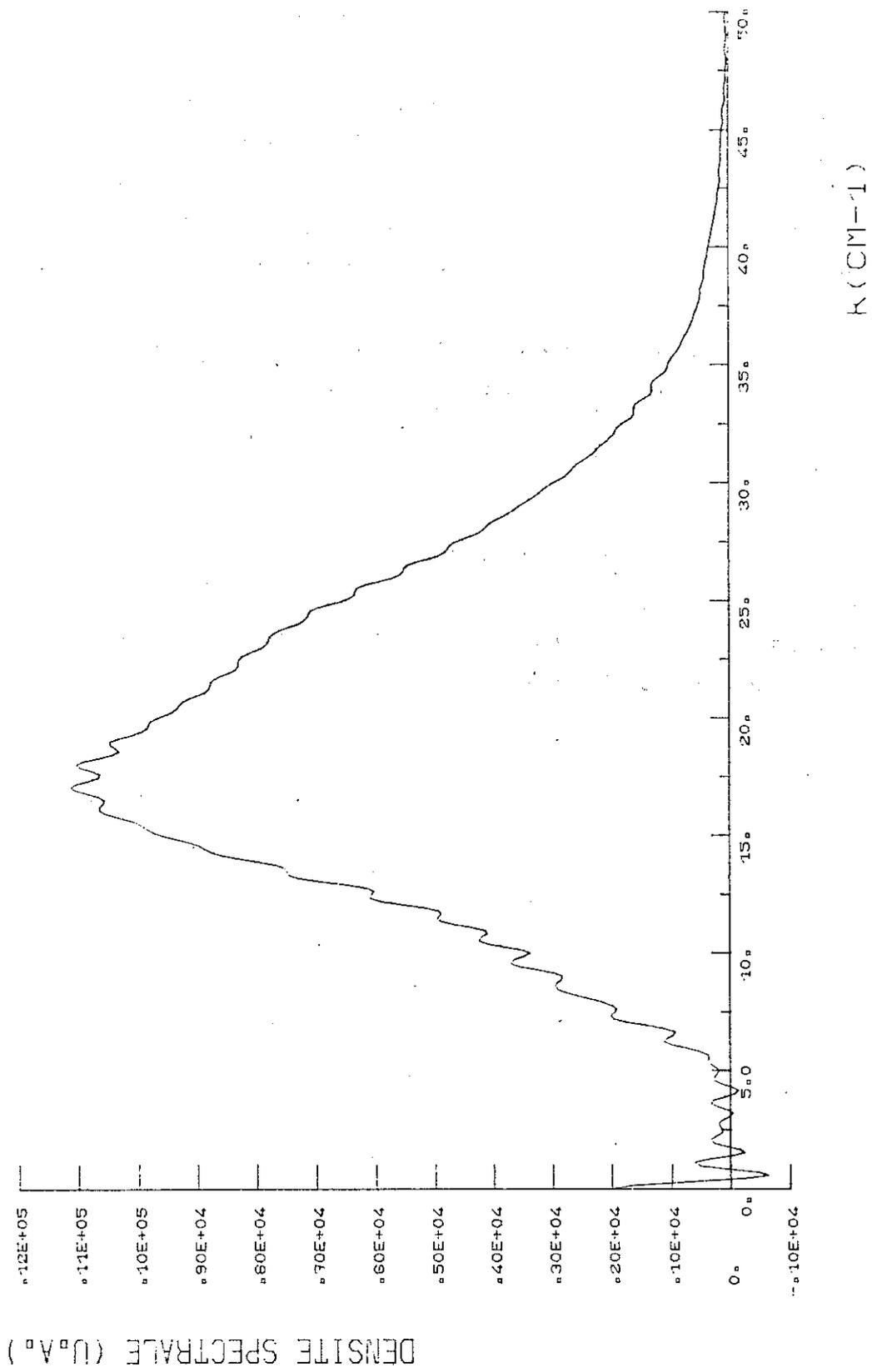


FIGURE 3-b Spectre non apodisé après effacement des interférences

IV - CORRECTION DE LA LIGNE DE BASE

La quantité mesurée dans l'interférogramme est donnée par l'expression :

$$I(x) = \frac{1}{2} I(0) + \int_{-\infty}^{+\infty} S(K) \cos 2\pi Kx \, dK$$

avec
$$I(0) = 2 \int_{-\infty}^{+\infty} S(K) \, dK \quad (2)$$

D'après cette expression, pour calculer un spectre il faut d'abord retrancher la quantité $\frac{1}{2} I(0)$ à tous les points de $I(x)$; cela nous donne la définition du niveau appelé ligne de base⁽²⁾, autour duquel oscille l'information d'un spectre. Couramment, cette ligne de base est calculée en prenant la moyenne de 20 derniers points de X_{\max} .

Sur la figure 4.a, nous montrons un exemple d'un interférogramme qui présente une erreur ϵ par rapport à la ligne de base donnée par l'expression 2.

Avec cette erreur, nous calculons un spectre donné par :

$$\begin{aligned} S(K) &= \int_0^{X_{\max}} I'(x) \cos 2\pi Kx \, dx + \int_0^{X_{\max}} \epsilon \cos 2\pi Kx \, dx \\ &= \int_0^{X_{\max}} I'(x) \cos 2\pi Kx \, dx + X_{\max} \epsilon \frac{\sin 2\pi X_{\max} K}{2\pi X_{\max} K} \end{aligned}$$

Dans ce cas, nous avons un terme oscillant de période $1/X_{\max}$ qui s'ajoute au spectre ; cette oscillation est principalement importante dans la région de basses fréquences. Sur la figure 3.a, nous montrons la présence de cette oscillation donnée par une erreur ϵ de 0,05 % par rapport à $\frac{1}{2} I(0)$.

Dans l'expérience, cette erreur dans la ligne de base est due à une dérive mécanique du déplacement du miroir mobile et à une instabilité de la température de fonctionnement du détecteur.

Cette dérive, en réalité, n'est pas linéaire et produit un

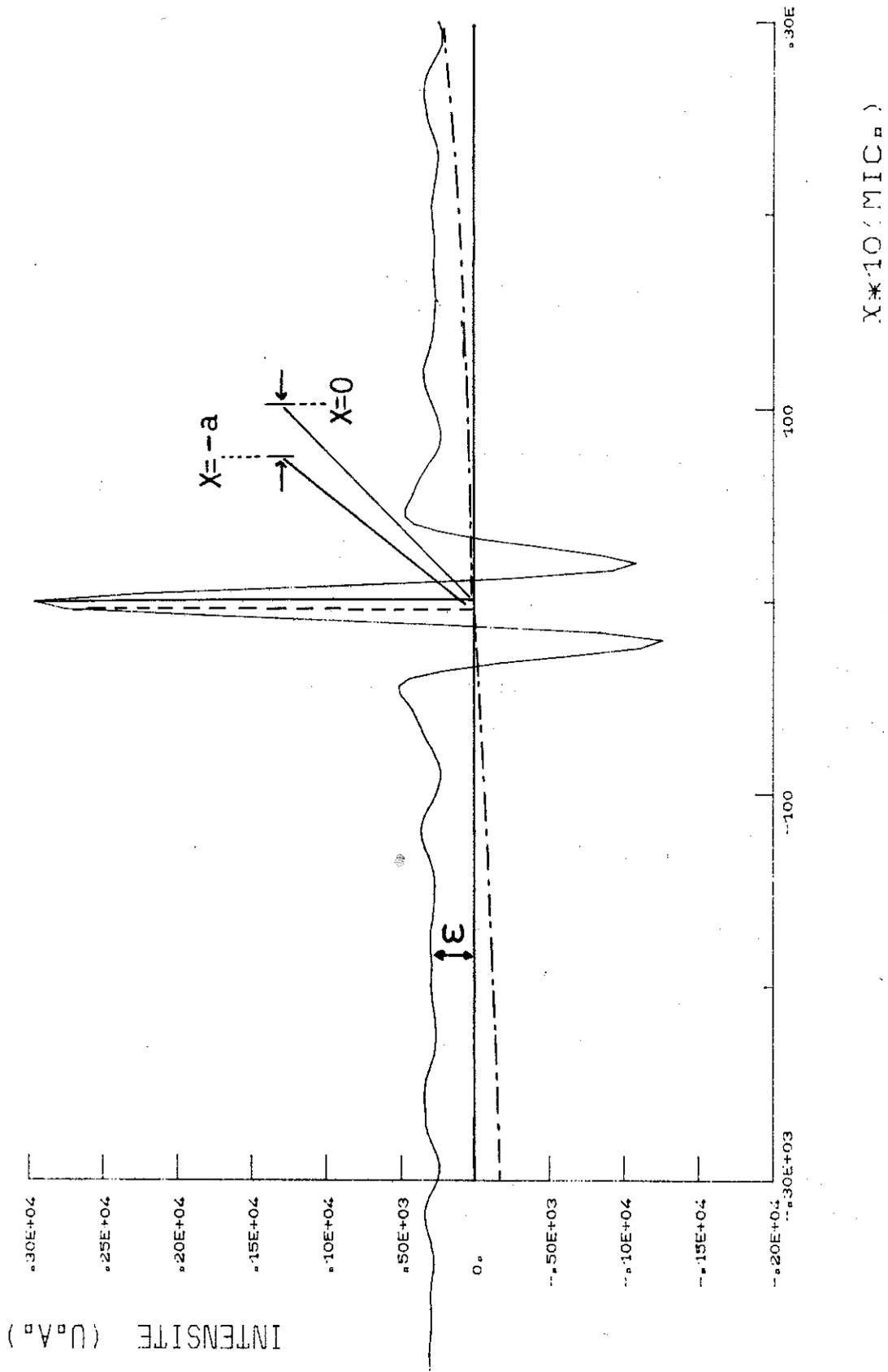


Figure 4--a Partie centrale d'un interférogramme
ε décalage par rapport à la ligne de base
x = -a. origine sans constante de temps.
En pointillé, dérive parabolique de la ligne de base

décrochement par rapport à la ligne de base à forme parabolique plutôt qu'en échelon (voir fig. 4.a).

Une correction qui tient compte de cette dérive appelée parabolique est appliquée aux interférogrammes enregistrés.

Sur la figure 5 , nous montrons un spectre après avoir appliqué à l'interférogramme 3.a cette correction (courbe en tirets).

V - CORRECTION DU POINT ZERO

Nous avons vu que pour faire la transformée de Fourier cosinus d'un interférogramme, il est nécessaire d'avoir une fonction paire en $I(x)$ (voir fig. 2-A); dans ce cas, nous utilisons la propriété suivante :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} I'(x) e^{i2\pi Kx} dx = 2 \int_0^{\infty} I'(x) \cos 2\pi Kx dx$$

(si $I'(x) = I'(-x)$).

Cette propriété nous permet de calculer un spectre en utilisant uniquement l'information entre $x = 0$ et $x = x_{\max}$, au lieu de $-x_{\max}$ à $+x_{\max}$. Les avantages obtenus sont une réduction dans la quantité des points à traiter à l'ordinateur, et par conséquent une réduction d'un facteur 2 dans le temps de calcul. Pour utiliser cette propriété, il est nécessaire de commencer la transformée de Fourier de $I'(x)$ exactement dans la position donnée par $x = 0$, c'est-à-dire à différence de marche nulle.

Dans la pratique, deux aspects intrinsèques au spectromètre produisent la dissymétrie de l'interférogramme autour de $x = 0$, qu'on appellera "point zéro".

D'une part, nous savons que le repère du point zéro dépend de la précision mécanique du micromètre et du système de réglage optique des polariseurs. Cette erreur mécanique déplace la mesure du maximum central de l'interférogramme d'une quantité d .

D'après LOEWENSTEIN⁽³⁾, ce déplacement produit une erreur de phase donnée par $\frac{2\pi d}{\lambda}$ dans le cas d'un spectre monochromatique. Pour un spectre polychromatique, on trouve une correction sur la fonction $S(K)$ donnée par $(\cos 2\pi K_{\max} d)^{-1}$, tel que le spectre corrigé est donné par :

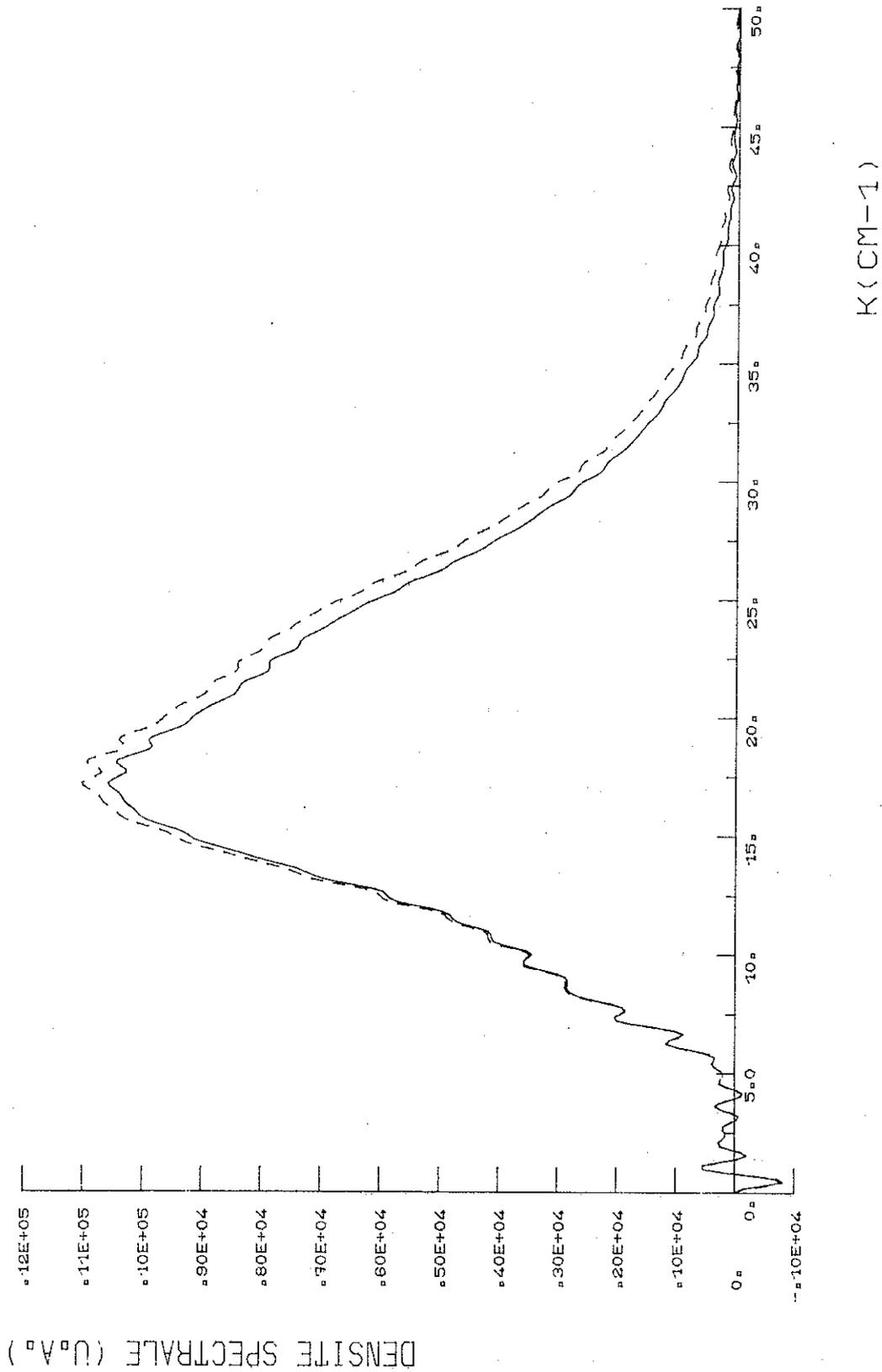


FIGURE 5 ----- Spectre sans correction du point zéro
———— Spectre avec correction du point zéro

$$S(K) = \left\{ 2 \int_{X=0}^{X_{\max}} I'(x) \cos(2\pi Kx) \Delta x \right\} \cdot \frac{1}{\cos 2\pi K_{\max} d}$$

Dans la pratique, l'interférogramme $I(x)$ est enregistré avec une constante de temps qui le rend dissymétrique ; cette dissymétrie étant plus importante dans la distorsion du maximum central que l'aspect mécanique décrit auparavant.

L'interférogramme enregistré à travers un filtre passe-bas est le produit de composition de l'interférogramme théorique par la réponse percussionnelle du filtre qui est nécessairement dissymétrique⁽⁴⁾. Prenons comme forme de l'interférogramme $I(x)$ la fonction de la forme donnée par :

$$I(x) = \frac{\sin 2\pi K_{\max} X}{2\pi K_{\max} X} = \frac{1}{2K_{\max}} \int_{-K_{\max}}^{K_{\max}} \cos 2\pi K' x \, dK' \quad (3)$$

En choisissant comme origine du temps l'instant où la différence de marche est nulle nous allons mesurer $I(x)$ en balayant x dans le temps d'une manière linéaire, c'est-à-dire $x = vt$. v = vitesse du déplacement du miroir mobile.

Si la mesure de $I(x)$ est faite à travers un filtre RC de constante de temps τ , nous enregistrons un interférogramme donné par :

$$G(t) = \int_{-\infty}^t I(vt') e^{-\frac{(t-t')}{\tau}} \frac{dt'}{\tau}$$

Ceci est valable à la condition d'effectuer la mesure de $G(t)$ avec un pas $a = v\tau$. En remplaçant dans $G(t)$ l'expression de $I(vt)$ donnée par (3), on trouve :

$$G(t) = \frac{1}{2\pi a K_{\max}} \int_0^{2\pi a K_{\max}} \left\{ \cos\left(\frac{tu}{\tau}\right) + u \sin\left(\frac{tu}{\tau}\right) \right\} \frac{du}{1+u^2}$$

avec $u = 2\pi a K'$.

