



**HAL**  
open science

# OBSERVATION RÉCENTE D'UNE FORME DE BIRÉFRINGENCE DANS CERTAINS CRISTAUX À SYMÉTRIE CUBIQUE THÉORIE ET CONSÉQUENCES PRATIQUES

Luc Dettwiller

► **To cite this version:**

Luc Dettwiller. OBSERVATION RÉCENTE D'UNE FORME DE BIRÉFRINGENCE DANS CERTAINS CRISTAUX À SYMÉTRIE CUBIQUE THÉORIE ET CONSÉQUENCES PRATIQUES. Doctoral. 2005. sfo-00361401

**HAL Id: sfo-00361401**

**<https://hal-sfo.ccsd.cnrs.fr/sfo-00361401v1>**

Submitted on 14 Feb 2009

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

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

## Observation récente d'une forme de biréfringence dans certains cristaux à symétrie cubique

### *Théorie et conséquences pratiques*

par Luc DETTWILLER

Lycée Blaise Pascal - 63037 Clermont-Ferrand Cedex

dettwillerluc@voila.fr

### RÉSUMÉ

*La notion de non-localité pour un diélectrique linéaire est rappelée en détail : elle se traduit par la dépendance de son tenseur susceptibilité électrique ( $\chi_e$ ) en fonction du vecteur d'onde  $\mathbf{K}$ , en plus de sa dépendance classique en fonction de la pulsation  $\omega$  ; et si ( $\chi_e$ ) dépend de la direction de  $\mathbf{K}$ , il apparaît une forme d'anisotropie optique ayant d'autres propriétés que les biréfringences classiques des milieux uniaxes (ou même biaxes). C'est le cas de la fluorine, pour laquelle cette forme d'anisotropie vient d'être décelée dans les objectifs de photo-lithographie ultraviolette utilisés par l'industrie de la microélectronique ! Après avoir précisé une méthode générale de détermination de l'indice d'un tel milieu en fonction de  $\omega$  et de la direction de  $\mathbf{K}$ , nous partons du développement limité de ( $\chi_e$ ) à l'ordre 2 en  $\mathbf{K}$  et nous trouvons une expression analytique de la biréfringence de la fluorine ; puis nous caractérisons sa surface des indices dont nous déterminons les sept axes optiques, et dont nous discutons les propriétés tout en les comparant à celles de la biréfringence classique – ce qui permet de donner quelques pistes générales utilisables pour réduire les effets de cette biréfringence néfaste dans les objectifs mentionnés ci-dessus.*

### INTRODUCTION

Quand on ouvre des traités d'optique ([1-2], [3] p. 678-679, [4] p. 467-470) ou de minéralogie [5-6], dans leur partie consacrée à l'optique cristalline on lit souvent que les cristaux du système cubique (comme par exemple ceux de fluorine<sup>1</sup>  $\text{CaF}_2$ , de  $\text{BaF}_2$ , etc.) sont optiquement isotropes, donc ne présentent pas de biréfringence. Il y a quelques années, c'est donc avec surprise que les utilisateurs d'objectifs en fluorine (prévus pour fonctionner en ultraviolet du vide dans la région de SCHUMANN) ont observé dans les images obtenues des anomalies ne pouvant s'expliquer que par une légère biréfringence de la fluorine ; celle-ci est imperceptible [7] sur les domaines infrarouge et visible, mais augmente pour les composantes spectrales qui s'en écartent dans l'ultraviolet lointain...

Cette découverte a retenti comme un coup de tonnerre dans l'industrie de la microélectronique. En effet, la loi de MOORE selon laquelle la densité d'intégration des circuits double tous les deux ans étant vérifiée depuis juin 1965 [8], on assiste à une course vers une densité toujours croissante pour l'intégration des circuits qui incite l'optique à repousser ses limites technologiques, car la réalisation de ces circuits intégrés miniaturisés passe par une étape de microlithographie par photoréduction très performante (sur une résine photosensible recouvrant un semi-conducteur). Celle-ci utilise des objectifs très sophis-

<sup>1</sup> Selon la recommandation de l'Association internationale de Minéralogie, il faudrait plutôt l'appeler « fluorite ».