En développant les termes en cosinus et sinus jusqu'aux termes du deuxième ordre, nous avons :

$$G(x) \approx \frac{1}{2\pi a K_{\max}} \int_0^{2\pi a K_{\max}} \left(1 - \frac{x^2 u^2}{2a^2} + \frac{x}{a} u^2 \right) \frac{du}{1+u^2}$$

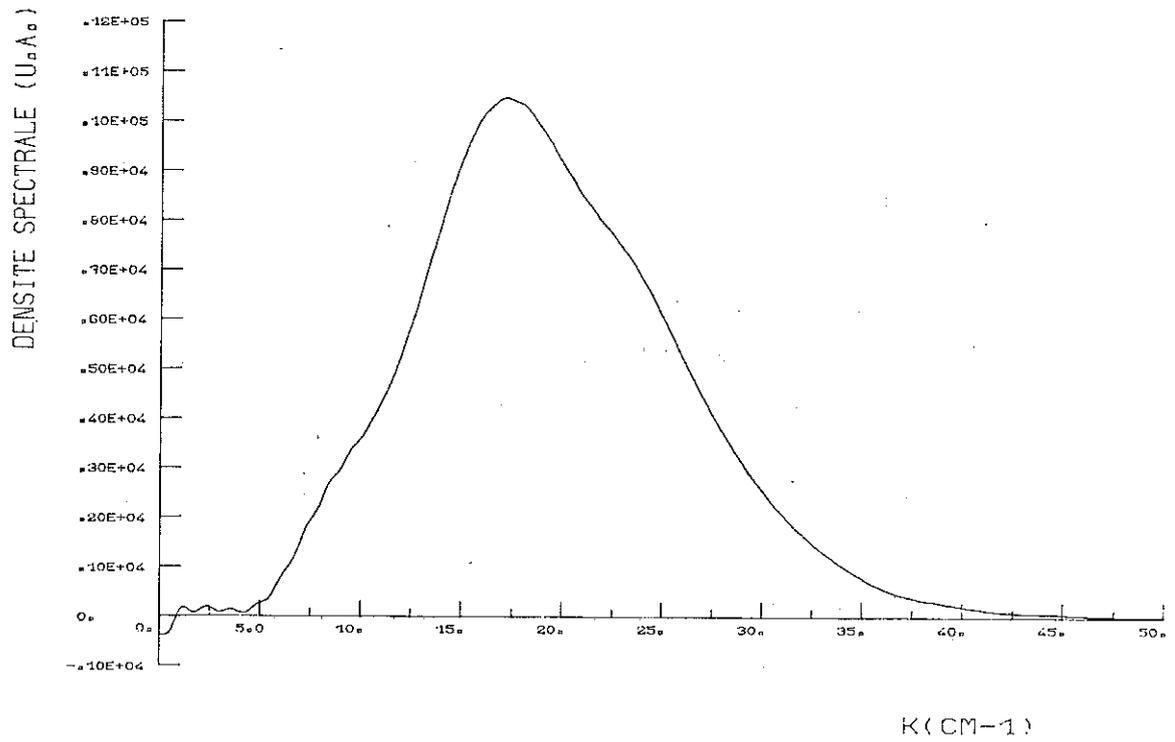


FIGURE 6 Spectre corrigé et apodisé

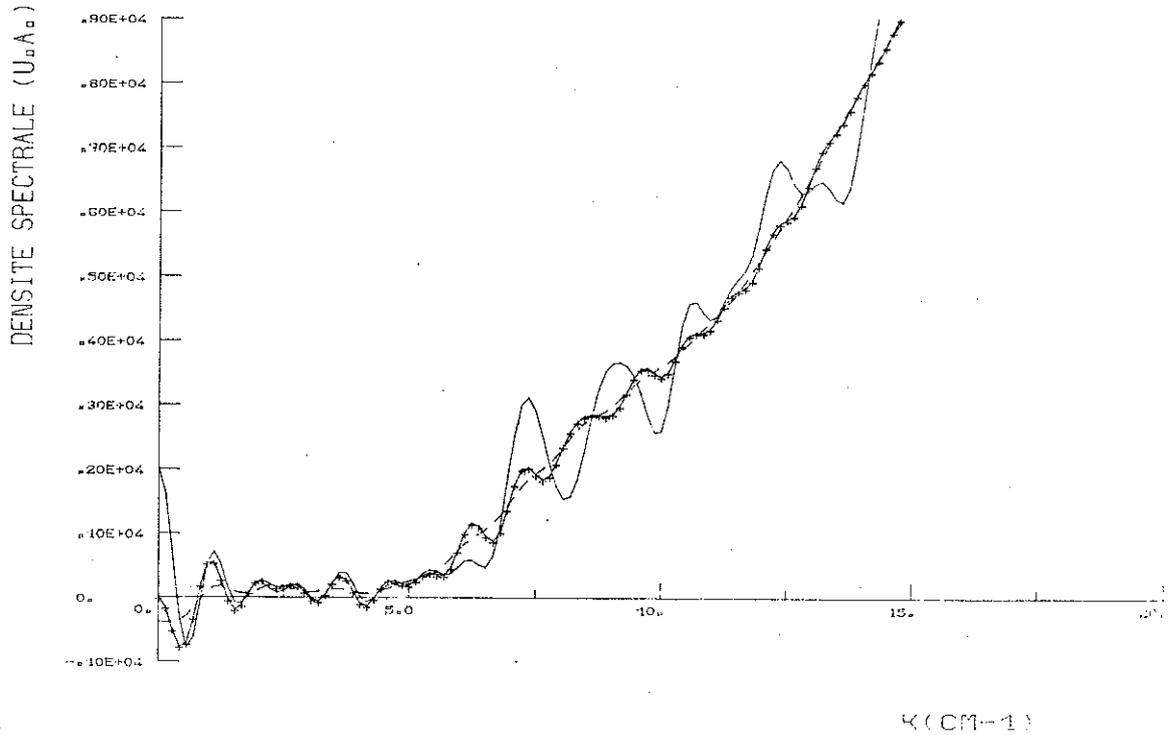


FIGURE 7 Partie basses fréquences

- Spectre non corrigé
- +--+ Spectre corrigé non apodisé
- Spectre corrigé avec apodisation de Connes

Le maximum de $G(x)$ est donné par $x = a$, c'est-à-dire que le maximum de $G(x)$ est décalé de a par rapport au maximum de $I(x)$.

Etant donné qu'on enregistre $G(x)$, avec $x = vt$, pour corriger le décalage du maximum central, nous calculons un nouvel interférogramme symétrique à partir de $G(x)$, en faisant un repliage de $G(x)$ autour de $x = -a$, c'est-à-dire :

$$I(x) = \{ G(x - a) + G(-x - a) \}$$

Sur la figure 5, nous montrons un exemple d'un spectre avec et sans correction du point zero. On observe une diminution de l'amplitude du spectre corrigé par rapport au spectre non corrigé, tout en gardant la même allure dans la région des basses fréquences.

Sur la figure 6, nous montrons le spectre de la figure 5, après avoir appliqué la fonction d'apodisation de Connes (voir section 2, chapitre I). Cette opération nous permet le lissage du spectre en faisant disparaître les oscillations résiduelles qui apparaissent sur le spectre de la figure 5, mais nous avons une perte dans la résolution en fréquence ($K \text{ cm}^{-1}$) ; puisque d'une résolution de $0,8 \text{ cm}^{-1}$, on passe à une résolution de $1,2 \text{ cm}^{-1}$, voir fig. 7, partie basses fréquences.

VI - OBTENTION DES SPECTRES D'ABSORPTION

A) Calcul de la transmission.

Pour obtenir le spectre de transmission d'un échantillon, deux interférogrammes sont mesurés, l'un sans échantillon et l'autre avec échantillon. On fait la transformée de Fourier de ces interférogrammes en utilisant l'expression III.1 avec les corrections décrites précédemment et la transmission est donnée par :

$$T(k) = \frac{S'(k) \text{ échantillon}}{S(k) \text{ sans échantillon}}$$

Dans l'annexe 1, nous montrons le programme de calcul qui permet d'obtenir un spectre corrigé.

B) Calcul de l'absorption.

Pour calculer l'absorption optique d'un échantillon, il faut connaître sa transmission, $T(k)$, son indice de réfraction, et sa forme géométrique.

Nous analyserons la répartition en énergie que l'on obtient en prenant des échantillons à faces parallèles d'épaisseur d . De cette analyse, nous tirerons l'expression utilisée dans le calcul du coefficient d'absorption $\alpha(K)$.

Soit E , le vecteur électrique du champ électromagnétique qui se propage dans un milieu d'indice de réfraction n donné par :

$$E = a e^{j\omega(t - \frac{n}{c} d)}$$

$n = V - jX$, indice de réfraction complexe.

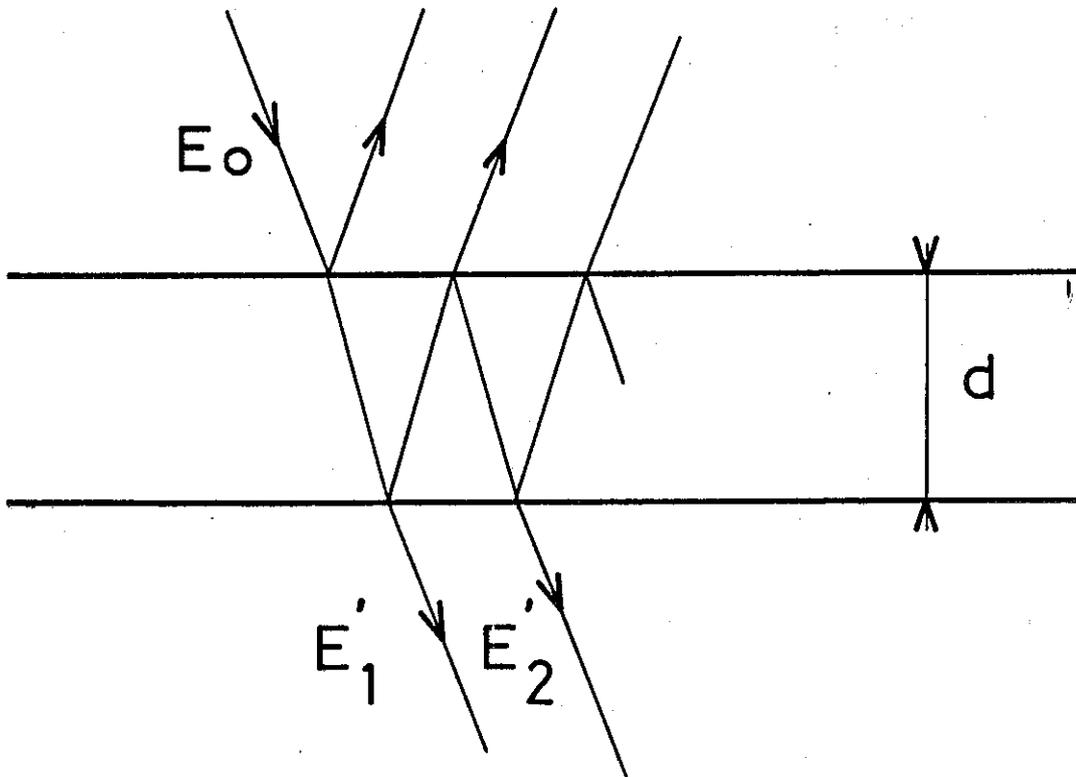


FIGURE 8

Considérons un rayonnement incident sur une surface de l'échantillon, le vecteur champ électrique est $E_0 = a e^{j\omega t}$. D'après la figure 9, le premier rayon transmis est :

$$E'_1 = \frac{4na}{(n+1)^2} e^{j\omega(t - \frac{nd}{c})}$$

Le deuxième rayon transmis est :

$$E'_3 = \frac{4na(n-1)^2}{(n+1)^4} e^{j\omega(t - \frac{3nd}{c})}$$

D'où la transmission globale du vecteur champ électrique total peut se mettre sous la forme :

$$E_T = a \frac{4n}{(n+1)^2} e^{j\omega(t - \frac{nd}{c})} \sum_{P=0}^{\infty} \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^{2P} e^{-2j\omega \frac{nd}{c}} \cdot P$$

d'où

$$E_T = a \frac{4n}{(n+1)^2} e^{j\omega(t - \frac{nd}{c})} \frac{1}{1 - \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2 e^{-2j\omega \frac{nd}{c}}}$$

En prenant le carré du module de E_T et en posant $\alpha = \frac{2\omega}{c} X = 4\pi KX$, coefficient d'absorption (K étant le nombre d'onde), on obtient alors l'intensité de la transmission donnée par :

$$T = \frac{A}{\operatorname{ch}(2u + \alpha d) - \cos(2\rho + 4\pi K V d)}$$

Où on a posé :

$$u = \frac{1}{2} \log \left[\frac{(V+1)^2 + X^2}{(V-1)^2 + X^2} \right]$$

$$\operatorname{Tg} \rho = \frac{2X}{X^2 + V^2 - 1}$$

$$A = \operatorname{ch} 2u - \cos 2\rho$$

$$= \frac{8(V^2 + X^2)}{[(V+1)^2 + X^2][(V-1)^2 + X^2]}$$

On peut mettre la transmission T sous la forme suivante :

$$T = \frac{A}{\text{Sh}(2u + \alpha d)} \left(1 + 2 \sum_{P=1}^{\infty} e^{-P(2u + \alpha d)} \cos p(2\rho + 4\pi K V d) \right)$$

Dans notre gamme de fréquences et pour les matériaux étudiés :

$$X \ll V \text{ donc } \text{tg } \rho \approx 0$$

$$u = \log \left(\frac{V + 1}{V - 1} \right)$$

$$A = \frac{8V^2}{(V^2 - 1)^2}$$

$$\text{Alors } T = \frac{A}{\text{Sh}(2u + \alpha d)} \left[1 + 2 \sum_{P=1}^{\infty} e^{-P(2u + \alpha d)} \cos(p4\pi K V d) \right]$$

Dans la transmission⁽⁵⁾, le terme entre crochets se présente sous la forme d'un terme constant et d'une gamme infinie de termes oscillants. Ces termes oscillants représentent les fonctions d'interférences produites dans l'échantillon d'épaisseur d à faces parallèles. Le 1er terme rend compte des interférences produites entre deux faisceaux dont la différence de marche est 2 nd.

Le deuxième terme rend compte des interférences entre deux faisceaux dont la différence de marche est 4 nd, etc... Donc chaque terme donnera un pic correspondant dans la transformée de Fourier qui est la grandeur mesurée. Dans toutes les mesures des interférogrammes correspondant aux matériaux analysés dans le chapitre IV, tous les pics des interférences étaient placés à une distance $e = 2 \text{ nd}$, supérieure à X_{max} (X_{max} , déplacement maximal du miroir mobile) dû à la grande épaisseur d de chaque échantillon.

Dans ce cas la transmission peut se mettre sous la forme :

$$T = \frac{A}{\text{Sh } X'}$$

$$\text{Si on appelle } X' = \alpha d + 2 \log \left(\frac{V + 1}{V - 1} \right).$$

D'où

$$\alpha(K) = \frac{1}{d} \left[\log \left(\frac{A}{T} + \sqrt{\left(\frac{A}{T} \right)^2 + 1} \right) - 2 \log \left(\frac{V+1}{V-1} \right) \right]$$

L'indice réel de répartition V est mesuré avec des échantillons d'épaisseur d , telle que le pic d'interférence situé à $x = 2Vd$ soit dans la région comprise entre x égal zéro et x égal X_{\max} de l'interférogramme, d'où :

$$V = \frac{x}{2d}$$

calculé avec une précision de ± 0.01 .

REFERENCES

1. J. CONNES,
Revue d'Optique, Février 1961, pages 116-140.
2. C.H. PERRY, R. GREIK and E.F. YOUNG,
Applied Optics, July 1966, vol. 5, n° 7.
3. E.V. LOEWENSTEIN,
Applied Optics, May 1963, vol. 2, n° 5.
4. Communication personnelle de J.M. LAURANT.
5. A. RIBEYRON and J.M. LAURANT,
Physics Letters, August 1974, vol. 49A, n° 1.

CHAPITRE IV

CHAPITRE IV - ABSORPTION OPTIQUE DANS L'INFRAROUGE TRES
LOINTAIN DE MATERIAUX AMORPHES

INTRODUCTION

- I - SILICE VITREUSE
 - A) SILICE W
 - B) SUPRASIL, SiO_2 AVEC 1200 PPM DE OH
 - C) SILICE W IRRADIEE AUX NEUTRONS
 - D) COMPARAISON DES RESULTATS
 - E) ANALYSE DE L'ABSORPTION DE LA SILICE IRRADIEE
- II - ABSORPTION OPTIQUE DU BK7, PMMA, GeO_2 ET Se AMORPHE
 - A) VERRE DE SILICE AU BORE, BK7
 - B) ETUDE DU GeO_2 AMORPHE
 - C) SELENIUM AMORPHE
 - D) PMMA - POLY (METHYLMETHACRYLATE)
 - E) INTERPRETATION DES RESULTATS
- III - EXCITATIONS DE TRES BASSES FREQUENCES
 - A) ABSORPTION OPTIQUE ENTRE 7 ET 12 cm^{-1} DU BK7, Se AMORPHE, ET PMMA

C H A P I T R E I V

ABSORPTION OPTIQUE DANS L'INFRAROUGE TRES LOINTAIN DE MATERIAUX AMORPHES

INTRODUCTION

Entre l'état cristallin et l'état amorphe, il y a en général une augmentation considérable de l'absorption optique dans la région de basses fréquences ($\leq 100 \text{ cm}^{-1}$). Toute une série de phénomènes, tels que vitrification⁽¹⁾, dopage par des impuretés⁽²⁾, cristallisation partielle⁽³⁾, désordre orientationnel et désordre structurel⁽⁴⁾ conduisent à cette augmentation.

Dans tous ces cas le désordre provoque un relâchement des règles de sélection qui gouvernent l'excitation optique des modes de vibrations du réseau.

Ce relâchement des règles de sélection peut créer un couplage des modes qui sont optiquement inactifs dans un solide à structure périodique.

Un spectre optique expérimental représente la convolution de la densité d'état des modes avec un coefficient de couplage⁽⁵⁾: on remarque qu'aucune de ces quantités ne peuvent être déterminées séparément à partir de dépendance en fréquence de l'absorption optique.

Etant donné qu'il n'existe pas de mesures indépendantes de la densité d'état et des coefficients de couplage, nous espérons parvenir à une meilleure analyse de ces deux grandeurs en explorant leurs corrélations en fonction de la fréquence et de la température.

Si on considère un modèle de Debye, c'est-à-dire une densité d'état proportionnelle au carré de la fréquence (K^2) et un coefficient de couplage indépendant de la fréquence, alors le coefficient d'absorption $\alpha(K)$ est proportionnel à K^2 . A partir du diagramme $\alpha(K)/K^2$ en fonction de K , nous pouvons tirer des informations, soit sur le coefficient de couplage, soit sur la densité d'état.

Nous allons montrer les résultats obtenus pour le coefficient d'absorption dans la région de très basses fréquences (c'est-à-dire entre $7,5 \text{ cm}^{-1}$ et 30 cm^{-1}) de la silice vitreuse, BK7, PMMA, GeO_2 et du sélénium amorphe.

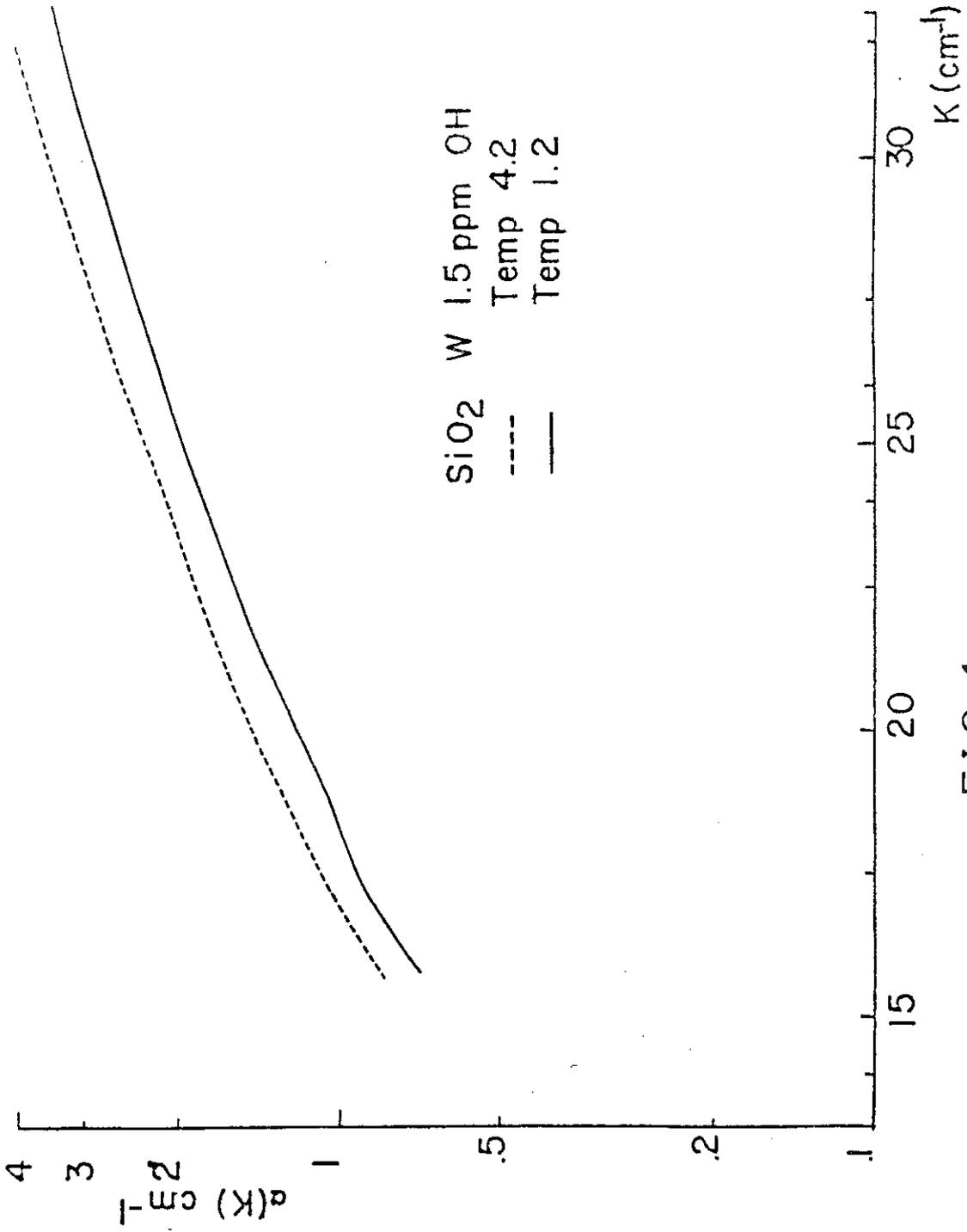


FIG 1

I - SILICE VITREUSE

A) Silice W.

Pour la mesure du coefficient d'absorption de la silice vitreuse nous avons choisi la silice Suprasil W⁽⁶⁾ qui a les caractéristiques suivantes : faible teneur en impuretés métalliques (0,5 p.p.m.), masse spécifique $\rho = 2,20 \text{ g/m}^3$ avec 230 ppm de Cl et 290 ppm de F et 1,5 ppm de OH.

Pour des mesures entre 14 et 30 cm^{-1} nous avons utilisé un échantillon de 5 mm d'épaisseur. Nous avons calculé l'indice de réfraction par la méthode de réflexions multiples (sect. VI-B, chap. III). On a trouvé une valeur de $1,96 \pm 0,02$ et d'après GREIK⁽⁷⁾, on considère que cet indice est invariant au-dessous de 100 cm^{-1} .

Sur la figure n° 1, nous montrons les résultats obtenus pour des températures de 4,2 K (courbe en pointillés) et de 1,2 K (courbe en ligne continue). Ces résultats ont une résolution de $1,2 \text{ cm}^{-1}$.

Pour l'absorption, nous observons une légère variation en température dans ce domaine de fréquences.

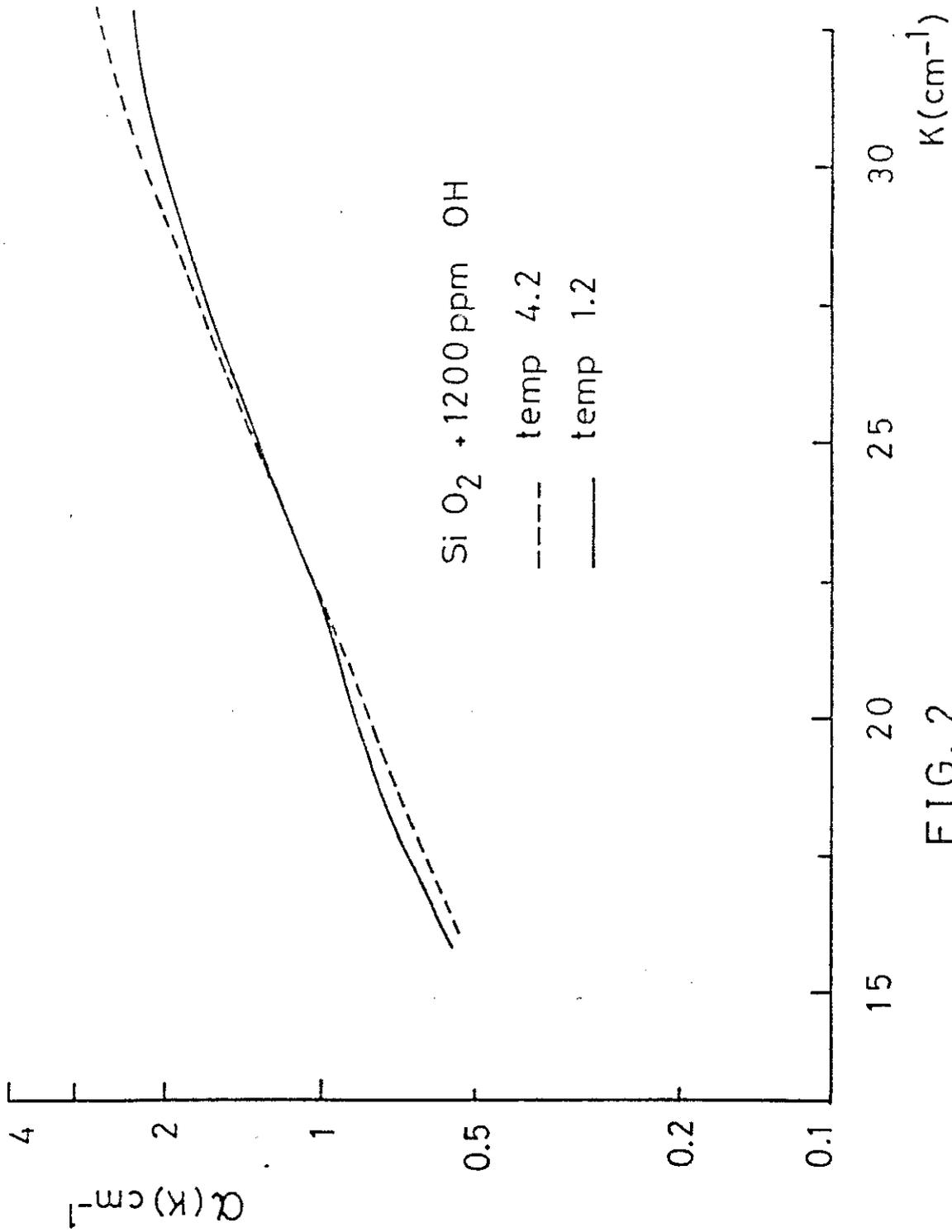


FIG. 2

B) Suprasil, SiO₂ avec 1200 ppm de OH.

Cet échantillon est produit à partir de l'hydrolyse de SiCl₄ vaporisé dans une flamme oxygène-hydrogène⁽⁶⁾. Sa masse spécifique est de 2,20 g/cm³, il contient très peu d'impuretés métalliques (< 0,5 ppm) et approximativement 130 ppm de Cl et 100 ppm de F, cependant la teneur en OH est élevée, environ 1200 ppm.

Pour les mesures entre 14 et 30 cm⁻¹ nous avons utilisé un échantillon de 5 mm d'épaisseur et 1 cm de diamètre. La mesure de l'indice de réfraction a été également calculée par la méthode des réflexions internes sur un échantillon de 1 mm d'épaisseur. La valeur de l'indice est de $1,96 \pm 0,02$, indépendamment de la température entre 1,2 et 300 K.

Les mesures du coefficient d'absorption sont montrées sur la figure 2.

Nous avons une résolution en fréquence de 1,2 cm⁻¹ et une estimation d'erreur en absorption de 5 %.

Nous trouvons un coefficient d'absorption indépendant de la température dans ce domaine de fréquence, contrairement aux résultats obtenus pour la silice W irradiée et non irradiée.

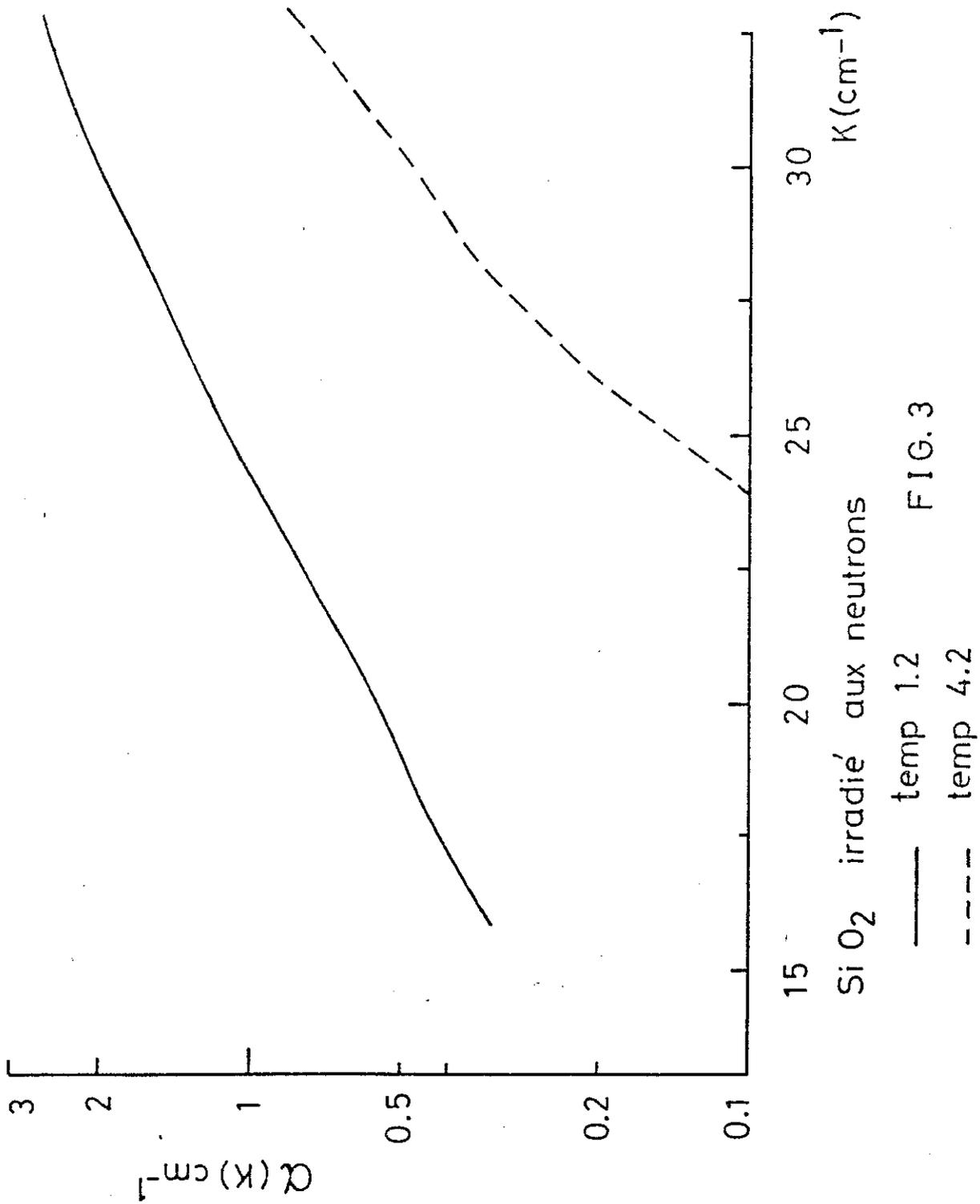
C) Silice W irradiée aux neutrons.

Nous avons obtenu le coefficient d'absorption de la silice W irradiée aux neutrons avec une irradiation de 10^{19} n/cm². Cet échantillon a été irradié il y a 5 ans. Il a une épaisseur de 5 mm et un diamètre de 1 cm.

Pour calculer son coefficient d'absorption nous avons également mesuré son indice de réfraction de la même manière que pour la silice W non irradiée et Suprasil. Nous avons trouvé le même indice de réfraction que pour la silice W et la silice avec OH. L'indice est également indépendant de la température entre 4,2 K et 1,2 K et nous avons supposé qu'il ne varie pas avec la fréquence dans le domaine de 10 à 50 cm⁻¹ (8)(9).

La dépendance en température et en fréquence est indiquée sur la figure 3 pour des températures de 4,2 K (courbe en pointillés) et 1,2 K (courbe en traits continus).

La résolution en fréquence est de 1,2 cm⁻¹.



SiO₂ irradié aux neutrons
— temp 1.2
- - - temp 4.2

FIG. 3

On observe une augmentation de l'absorption quand on passe d'une température de 4,2 K à une température de 1,2 K.

D) Comparaison des résultats.

L'absorption optique dans l'infrarouge lointain de la silice vitreuse a fait l'objet de nombreuses études. Parmi celles-ci, les mesures faites par HADNI⁽¹⁰⁾ dans le domaine de 100 à 220 cm^{-1} à des températures de 300 K et 4 K; par FILLIPOV et YORASKII⁽¹¹⁾ entre 50 et 250 cm^{-1} à des températures de 300 et 750 K; par PLENDE⁽¹²⁾ entre 70 et 300 cm^{-1} à des températures de 300 et 4 K; par BAGDADE et STOLEN⁽¹³⁾ entre 15 et 80 cm^{-1} à des températures de 300 et 20 K; par WONG et al.⁽¹⁴⁾ entre 15 et 100 cm^{-1} à 100 et 300 K; par M. GOOD⁽⁴⁾ entre 8 et 100 cm^{-1} pour des températures de 120, 290 et 620 K et par Sievers⁽¹⁵⁾ entre 2 et 30 cm^{-1} à 4,2 K et 1,2 K.

Deux conclusions sont à tirer de ces résultats : d'une part, une indépendance de l'absorption par rapport à la température et d'autre part le fait que l'absorption de la silice vitreuse est beaucoup plus forte (facteur 20) que celle de la silice cristalline. Ce comportement s'explique par le désordre des positions atomiques (désordre structural) qui n'obéit pas aux règles de sélection d'un cristal parfait et permet à toutes les vibrations tant acoustiques qu'optiques d'interagir avec le rayonnement.

Plus particulièrement les résultats de STOLEN⁽¹³⁾ et WALLEY⁽¹⁴⁾ montrent une dépendance en K^2 de l'absorption en dessous de 30 cm^{-1} et approximativement en K^4 entre 20 et 30 cm^{-1} à des températures de 300 et 100 K en utilisant des échantillons suivants : fused quartz type 101 et 106 de la General Electric, d'une pureté en SiO_2 de 99,97 - 99,98 % avec un tiers de l'impureté totale en aluminium et le composant restant en Na_2O , Fe_2O_3 , CaO , TiO_2 , K_2O et LiO . Ces échantillons présentent des espaces libres de matière qui atteignent 150 mic de diamètre.

Nous constatons une différence entre les résultats de GOOD⁽⁴⁾ et de STOLEN. GOOD ne donne pas la valeur du facteur de normalisation qui donne des valeurs égales du coefficient d'absorption à 27 cm^{-1} , valeur à partir de laquelle il assure qu'il y a une indépendance en température.

GOOD rapporte une dépendance en température du coefficient d'absorption du spectrasil B (550 ppm de OH) entre 17 et 23 cm^{-1} à une

température de 120 K jusqu'à 620 K, avec parallèlement à l'augmentation de la température une augmentation de l'absorption.

PRENDL et al.⁽¹²⁾ et BAGDADE et STOLEN⁽¹³⁾ ne trouvent pas de dépendance en température de l'absorption autour de 18 cm^{-1} . WONG et WALLEY⁽¹⁴⁾ détectent une dépendance en température entre 12 et 18 cm^{-1} .

En ce qui concerne les expériences sur la silice irradiée, STOLEN et al.⁽⁸⁾ observent une diminution (en dessous de 40 cm^{-1}) dans l'absorption de la silice vitreuse (type 106 de la General Electric) après irradiations aux neutrons (10^{20} n/cm^2) à une température de 300 K.

Par contre les résultats de GOOD⁽⁴⁾, au-dessus de 40 cm^{-1} et à 300 K, donnent une augmentation progressive en fonction de l'irradiation et de la teneur en OH. Et en dessous de 40 cm^{-1} , GOOD trouve que l'absorption ne varie pas.

L'ensemble de nos résultats pour des températures de 4,2 K et 1,2 K apparaissent sur les figures 4 et 5 sous un diagramme α/K^2 en fonction de K. Ce diagramme met en évidence des comportements très différents par rapport aux résultats précédents, en particulier, nous n'observons pas la déviation de K^2 pour $K \leq 40 \text{ cm}^{-1}$ pour la silice W et la Suprasil. En revanche, nous trouvons les caractéristiques suivantes :

- 1) Une dépendance en température pour la silice W (1,5 ppm de OH) ; $\alpha(4,2 \text{ K}) > \alpha(1,2 \text{ K})$.
- 2) Une indépendance en température de la silice Suprasil (1200 ppm de OH) (fig.6) et une diminution d'environ $1,2 \text{ cm}^{-1}$ de $\alpha(K)$ par rapport à la silice W à 4,2 K.
- 3) Une forte dépendance en température pour la silice W irradiée aux neutrons. On remarque que cette dépendance en température présente un caractère tout particulier avec une augmentation de l'absorption quand on diminue la température. Par exemple, il y a presque un facteur 3 à 30 cm^{-1} entre les deux températures.
- 4) On trouve un comportement en K^2 à des températures de 1,2 K et 4,2 K pour la silice W et la silice avec 1200 ppm de OH.
- 5) On trouve une déviation du comportement en K^2 pour la silice W irradiée aux neutrons.

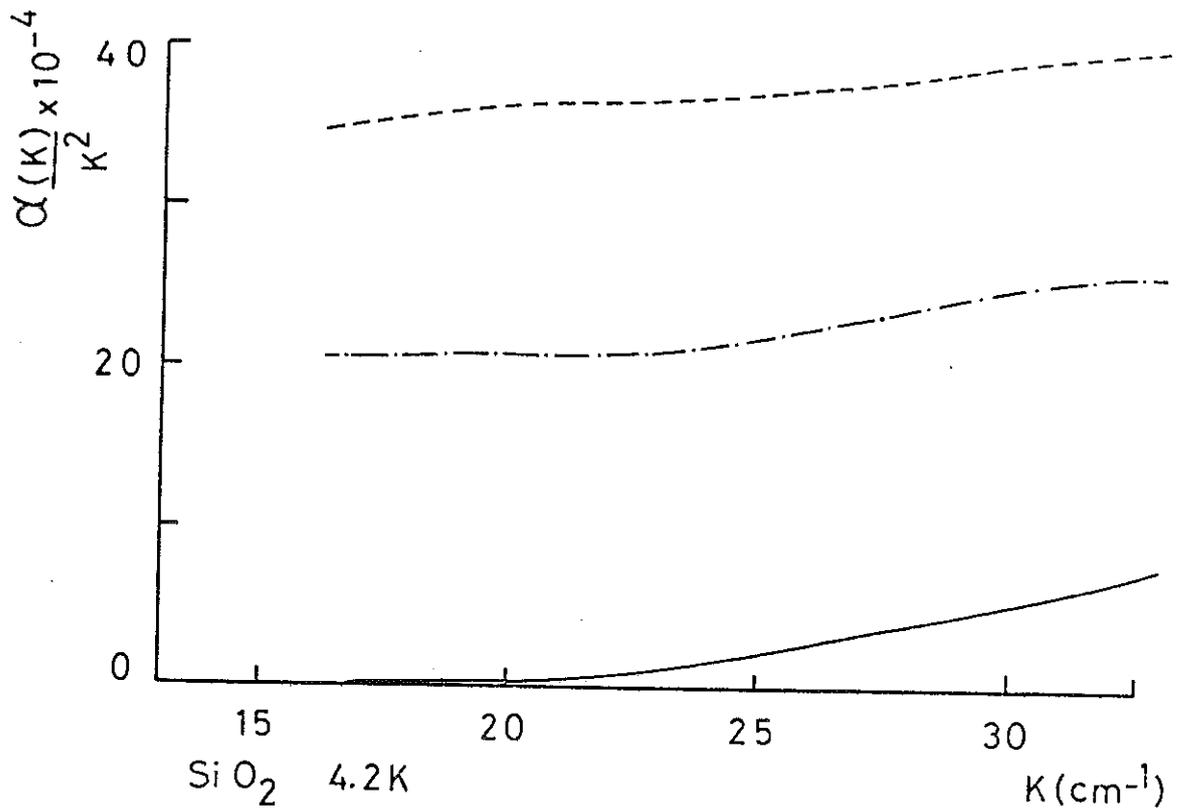


FIG. 4

- Si O₂ W 1.2 ppm OH
- · - · - Si O₂ + 1200 ppm OH
- Si O irradié aux neutrons

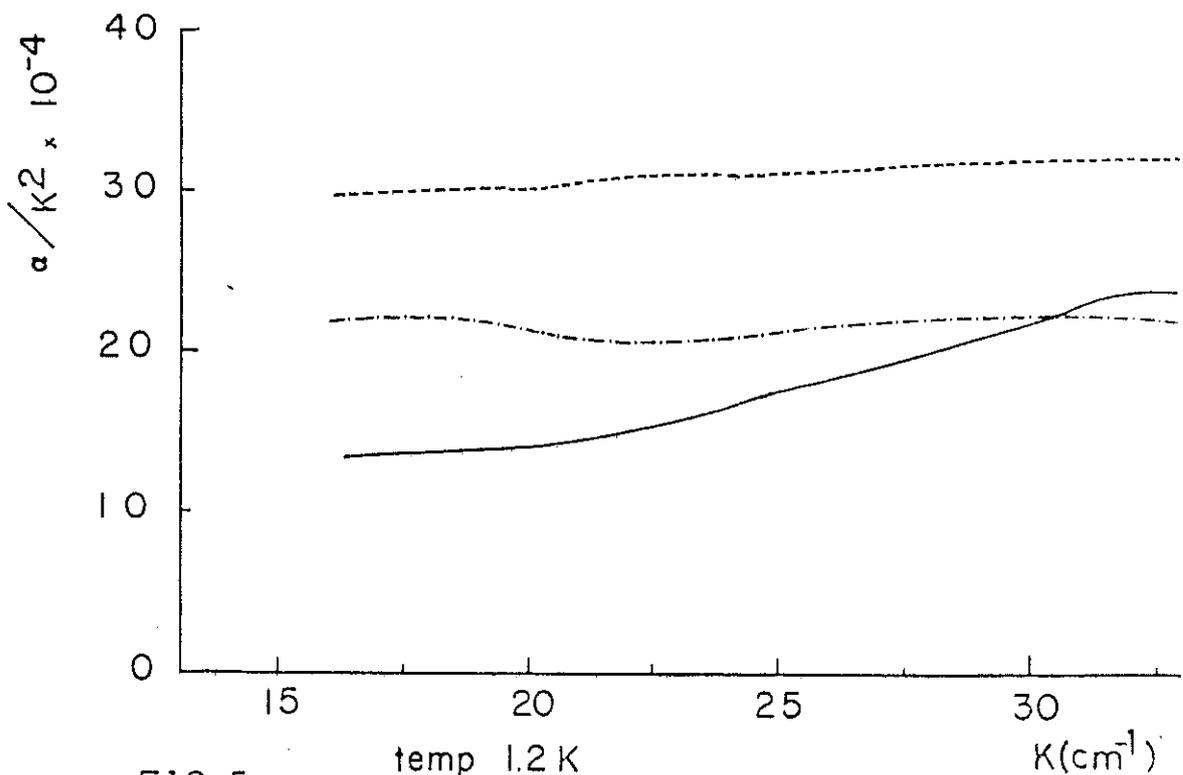


FIG. 5

- temp 1.2 K
- SiO₂ W 1.2 ppm OH
- · - · - SiO₂ 1200 " "
- SiO₂ irradié aux neutrons

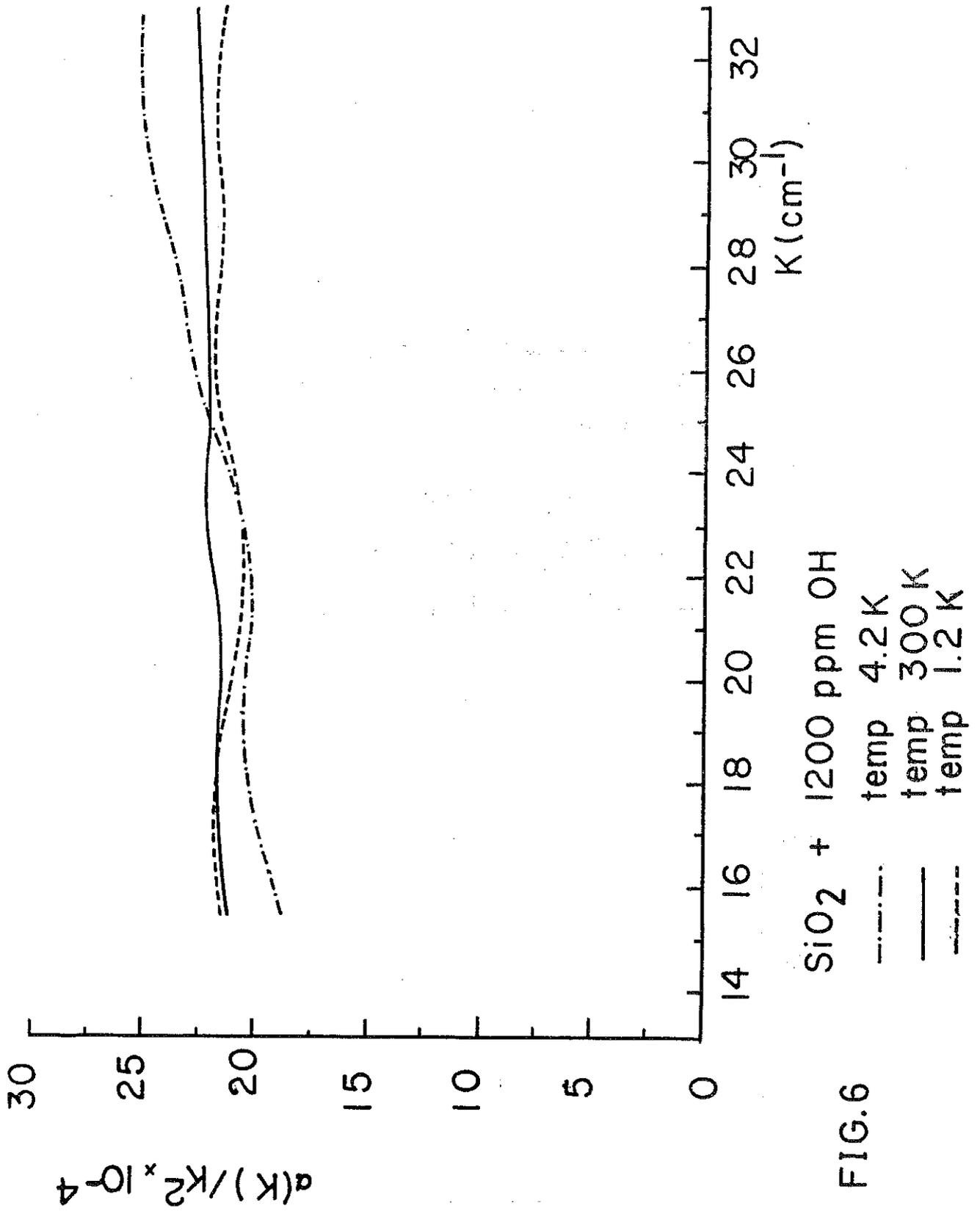


FIG.6

E) Silice W irradiée aux neutrons.

Le comportement observé dans la silice W irradiée aux neutrons (voir fig. 3) et les résultats trouvés à 300 K par STOLEN et KRAUSE⁽⁸⁾ sur la silice obtenue à partir de quartz fondu, nous permettent de déduire qualitativement que l'irradiation produit d'une part la compaction de la silice (diminution de la moyenne de l'angle de liaison Si-O-Si de 142 à 138°) et d'autre part, la diminution de l'absorption optique vers un comportement intermédiaire entre la silice vitreuse et le quartz cristallin (dans la région des très basses fréquences $\leq 50 \text{ cm}^{-1}$) due à la diminution de défauts par compaction.

Si on applique le modèle de Stolen (sect. II-E de ce chapitre) à la silice W irradiée aux neutrons à la température de 1,2 K, on peut tirer du diagramme α/K^2 de la fig. 5, une longueur de corrélation entre défauts : $\lambda_0 = 39,6 \text{ \AA}$, calculée en prenant la vitesse du son trouvée par STRAKNA⁽²⁰⁾. A partir de cette longueur de corrélation, nous trouvons que le nombre de défauts à la température 1,2 K est approximativement de $N_{1,2} = 1,61 \times 10^{19} \text{ d/cm}^3$.

La comparaison de l'absorption à 4,2 K et 1,2 K nous permet d'estimer à 4,2 K une longueur de corrélation plus petite que celle trouvée pour la température de 1,2 K, d'environ 30 Å, à partir de laquelle on trouve un nombre de défauts approximativement $N_{4,2} = 3,40 \times 10^{19} \text{ d/cm}^3$.

La déviation du comportement en K^2 de l'absorption optique de la silice irradiée, se déplace vers les plus hautes fréquences quand on augmente en température. Par conséquent, le nombre de défauts augmente en fonction de la température.

Une possibilité d'explication de ce phénomène peut être la présence de centre de couplage dont l'énergie d'activation est très faible et de l'ordre de 1,3 K.

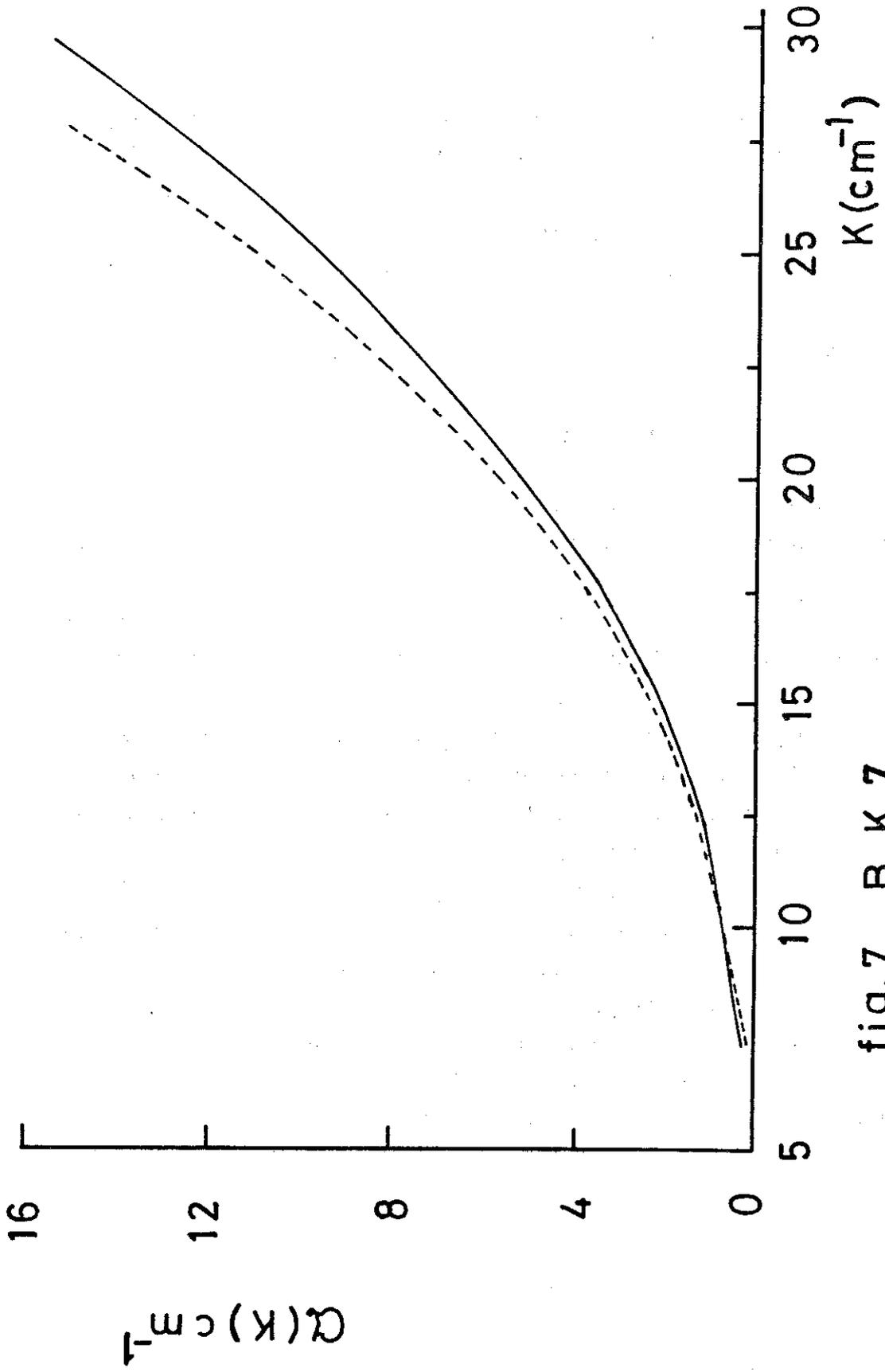


fig.7 B K 7

----- temp 4.2 K

———— temp 1.2 K

II - ABSORPTION OPTIQUE DU BK7, PMMA, GeO₂ et Se amorphe.

A) Verre de silice au Bore, BK7.

Le coefficient d'absorption et l'indice de réfraction du BK7 ont été mesurés dans le domaine du 7,5 à 28 cm⁻¹ aux températures de 4,2 K et 1,2 K (figure 7).

L'indice de réfraction est de $2,08 \pm 0,2$, calculé par la méthode des réflexions multiples, à une température de 4,2 K. On a supposé qu'il est indépendant de la température et constant pour des fréquences inférieures à 30 cm⁻¹.

On observe une légère dépendance en température surtout pour des fréquences supérieures à 20 cm⁻¹. Dans ce domaine de fréquences, il n'y a pas, jusqu'à présent de valeurs rapportées dans la littérature sauf en dessous de 10 cm⁻¹.

La composition de ce verre est : SiO₂ (69 %), B₂O₃ (11 %), Na₂O (10 %), K₂O (7 %) et Ba (3 %) et sa masse spécifique est de 2,51 g/cm³.

On observe que le BK7 présente une absorption plus forte que la silice W.

B) Etude du GeO₂ amorphe.

Nous avons mesuré l'absorption optique de GeO₂ amorphe entre 7 et 24 cm⁻¹ à la température de 4,2 K. L'échantillon a été fourni par la société St-Gobain.

Sur la figure 8, nous montrons la variation du coefficient d'absorption en fonction de la fréquence à une température de 4,2 K. Comme valeur de l'indice de réfraction nous avons pris les valeurs rapportées par RIBEYRON et al.⁽¹⁶⁾, valeurs également trouvées par GOOD⁽⁴⁾ $n = 2,23$. Cet échantillon a une épaisseur de 3,4 mm.

Les résultats rapportés précédemment par RIBEYRON et al.⁽¹⁶⁾ sont en très bonne concordance avec nos résultats.

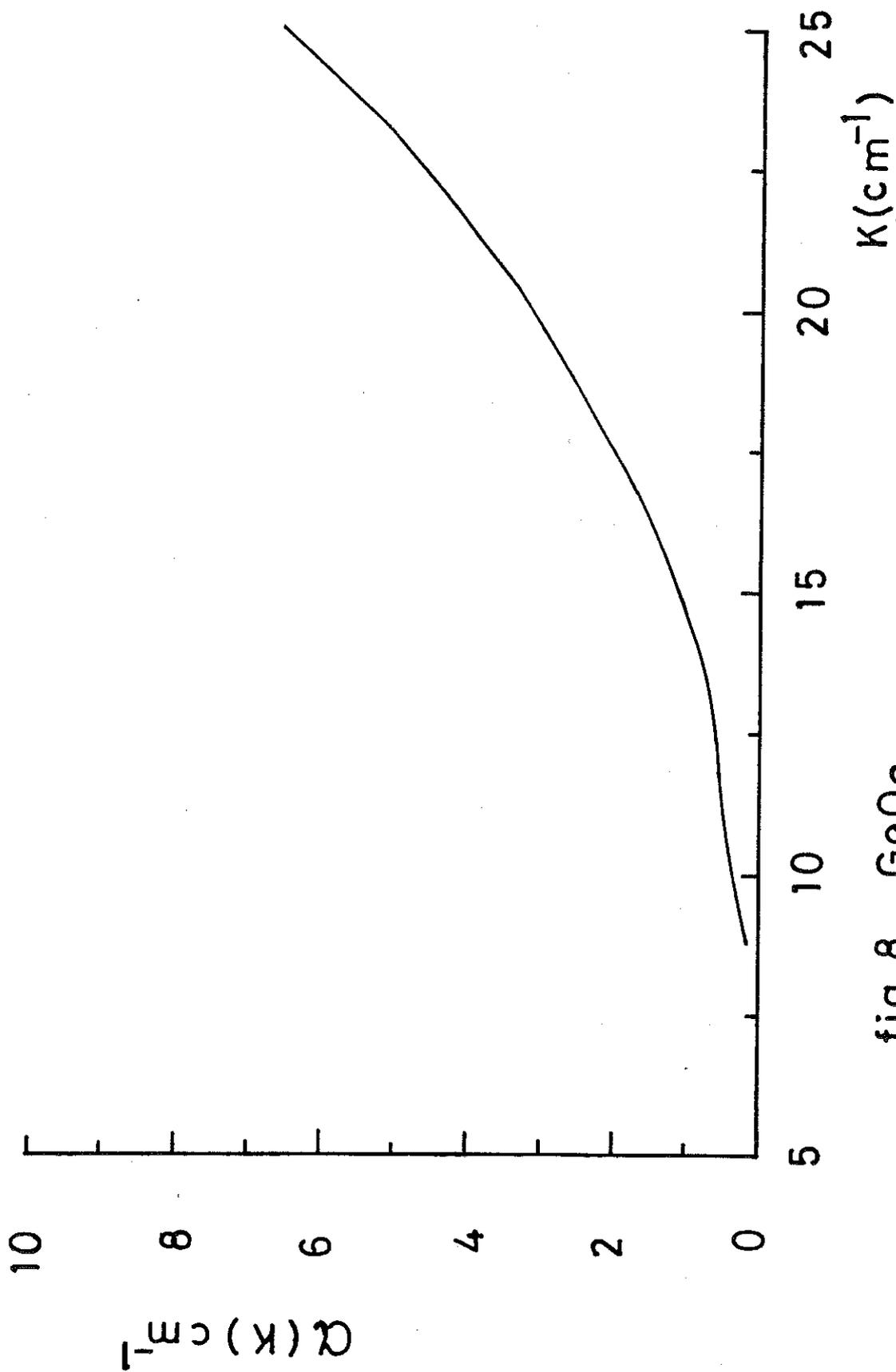


fig.8 GeO2
temp 4.2 K

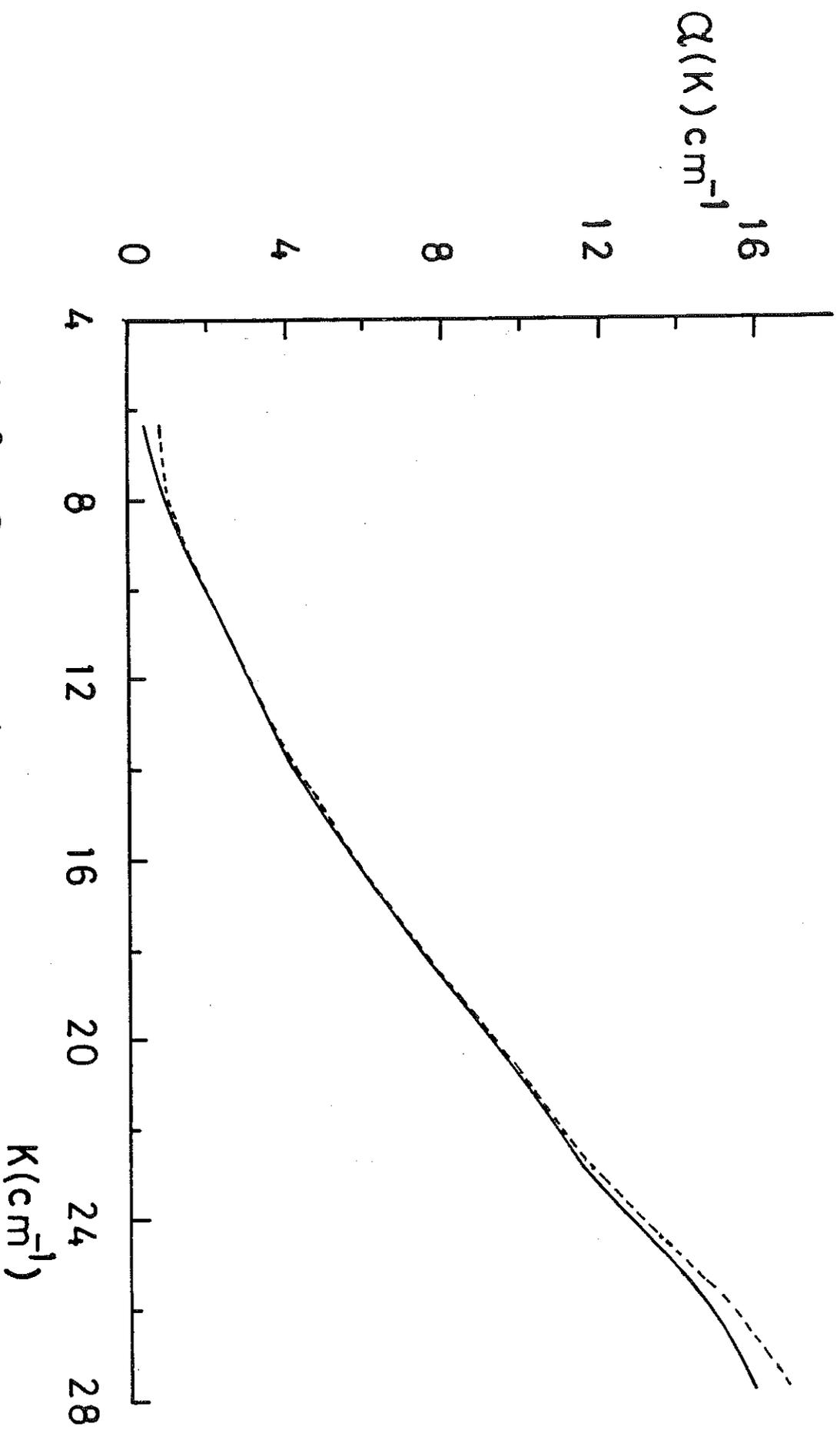


fig.9 Se amorphe

----- temp 12 K
——— temp 42 K

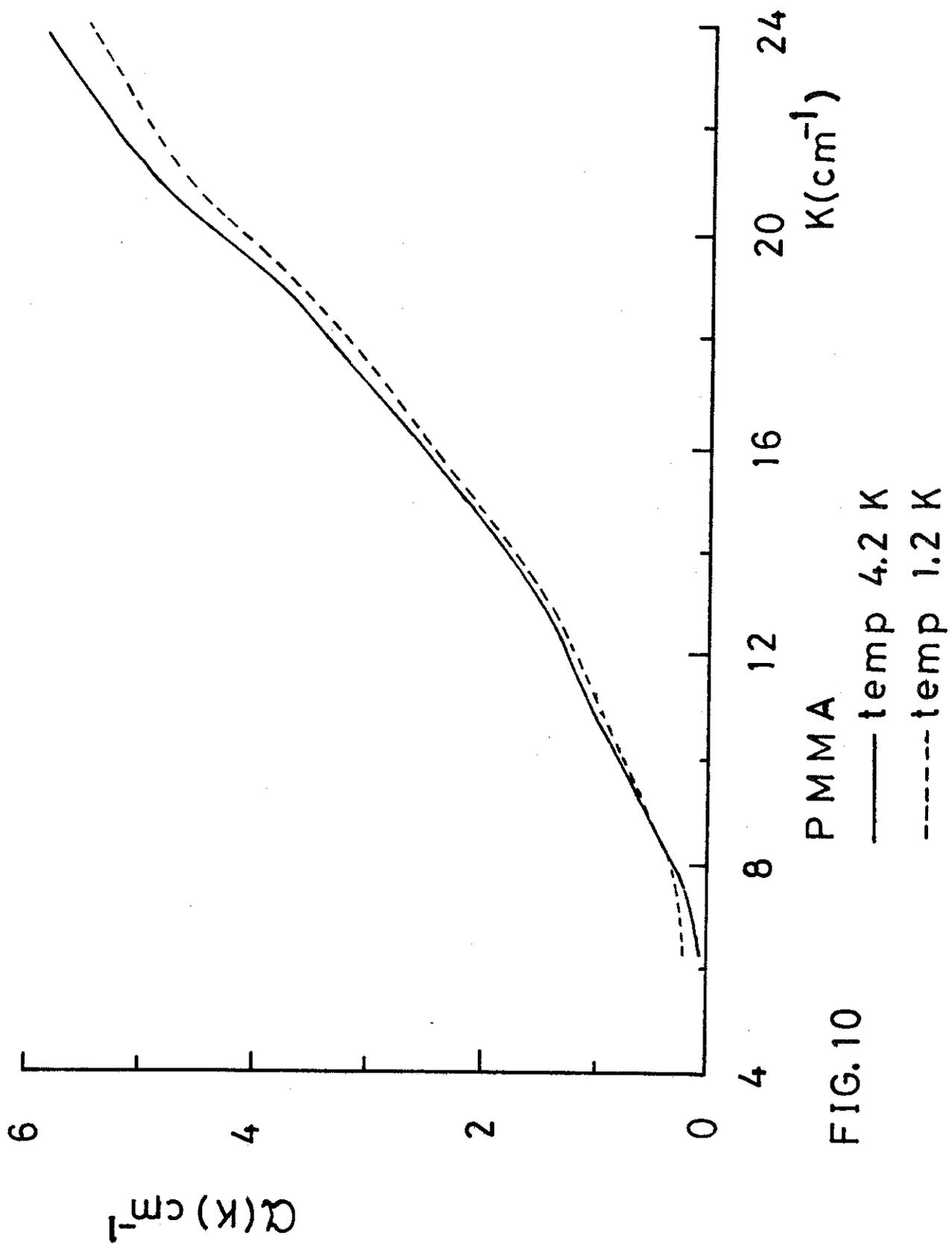


FIG. 10

C) Sélénium amorphe.

L'étude du sélénium amorphe a été l'un des principaux sujets abordés par le groupe de Ribeyron et Laurant dans la gamme de 15 à 120 cm^{-1} . Ces résultats peuvent se résumer en trois points.

- 1) Présence de deux pics à 62 et 102 cm^{-1} attribués respectivement à un mode de rotation de chaînes et un mode de vibration des anneaux Se_8 ⁽⁵⁾
- 2) Une dépendance en température de l'absorption optique : augmentation du coefficient d'absorption quand on diminue la température entre $4,2 \text{ K}$ et 300 K .
- 3) D'après le diagramme en α/K^2 on n'observe pas une corrélation entre phonons accoustiques et photons.

Nous montrons sur la figure 9 le comportement du coefficient d'absorption du Se amorphe dans la gamme de fréquences entre $7,5 \text{ cm}^{-1}$ et 28 cm^{-1} à des températures de $4,2 \text{ K}$ et $1,2 \text{ K}$. Nous constatons une indépendance du coefficient d'absorption vis-à-vis de la température entre 9 et 26 cm^{-1} .

D) PMMA, poly (méthylmethacrylale).

L'absorption optique de ce polymère a été mesurée entre $7,5 \text{ cm}^{-1}$ et 23 cm^{-1} à des températures de $4,2$ et $1,2 \text{ K}$.

L'échantillon mesuré à 10 mm d'épaisseur. Comme indice de réfraction on a utilisé une valeur de $1,8$.

Les résultats obtenus, qui apparaissent sur la figure 10 s'accordent très bien avec les mesures faites par Sievers entre 2 et 20 cm^{-1} ⁽¹⁵⁾.

E) Interprétation des résultats.

Modèle de BAGDADE et STOLEN ⁽¹³⁾.

Bagdade et Stolen supposent que l'existence de défauts dans les matériaux amorphes provoquent un couplage avec les modes de vibration. Ils utilisent les théories de VIROGRADOV et SCHLOMAN ⁽²⁵⁾ dans lesquelles les charges sont distribuées aléatoirement dans un milieu continu.

A basses fréquences (grandes longueurs d'ondes) le solide apparait comme un milieu continu avec des défauts chargés, distribués aléatoirement. Sous l'action du champ oscillatoire électromagnétique

les défauts seront entraînés à la même fréquence et exciteront les ondes élastiques (phonons acoustiques) du solide. L'absorption est alors directement proportionnelle au nombre de défauts chargés et à la densité d'état du phonon acoustique. On remarque que la densité d'état des vibrations acoustiques est proportionnelle au carré de la fréquence. Dans ce cas l'absorption est :

$$\alpha = \frac{q^2}{3\rho_0 nc} N \omega^2 \left[\frac{2}{C_t^3} + \frac{1}{C_l^3} \right]$$

- q = charge du défaut ;
- N = nombre de défauts par unité de volume ;
- C_t et C_l = vitesses du son, longitudinale et transversale ;
- ρ₀ = la densité ;
- c = la vitesse de la lumière ;
- ω = pulsation du rayonnement électromagnétique.

Bagdad et Stolen ont montré que cette relation est vérifiée, en particulier pour la silice au-dessus de 40 cm⁻¹ à 300 K.

Pour mieux apprécier le comportement de l'absorption optique de nos matériaux, nous avons rapporté sur les figures 9,10,11,12, le diagramme α/K² en fonction de K correspondant à BK7 GeO₂, Se amorphe et PMMA respectivement. Nous constatons un comportement en K^β avec 1,8 < β ≤ 2, pour des plages de fréquences qui varient suivant les matériaux. Nos résultats permettent de confirmer que le couplage entre les ondes électromagnétiques et les phonons acoustiques est celui prédit par le modèle de Stolen.

A plus basse fréquence, le mécanisme proposé est le suivant: l'absorption induite par les phonons acoustiques est provoquée par la présence de défauts chargés. Ceux-ci permettent le couplage photon-phonon par création d'un vecteur dipolaire électrique induit : lorsque la longueur d'onde des phonons créés devient de l'ordre de grandeur de la distance entre ces défauts, le milieu apparaît alors comme neutre. L'absorption correspondante décroît plus rapidement. Cette interprétation un peu restrictive car limitée à l'existence de défauts chargés statiques peut être étendue à la notion de défauts de charges dynamiques qui apparaissent lors des vibrations du réseau désordonné.

On définit ainsi une longueur de corrélation.

Connaissant la vitesse du son des différents échantillons, nous calculons la longueur d'onde des phonons où l'absorption ne suit plus la

loi en K^2 : les fréquences correspondantes sont déterminées dans les diagrammes α/K^2 . En conséquence, on peut en déduire l_0 , longueur de corrélation.

ECHANTILLON	K_0 (cm ⁻¹)	Vson(cm/sx10 ⁵)	l_0 (Å)	Nb x 10 ¹⁹ (défaut/cm ³)
GeO ₂	35	3,59	20	12,5
Se Amorphe	10	1,21 ⁽¹⁷⁾	40	1,56
BK7	30	4,63 ⁽¹⁸⁾	51,5	0,7
PMMA	11	1,93 ⁽¹⁹⁾	58,5	0,5

TABLEAU 1

L'absorption en dessous de la fréquence K_0 est plus faible ; ceci est dû à la corrélation entre défauts chargés qui intervient lorsque la longueur d'onde des phonons induits devient du même ordre de grandeur que la distance moyenne entre défauts.

l_0 ainsi définie est la longueur à partir de laquelle le matériau apparaît neutre. Etant donné que dans les cristaux les phonons acoustiques ne sont pas couplés aux ondes électromagnétiques nous mettons en évidence des domaines où l'ordre est proche du cristal ou plus exactement où le désordre diminue localement.

Cette longueur de corrélation l_0 peut être liée à la distance entre défauts ; lorsque la distance entre ceux-ci devient de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde des phonons créés, le vecteur dipolaire électrique créé diminue et l'absorption décroît plus rapidement. Nous pouvons donc calculer le nombre de défauts Nd.

$$Nd = \frac{1}{l_0^3}$$

En conclusion, les matériaux amorphes étudiés (voir tableau 1) présentent, dans l'absorption, des composantes acoustiques en dessous de la gamme de fréquence de 40 cm⁻¹.

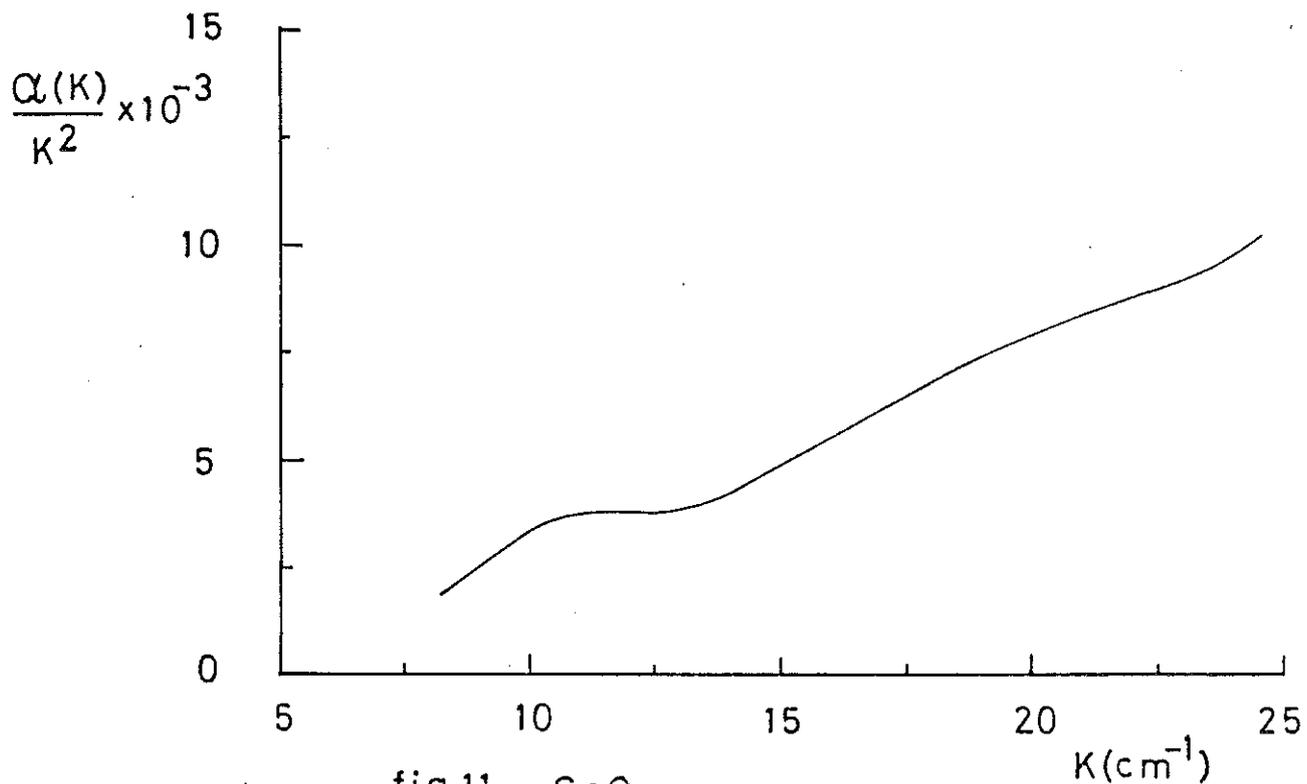


fig.11 GeO_2
temp 4.2 K

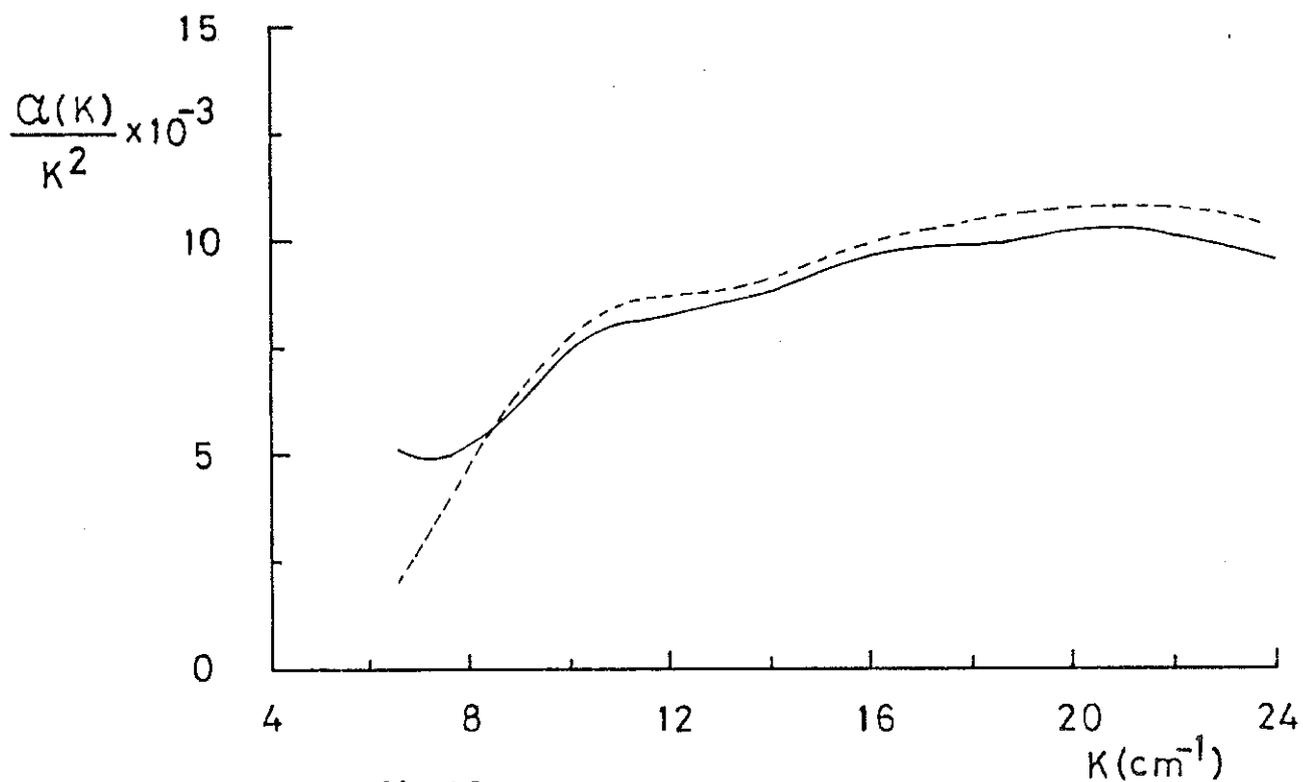


fig.12 PMMA
----- temp 4.2 K
————— temp 1.2 K

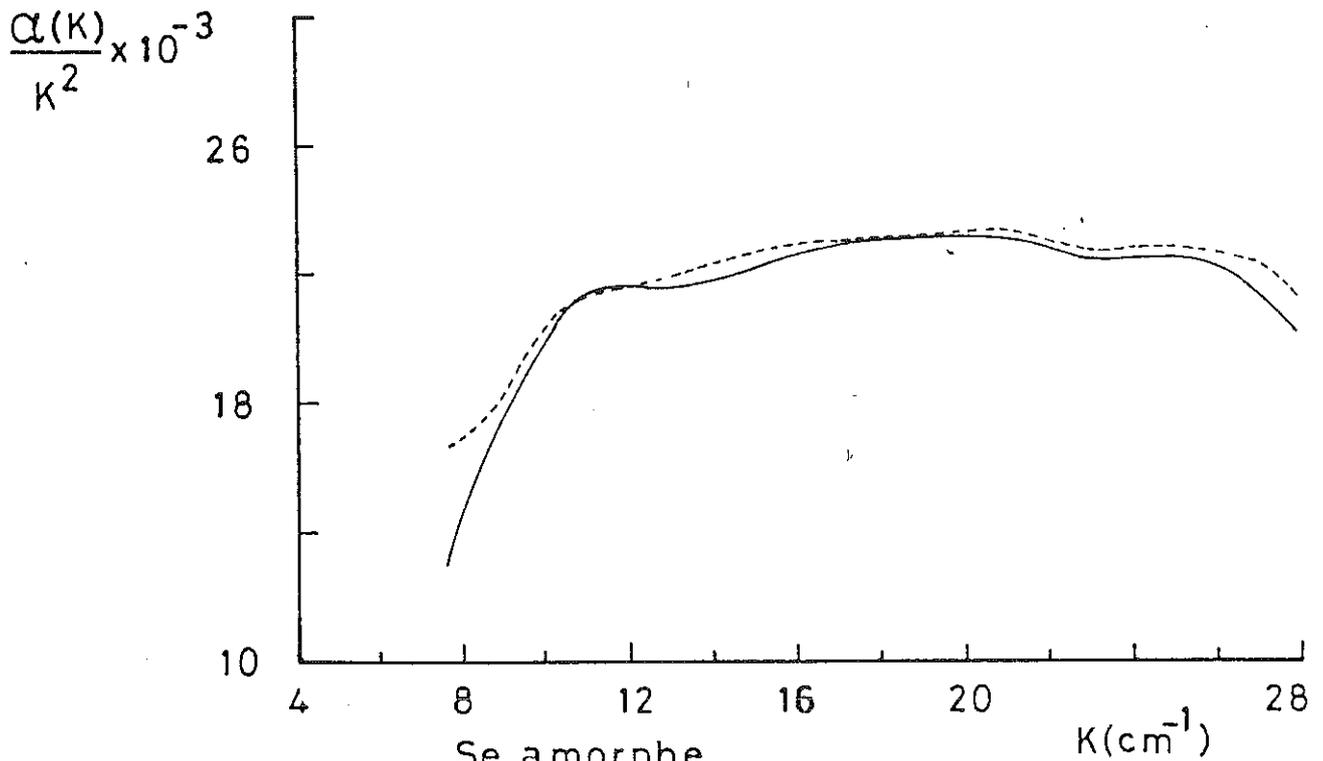


FIG.13

Se amorphe

----- temp 1.2 K

————— temp 4.2 K

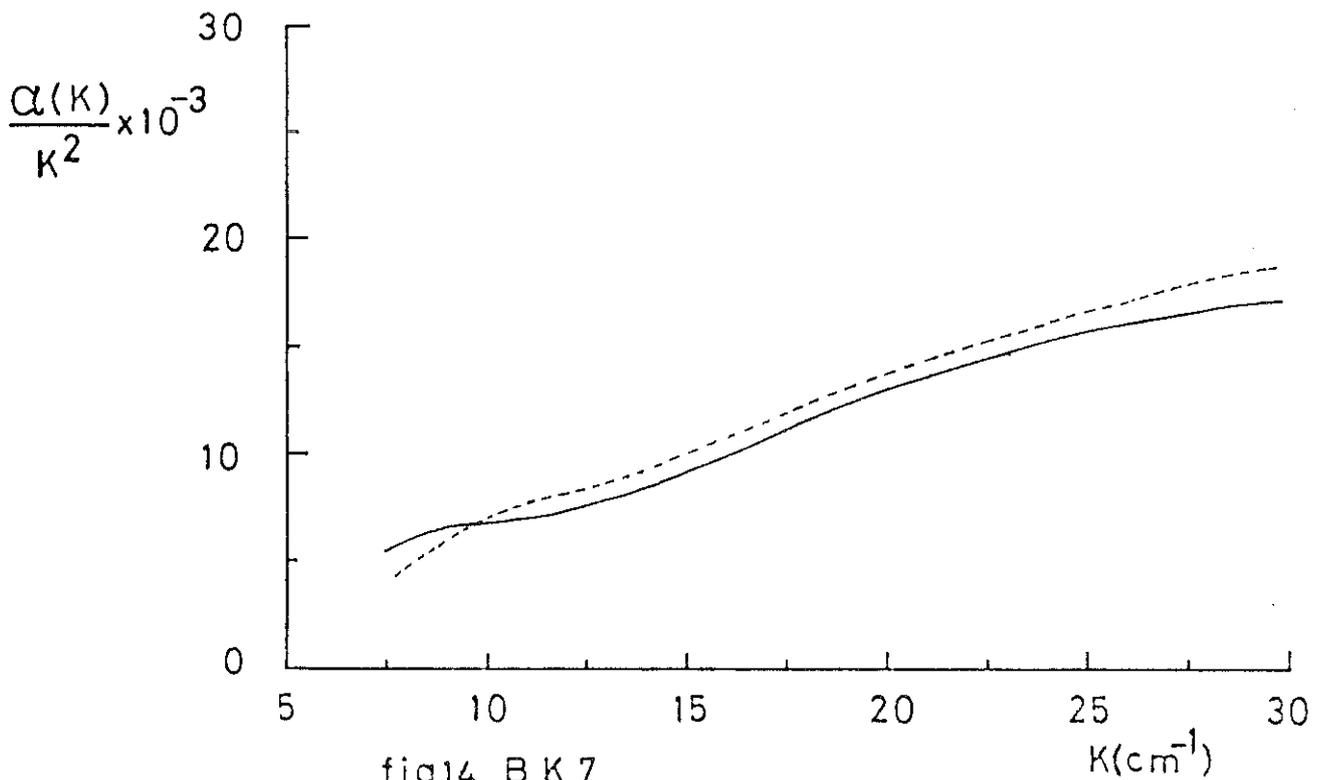


fig.14 B K 7

----- temp 4.2

————— temp 1.2

Nous remarquons que les longueurs de corrélation l_0 dans les cas de Se amorphe et de P M M A sont importantes et du même ordre de grandeur, alors que pour GeO_2 et BK7, cette distance est beaucoup plus faible.

Ce résultat est à rapprocher du fait que Se amorphe et P M M A ont une structure de type polymère (longues chaînes) alors que BK7 et GeO_2 ont une structure tétraédrique, c'est-à-dire plus compacte.

III - EXCITATIONS DE TRES BASSES FREQUENCES

A) Absorption optique entre 7 et 12 cm^{-1} .

Dans la région de très basses fréquences (en dessous de 20 cm^{-1}) la chaleur spécifique, l'atténuation ultrasonore et les expériences de RPE suggèrent qu'il existe une région dans l'infrarouge lointain où l'absorption optique de solides amorphes dépend fortement de la température.

Le modèle proposé par ANDERSON et al.⁽²¹⁾ et PHILLIPS⁽²²⁾ propose que la dépendance en température du coefficient d'absorption dans l'infrarouge lointain est déterminée par la population des systèmes localisés (défauts) à deux niveaux d'énergie.

On suppose qu'un atome ou un groupe d'atomes peut adopter deux positions d'équilibre. Les deux positions correspondent au point de vue énergétique aux deux minima E_1 et E_2 d'un double puits de potentiel asymétrique, voir figure 15. La particule selon sa position oscille autour de l'un de ces minima avec une fréquence Ω_1 ou Ω_2 . Dans un matériau amorphe, l'environnement peut différer du site 1 au site 2 ce qui introduit une certaine énergie d'asymétrie $\epsilon = E_1 - E_2$. Dans l'espace, les sites 1 et 2 sont distants de $X_2 - X_1 = d$, d pouvant représenter une distance ou un angle : pour passer d'une position à l'autre, la particule doit franchir une barrière de potentiel U_0 .

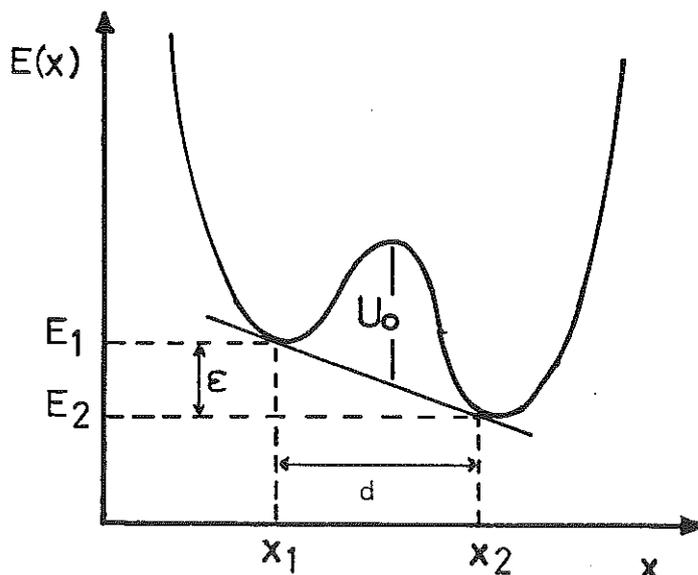


FIGURE 15 Représentation schématique du double puits.

Les états propres ont pour énergie :

$$E = \pm \frac{1}{2} (\epsilon^2 + \Delta^2)^{1/2}$$

où ϵ est l'assymétrie du double puits et Δ est fonction des caractéristiques de ce puits (hauteur de la barrière des potentiels U , distance entre les deux minima d) et de la masse de la particule.

En considérant ce modèle, l'expression générale du coefficient d'absorption pour une transition dipolaire électrique d'un état $|1\rangle$ vers un état $|2\rangle$ est⁽²³⁾ :

$$\alpha(\omega, T) = \frac{\hbar\omega}{c\sqrt{\epsilon}} B [N_1(\omega, T) - N_2(\omega, T)]$$

avec $B = \frac{4\pi^2}{\hbar} | \langle 1 | \mu' | 2 \rangle |^2$

où B est le coefficient d'Einstein et $\langle 1 | \mu' | 2 \rangle = \mu'$ est l'élément matriciel du moment dipolaire entre les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$. $N_1(\omega, T)$ et $N_2(\omega, T)$ sont la densité des populations par unité de fréquence des systèmes avec une séparation $\hbar\omega$ dans l'état $|1\rangle$ et dans l'état $|2\rangle$ à la température T . Si on suppose que les potentiels et la fonction d'onde ne changent pas avec la température (en particulier avec de faibles changements autour de 4,2 K) alors le moment dipolaire est indépendant de la température. La variation de l'absorption avec la température est alors en rapport avec la variation relative de la population entre les deux niveaux du système résonant.

Etant donné que le rayonnement incident est de l'ordre de 10^{-8} Watts, on néglige les effets de saturation. La fonction de partition Z de ce système s'écrit :

$$Z = 1 + e^{-(\hbar\omega/KT)}$$

$$\text{Alors } N_1(\omega, T) - N_2(\omega, T) = n_E(\omega, T) [1 - e^{-\hbar\omega/KT}] / (1 + e^{-\hbar\omega/KT})$$

$$= n_E(\omega, T) \tanh (\hbar\omega/2KT)$$

Alors on aura :

$$\alpha(\omega, T)_{\text{res}} = 4\pi^2 n_E \mu'^2 \omega \tanh(\hbar\omega/2KT) / \sqrt{\epsilon} c$$

où $n_E(\omega, T) = n_E$ est la densité des états couplés au champ électrique, et est supposée constante.

Ce modèle prédit qu'une augmentation en température conduit à une diminution dans le coefficient d'absorption. On observe que le processus de résonance du système à deux niveaux impose la condition $\alpha(\omega, 4,2 \text{ K}) - \alpha(\omega, 1,2 \text{ K}) < 0$ dans la variation de l'absorption avec la température. Cependant, nous observons dans nos expériences que nous avons $\alpha(\omega, 4,2 \text{ K}) - \alpha(\omega, 1,2 \text{ K}) \geq 0$ (pour les systèmes étudiés) pour des fréquences supérieures à 9 cm^{-1} (voir fig. 16 et 17). Ce comportement a été expliqué par BOSCH⁽²⁴⁾ en tenant compte dans l'absorption du processus par relaxation dû au Tunneling assisté d'un phonon. Ce qui donne pour le coefficient d'absorption.

$$\alpha_{\text{rel}} = A \int_0^{\infty} \frac{\exp(E/KT)}{kT(1 + \exp(E/KT))} \frac{\omega^2 \tau_1}{(1 + \omega^2 \tau_1^2)} dE$$

Dans cette expression le terme A qui fait intervenir le couplage du dipole permanent $n_e \mu'^2$ est utilisé comme paramètre ajustable. τ_1 est le temps de relaxation du défaut et définit le retour à l'équilibre de la fonction de distribution $n(E)$ des systèmes à deux niveaux d'énergie E. τ_1 est de la forme :

$$\tau_1 = \frac{a}{E^3} \tanh(E/2KT)$$

Nous montrons sur la figure 17 la courbe de variation de la différence de l'absorption théorique $\Delta\alpha_T$ calculée en tenant compte des processus par résonance et relaxation pour l'échantillon BK7. Les paramètres A, a et $n_e \mu'^2$ sont ajustés à la courbe expérimentale.

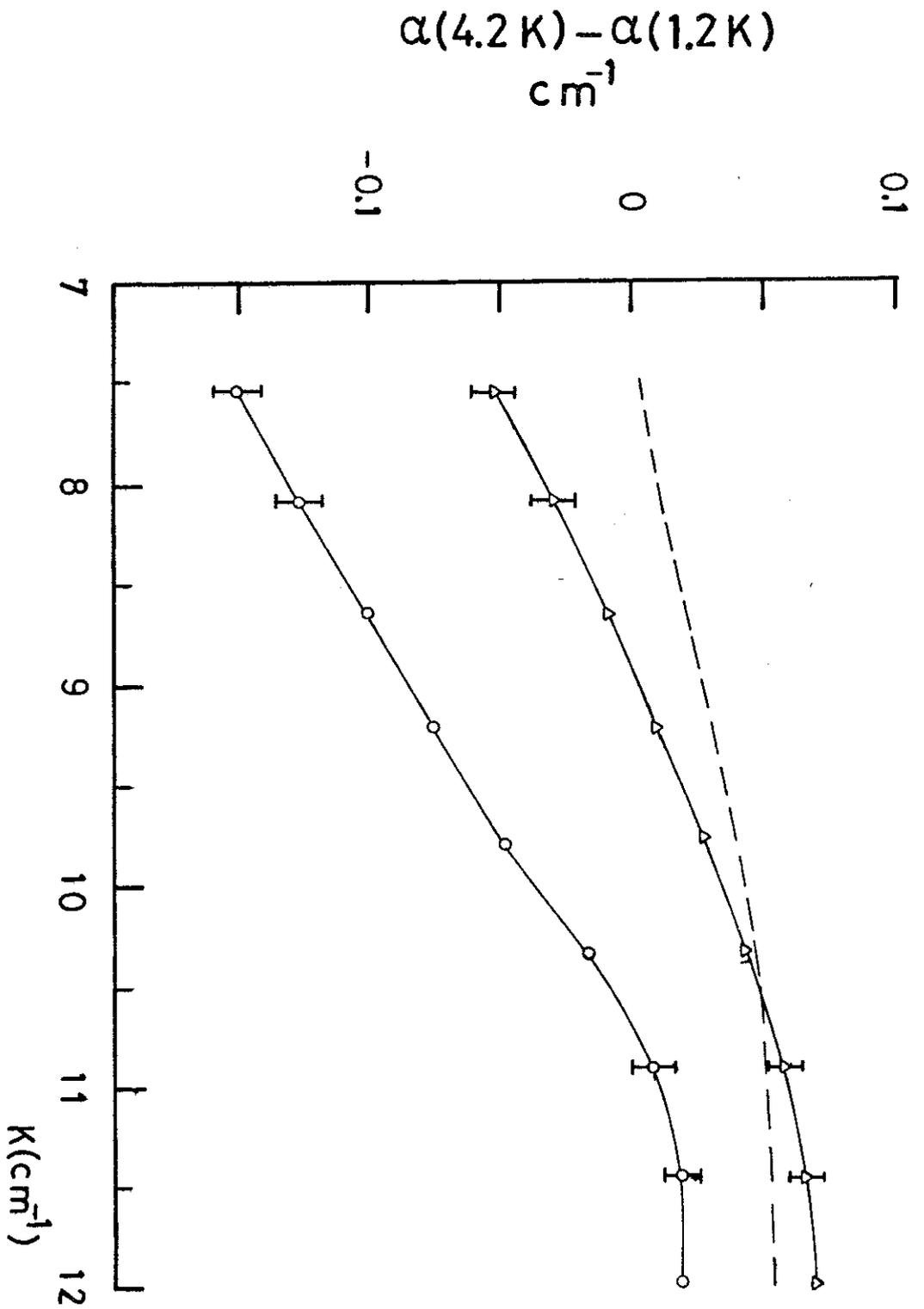


FIGURE 16 Mesure de la variation de $\alpha(4,2\text{ K}) - \alpha(1,2\text{ K})$
en fonction de la fréquence (15)
----- PMMA d'après Sievers
 $\Delta-\Delta-\Delta-$ PMMA
o-o-o- Se amorphe } nos résultats

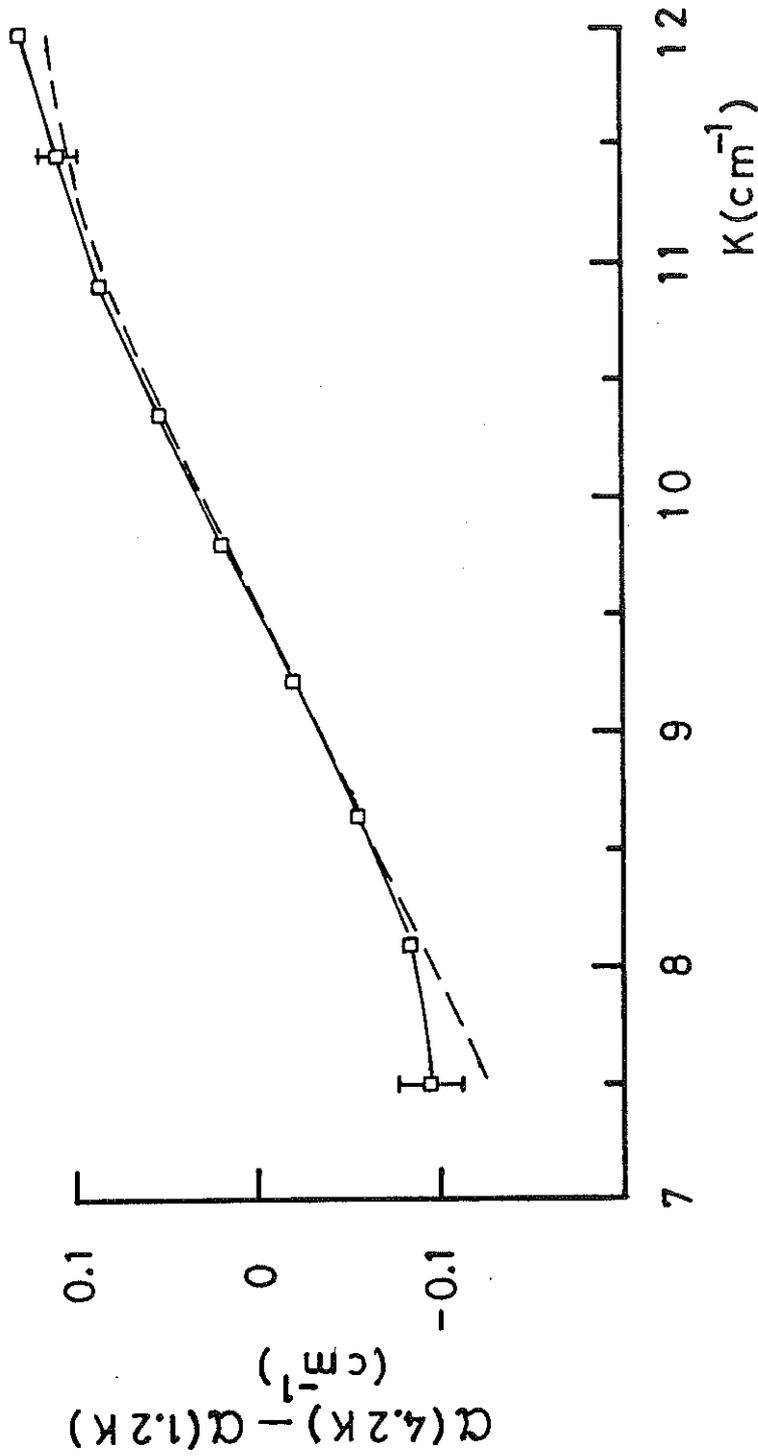


FIG. 17. Variation de $\alpha(4,2\text{ K}) - \alpha(1,2\text{ K})$ en fonction de la fréquence du verre borosilicate. En pointillé nous montrons l'ajustement de la partie résonante plus la partie de relaxation du modèle double puits à nos résultats expérimentaux.

D'après ces résultats, nous trouvons les valeurs suivantes :

$$n_E \mu'^2 = 3,04 \times 10^{-3} \text{ cgs units}$$

$$A = 2,12 \times 10^{-11} \text{ cm}^{-1} \text{ sec.}$$

$$a = 3,22 \times 10^{-56} \text{ erg}^3 \text{ sec.}$$

Notre valeur de $n_E \mu'^2$ diffère d'un ordre de grandeur, par rapport aux valeurs trouvées dans la littérature.

Par exemple, PICHE et al. ⁽²⁴⁾ a trouvé une valeur de $n_E \mu'^2 = 3,1 \times 10^{-4}$ en supposant que la densité des états n_E est constante et égale à celle de la silice vitreuse. Cette grande différence peut provenir du fait que la densité d'état n'est pas constante pour des énergies supérieures à 5 K. D'autre part, le processus où une particule saute la barrière d'un double puits par activation thermique n'a pas été considéré.

R E F E R E N C E S

1. U. STROM, J.R. HENDRICKSON, R.J. WAGNER and P.C. TAYLOR,
Solid State Commun. 15, 1871 (1974).
2. R.H. STOLEN and K. DRANSFELD,
Phys. Rev. 139, A1295 (1965).
3. E.M. AMRHEIN and H. HEIL,
J. Phys. Chem. Solids, 32, pp. 1925-1933 (1971).
4. M.J. WOOD,
Thesis of Doctor of Philosophy, at the University of Bristol,
March 1971.
5. A. RIBEYRON, J.M. LAURANT,
Physics Letters, vol. 49A, n° 1, pp. 75 (1974).
6. Echantillons fabriqués par Heraeus-France.
7. R. GEICK, Z. Phys. Rev. 116 (1961).
8. R.H. STOLEN, J.T. KRAUSE, C.R. KURKJIAN,
Discussions of the Faraday Soc., Bristol (1970), "The vitreous state".
9. G.K. WHITE,
Cryogenics, february 1964, pp. 2-7.
10. A. HANDNI,
Annals. Phys. 9, 9 (1964).
11. O.K. FILLIPON and N.G. YAROSLAVSKII,
English Trans. Opt. Spect., 1963, 15, 299.
12. J. PLENDL, L.C. MANSOR, A. HADNI, F. BREHAT, P. HENRY, G. MORLOT,
F. NAUDIN and P. STRIMER,
J. Phys. Chem. Solids 1967, 28 (1589).
13. W. BAGDADE and R. STOLEN,
J. Phys. Chem. Solids, 1968, 29, 2001.
14. P.T.T. WONG and E. WHALLEY,
Discussions of the Faraday Soc., Bristol (1970), "The vitreous state".
15. K.K. MON, Y.J. CHABAL and A.J. SIEVERS,
Phys. Rev. Lett. 35, 1352 (1975).
16. J. BLANC, D. BROCHIER and A. RIBEYRON,
Phys. Lett. 31A, 483 (1970).
17. W. REESE, J.E. TUCKER,
J. of Chem. Phys. 43, 1, pp. 105 (1965).

18. L. PICHE,
Thèse Docteur-es-Sciences Physiques, L'Université Scientifique et
Médicale, Grenoble (1976).
19. W. REESE,
J. Appl. Phys. 37, 2, 864 (1966).
20. R.E. STRAKNA, A.E. CLARK, D.L. BRADLEY and W.M. SLIE,
J. Appl. Phys. 1963, 34, 1439.
21. P.W. ANDERSON, B.I. HALPERIN et C.M. VARMA,
Phil. Mag. 25, 1 (1972).
22. W.A. PHILLIPS,
J. Low Temp. Phys. 7, 351 (1972).
23. M. von SCHICKFUS, S. HUNKLINGER and L. PICHE,
Phys. Rev. Lett. 35, 876 (1975).
24. M.A. BOSCH,
Phys. Rev. Lett. 40, 13, 879 (1977).
25. E. SCHLOMANN,
Phys. Rev. 135, A413 (1964).

C O N C L U S I O N

C O N C L U S I O N

Les conclusions de l'étude que nous avons faite peuvent se séparer en deux parties, l'une concernant la partie technique, c'est-à-dire la mise au point du spectromètre, l'autre les résultats expérimentaux que nous avons obtenus sur un certain nombre de matériaux amorphes.

A) Mise au point du spectromètre.

Nous disposions au laboratoire d'un spectromètre Grubb-Parsons classique à interféromètre de Michelson dont la limite vers les basses fréquences se situait vers 12 cm^{-1} .

Nous avons mis au point un interféromètre à polariseurs qui a un rendement constant à basse fréquence et bien supérieur au système classique avec lame séparatrice diélectrique. Ce système, ainsi que l'amélioration du filtrage mathématique (apodisation de Connes à la place d'une apodisation linéaire) nous a permis de descendre jusqu'à $7,5 \text{ cm}^{-1}$.

En fait, cette limite n'est pas due au système que nous avons mis au point, mais à la taille du détecteur bolométrique (1 mm^2). Ce problème peut actuellement être résolu car il existe maintenant sur le marché des bolomètres de taille supérieure (40 mm^2) présentant des caractéristiques de sensibilité et de bruit très satisfaisantes. Une étude faite par Mlle DENOYES, élève à l'I.N.P.G., lors d'un stage dans notre laboratoire a été consacrée aux instabilités dues au spectromètre: température de la chambre, course du miroir mobile, longueur du bras optique. Les améliorations qu'elle propose couplées au système interférométrique que nous avons mis au point et à l'augmentation de la taille du bolomètre devraient permettre la mise au point d'un nouveau spectromètre atteignant la région du cm^{-1} .

B) Absorption optique à très basse fréquence dans les matériaux amorphes.

Les mesures du coefficient d'absorption de divers matériaux amorphes (SiO_2 , GeO_2 ; BK7, Se, PMMA) à très basse fréquence (de $7,5 \text{ cm}^{-1}$

à 40 cm^{-1}) et à basse température (4,2 K et 1,2 K) nous permettent de mettre en évidence deux contributions à l'absorption dans cette gamme de fréquences.

1) Une contribution due aux vibrations acoustiques couplées aux ondes électromagnétiques par des défauts de charge distribués aléatoirement, ces défauts pouvant exister intrinséquement ou être induits par les vibrations elles-mêmes, du fait du désordre. Le coefficient de couplage est constant tant que la longueur d'onde des vibrations induites est inférieure à la distance entre les défauts. Pour des longueurs d'onde supérieures, le milieu apparaît de plus en plus homogène et le coefficient de couplage diminue. C'est ce qui explique la diminution de l'absorption par rapport à la loi en k^2 à très basse fréquence. Cette contribution est pratiquement indépendante de la température et les faibles variations que l'on observe peuvent être interprétées comme une variation avec la température du nombre de défauts de charge.

2) Dans la région des très basses fréquences, une contribution due aux "états tunnel" qui varie fortement avec la température. Cette contribution peut s'expliquer par deux mécanismes : d'une part, un processus de résonance, interaction directe entre le rayonnement et des défauts localisés à deux niveaux d'énergie, et d'autre part un processus de relaxation, passage d'un défaut par effet tunnel assisté d'un phonon d'un état d'équilibre à l'autre. Le calcul théorique que nous avons fait sur BK7 montre que la prise en compte de ces deux mécanismes rend bien compte de la variation avec la température de l'absorption dans la gamme des basses fréquences. Notons que ce type d'absorption ne disparaît pas forcément à plus haute fréquence, mais qu'il est masqué par l'absorption due aux vibrations acoustiques qui est beaucoup plus importante.

ANNEXE I

```

1  "BEGIN" "COMMENT"
2  TREATMENT DE UN SPECTRE PLUS UN INTERFEROGRAMME CORREC PARABOLIQUE;
3  "REAL" X, Y, AVERA, AVERB, MOYO, PENT, DEFIL, DMAX, KMIN, KMAX, DIMAX, G, DPAS,
4  COSI, S1, S2, DK, A, IMOY, TAC, ECHELLE, DECALAGE, ESPEC, SIGNAL, MAX, VEC, H,
5  MAXI, BOSE1, BOSE2, BOSE3, BOSE4, TITRE, A1, BOSE5, BOSE6,
6  VEC2, VEC3, INTER, IMOY2, IMOYA, IMOYS,
7  "INTEGER" J, POINTS, BLANCS, NOIRS, J, APDE, NF, H, MMIN, MMAX, DP, TMAX, RE, H, K,
8  JMAX,
9  "PROCEDURE" LINE;
10  FORMAT ("(+D.50"+20, "(I)", "X(2)", "(+)", "/)", " ", BLANCS);
11  "PROCEDURE" LIST(G); "PROCEDURE" Q;
12  Q(X);
13  "PROCEDURE" ERREUR(NF); "INTEGER" NF;
14  "BEGIN"
15  OUTPUT(61, "(+)" ("ERREUR(1)", 30, "/)", " ", NF); "GOTO" Q;
16  "END" ERREUR;
17  INREAL(69, DMAX); INREAL(69, KMIN); INREAL(69, KMAX);
18  INREAL(69, DPAS); INREAL(69, DIMAX); INREAL(69, G); INREAL(69, DECALAGE);
19  OUTREAL(61, DMAX);
20  OUTREAL(61, KMAX);
21  OUTREAL(61, DIMAX); OUTREAL(61, APDE); OUTREAL(61, DPAS);
22  OUTREAL(61, G);
23  DPAS:=DPAS*-4;
24  "IF" DIMAX "LESS" 0 "THEN" ERREUR(01);
25  DK:=1.0/(6.0*DMAX);
26  MMAX:=KMAX/DK;
27  MMIN:=KMIN/DK;
28  MN:=MMAX-MMIN+1;
29  NF:=(DIMAX+DIMAX)/DPAS+20;
30  NM:=(DMAX/DPAS);
31  A:=3.14159265/(3.0*NM);
32  "BEGIN"
33  "INTEGER" "ARRAY" T(/1:NM/);
34  "REAL" "ARRAY" F (/1:NM/), I (/1:NM/);
35  "REAL" "ARRAY" "COSINE" (/1:NM, 1:3/);
36  "ARRAY" TAPE (/1:NM, 1:2/);
37  "ARRAY" TAR (/1:NM, 1:3/);
38  "REAL" "ARRAY" FAC (/1:NM/);
39  "BEGIN"
40  I:=0;
41  LEC:
42  I:=I+1;
43  INREAL(69, DP);
44  "BEGIN"
45  "IF" DP "EQUAL" 0 "THEN" "GOTO" SLEC;
46  T(/I/):=DP;
47  "GOTO" LEC;
48  "IF" DP "NOT EQUAL" 0 "THEN" ERREUR(02);
49  "END";
50  SLEC:
51  I:=I-1;
52  "END";
53  "BEGIN"
54  MAX:=0;
55  "FOR" I:=1 "UNTIL" NM "DO"
56  "IF" T(/I/) "GREATER" MAX "THEN"
57  "BEGIN"
58  MAX:=T(/I/);
59  IMAX:=I;

```

```

60  "END";
61  "END";
62  "FOR" I:=-NM "STEP" 1 "UNTIL" NM "DO"
63  IMOY2:=IMOY2+T(/IMAX+1/);
64  IMOY2:=IMOY2/(2*I+1);
65  OUTREAL(61, IMOY2);
66  OUTPUT(2, "(+0, (0+20)0)0, 20+1);
67  "FOR" I:=-NM "STEP" 1 "UNTIL" NM "DO"
68  "BEGIN"
69  VEC3:=DPAS*(10*3)*I;
70  INTER:=T(/IMAX+1/)-IMOY2;
71  OUTPUT(2, "(+40, 10, (0+20)0)0, VEC3);
72  OUTPUT(2, "(+50, 30, (0+20)0)0, INTER);
73  "END";
74  "IF" IMAX-NM "LESS" 1 "THEN" ERREUR(03);

```

```

73 "END";
74 "IF"IMAX-NN"LESS"1"THEN"ERREUR(03);
75 "IF"IMAX+NN"GREATER"NP"THEN"ERREUR(04);
76 OUTPUT(61,"(##)");
77 OUTREAL(61,IMAX+2); OUTREAL(61,T(/IMAX+2/));
78 OUTREAL(61,IMAX+1); OUTREAL(61,T(/IMAX+1/));
79 OUTREAL(61,IMAX); OUTREAL(61,T(/IMAX/));
80 OUTREAL(61,IMAX-2); OUTREAL(61,T(/IMAX-2/));
81 OUTREAL(61,IMAX-1); OUTREAL(61,T(/IMAX-1/));
82 OUTREAL(61,IMAX); OUTREAL(61,T(/IMAX/));
83 ROSE1:=0;
84 "FCR"i:=-50"STEP"-1"UNTIL"+200"DO"
85 ROSE1:=ROSE1+T(/IMAX+1/);
86 ROSE1:=ROSE1/151;
87 ROSE2:=0;
88 "FCR"i:=+50"STEP"+1"UNTIL"+200"DO"
89 ROSE2:=ROSE2+T(/IMAX+1/);
90 ROSE2:=ROSE2/151;
91 "FCR"i:=-50"STEP"-1"UNTIL"+200"DO"
92 T(/IMAX+1/):=ROSE1;
93 "FCR"i:=+50"STEP"+1"UNTIL"+200"DO"
94 T(/IMAX+1/):=ROSE2;
95 ROSE3:=0;
96 "FCR"i:=-258"STEP"-1"UNTIL"+200"DO"
97 ROSE3:=ROSE3+T(/IMAX+1/);
98 ROSE3:=ROSE3/33;
99 ROSE4:=0;
100 "FCR"i:=+258"STEP"+1"UNTIL"+200"DO"
101 ROSE4:=ROSE4+T(/IMAX+1/);
102 ROSE4:=ROSE4/33;
103 "FCR"i:=-258"STEP"-1"UNTIL"+200"DO"
104 T(/IMAX+1/):=ROSE3;
105 "FCR"i:=+258"STEP"+1"UNTIL"+200"DO"
106 T(/IMAX+1/):=ROSE4;
107 IMAX:=IMAX+1;
108 AVERA:=0;
109 "FCR"i:=NM-5"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
110 AVERA:=AVERA+T(/IMAX+1/);
111 AVERA:=AVERA/12;
112 AVERB:=0;
113 "FCR"i:=-NM+5"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
114 AVERB:=AVERB+T(/IMAX+1/);
115 AVERB:=AVERB/12;
116 MCOY:=(AVERB+AVERA)/2;
117 MCOY:=0;
118 "FCR"i:=-NM"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"

```

Corection: Effacement de pics de interferences.

Corection: de origine

ALGOL-60 VERSION 4.1 LEVEL 09 AT PSE 0446 XXALGOL

```

119 MCOY:=MCOY+T(/IMAX+1/);
120 MCOY:=MCOY/(2*NM+1);
121 DERI:=(3*NM*MCOY-(NM+1)*MCOY)/(2*NM-1);
122 RENT:=3*(MCOY-MCOY)/(1+(2*NM-1));
123 "FCR"i:=0"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
124 INT(/I/):=((T(/IMAX+1/)+T(/IMAX-1/))/2)-DERI*(NM+1);
125 INT(/0/):=INT(/I/)/2;
126 OUTREAL(61,MCOY); OUTREAL(61,INT(/I/));
127 INT(/0/):=INT(/0/)*2;
128 "FCR"i:=0"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
129 INT(/-I/):=INT(/I/);
130 OUTPUT(61,"(##)");
131 "FCR"i:=-NM"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
132 "BEGIN"
133 VFC2:=DPAS*(10**3)*T;
134 TAPE(/I,1/):=VFC2;
135 TAPE(/I,2/):=INT(/I/);
136 "END";
137 OUTPUT(61,"(##)");
138 INT(/0/):=INT(/0/)/2;
139 J:=1;
140 "FCR"i:=NM"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
141 "BEGIN"
142 S1:=INT(/0/);
143 "FCR"i:=1"STEP"+1"UNTIL"+NM"DO"
144 "BEGIN"
145 COSI:=COS(A**i);
146 S1:=S1+COSI*INT(/I/);
147 "END";
148 VEC:=M*DK;
149 "IF"6"NOTEQUAL"0"THEN"
150 SIGNAL:=G*S1/AVERB;

```

Corection: Ligne de base

```

122 PENT:=3*(MOYO-INOY)/(M*(2*M-1));
123 "FOR" I:=0 "STEP" 1 "UNTIL" "MM" "DO"
124 INT(/I/):=(T(/IMAX+I/)+I(/IMAX-I/))/2)-DEPI-PEUT*(I**2);
125 INT(/O/):=INT(/O/)/2;
126 OUTREAL(61,INOY); OUTREAL(61,MOYO);
127 INT(/O/):=INT(/O/)*2;
128 "FOR" I:=0 "STEP" 1 "UNTIL" "MM" "DO"
129 INT(/-I/):=INT(/I/);
130 OUTPUT(61,"(M)");
131 "FOR" I:= -MM "STEP" 1 "UNTIL" "MM" "DO"
132 "BEGIN"
133 VEC2:=DPAS*(10**3)*I;
134 TAPE(/I,1/):=VEC2;
135 TAPE(/I,2/):=INT(/I/);
136 "END";
137 OUTPUT(61,"(M)");
138 INT(/O/):=INT(/O/)/2;
139 J:=1;
140 "FOR" M:=MMIN "STEP" 1 "UNTIL" "M" "DO"
141 "BEGIN"
142 S1:=INT(/O/);
143 "FOR" I:=1 "STEP" 1 "UNTIL" "M" "DO"
144 "BEGIN"
145 CCSI:=CCS(A*M*I);
146 S1:=S1+CCSI*INT(/I/);
147 "END";
148 VEC:=M*DK;
149 "IF" G "NOT EQUAL" 0 "THEN"
150 SIGNAL:=G*S1/AVERE;
151 TAC:=SIGNAL+DECALAGE;
152 ESPEC:=TAC-DECALAGE;
153 "IF" G "EQUAL" 0 "THEN"
154 TAC:=S1+DECALAGE;
155 ESPEC:=TAC-DECALAGE;
156 TAP(/J,1/):=VEC;
157 TAP(/J,2/):=ESPEC;
158 TAP(/J,3/):=TAC;
159 COLPRE(/J,1/):=VEC;
160 COLPRE(/J,2/):=TAC;
161 COLPRE(/J,3/):=ESPEC;
162 POINTS:=J;
163 OUTREAL(61,VEC); OUTREAL(61,ESPEC);
164 OUTPUT(61,"(M)");
165 J:=J+1;
166 "END";
167 "BEGIN"
168 MAXI:=J;
169 "FOR" J:=1 "STEP" 1 "UNTIL" "POINTS" "DO"
170 "IF" TAP(/J,2/) "GREATER" "MAXI" "THEN"
171 "BEGIN"
172 MAXI:=TAP(/J,2/);
173 JMAX:=J;
174 "END";
175 OUTREAL(61,JMAX);
176 "FOR" J:=JMAX "DO"
177 "BEGIN"

```

ALGOL-60 VERSION 4.1 LEVEL 08 AT 05.0449 XXALGOL

```

178 F:=120/TAP(/J,3/);
179 "END";
180 OUTREAL(61,F);
181 OUTPUT(61,"(M)");
182 OUTPUT(61,"(M)");
183 "FOR" J:=1 "STEP" 1 "UNTIL" "POINTS" "DO"
184 "BEGIN"
185 X:=COLPRE(/J,1/);
186 Y:=COLPRE(/J,2/);
187 FLANGS:=ENTIER(F*(X+Y));
188 "IF" "BLANGS" "GREATER" 120 "THEN" "BLANGS":=120;
189 OUTLIST(61,LY(F,LY(7)));
190 "END";
191 "END";
192 PLTAPRAY(7,TAP);
193 PLTAPRAY(10,TAP);
194 "END";
195 CLE:"END";

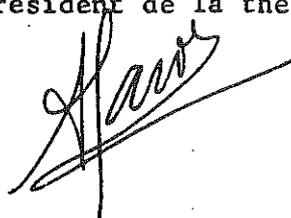
```


Dernière page d'une thèse

VU

Grenoble, le 11-7-78

Le Président de la thèse



Vu, et permis d'imprimer,

Grenoble, le 12 juillet 1978

Le Président de l'Université
Scientifique et Médicale



Dr G. CAU