tiqués (pour lesquels le calcul des combinaisons optiques a dû être poussé au maximum de ses possibilités) : le plus complexe qu'on ait construit est exempt de toute aberration géométrique sur un champ image de plusieurs centimètres carrés, alors que son ouverture relative est  $D/f \cong 1,9$  pour minimiser la dimension de la tache image de chaque point due à la diffraction [9] ! Toujours pour la même raison, lors de cette microlithographie on utilise une lumière quasi-monochromatique de longueur d'onde  $\lambda_a$  (dans l'air ou le milieu extérieur à l'objectif) la plus petite possible, mais cela restreint le choix des matériaux constituant les lentilles : le verre ordinaire absorbe trop l'ultraviolet pour  $\lambda_a$  inférieur à 350 nm environ, des crowns spéciaux (verre uvio) pour  $\lambda_a < 320$  nm, le quartz et l'air pour  $\lambda_a < 185$  nm ; si on veut atteindre des longueurs d'onde plus faibles, il ne reste guère que LiF, BaF<sub>2</sub>, et la fluorine (qui est transparente jusqu'à 120 nm). Enfin, on sait que la difficulté d'entretenir des inversions de population permettant de provoquer une émission laser continue croît avec sa fréquence ; mais des progrès technologiques ont permis successivement la commercialisation de lasers à exciplexes KrF, ArF ou excimère F<sub>2</sub> [10] émettant respectivement à 248,0 nm, 193,0 nm et 157,63 nm de longueur d'onde (la première obtention de ces raies en laboratoire datant de 1975, 1976 et 1977 respectivement).

Dans la fabrication des lentilles pour l'ultraviolet lointain, le matériau de base est la fluorine synthétique à cause de sa transparence et de sa qualité de fabrication industrielle ; LiF est plus transparent que CaF<sub>2</sub> mais plus difficile à polir et à produire sans inhomogénéités ou contraintes internes résiduelles intolérables, et BaF<sub>2</sub> s'avère moins transparent que CaF<sub>2</sub>. Celui-ci cristallise très simplement dans un système cubique ; or voici que, par l'observation des images obtenues pour  $\lambda_a \cong 158$  nm, on a constaté l'existence d'une double réfraction dans l'objectif ! Tout d'abord, on a cru qu'elle était simplement due à une biréfringence artificielle, provoquée par des contraintes externes exercées sur la fluorine (par exemple à cause du serrage des lentilles dans la monture de l'objectif) ou même d'origine interne au matériau (liées à ses conditions de croissance et de production) ; l'explication de cette biréfringence accidentelle réside naturellement dans la distorsion des mailles du réseau cristallin, qui ne restent plus exactement cubiques sous l'effet des contraintes. On a donc porté une attention particulière à la suppression de ces contraintes ; et on a constaté que cela n'améliorait guère la qualité des images...

Alors, on s'est souvenu que la possibilité d'une biréfringence pour des cristaux à symétrie cubique avait déjà été envisagée par Hendrik LORENTZ en 1878 [11] sur la base de considérations générales de symétrie, avant même de disposer de la connaissance des équations de MAXWELL *dans la matière* : il signalait que l'isotropie optique complète d'un cristal ne peut pas être prédite seulement à partir de sa maille conventionnelle, car on doit aussi considérer son motif, et il prévoyait que si celui-ci est riche en symétries l'anisotropie qui lui est due ne se manifesterait guère aux longueurs d'onde du visible ou plus grandes. Le rôle joué par le motif dans les propriétés optiques est rappelé par le minéralogiste (et ancien secrétaire perpétuel de l'Académie des sciences) DE LAPPARENT, selon la vision classique où, dans le cas d'une maille cubique ayant un motif pauvre en symétries, la biréfringence due à celui-ci rend le milieu biaxe<sup>2</sup> ; mais la fluorine possède un motif à

<sup>2</sup> Dans son traité [12], on lit : « **Désaccord possible entre le caractère optique et la symétrie du réseau** — Ici se place une remarque importante : c'est que le caractère optique d'un cristal est déterminé par sa *particule complexe*, et non par le réseau [...]. Nous avons dit plus haut qu'en raison de la présence de

symétrie cubique, et nous verrons qu'elle a sept axes optiques ! Il s'agit donc d'une nouvelle forme de biréfringence ; LORENTZ avait essayé de la déceler expérimentalement en 1921 dans NaCl, et sa tentative échoua (car ce phénomène est très discret), mais avec raison il ne cessa pas de croire en son existence. Ce nouvel effet est dû à la « dispersion spatiale » en optique (cf. § 1.), dont le rôle avait d'abord été entrevu dans les plasmas où il est plus important ; son étude théorique pour les cristaux a été menée de façon systématique dans les années 1958-84 par AGRANOVICH et GINZBURG [13], et ce thème de recherches reste actif. L'observation expérimentale du rôle de la dispersion spatiale dans les cristaux cubiques non gyrotropes ([13] p. 257-259) a commencé par l'observation – qui est en fait controversée – d'une nouvelle onde (cf. § 2.2.3.) dans l'anthracène auprès d'une bande d'absorption, par BRODIN et PEKAR en 1959 ; elle a continué en 1960 avec la mise en évidence d'une anisotropie d'absorption (dans  $\text{Cu}_2\text{O}$  à 77 K et au voisinage de la transition quadrupolaire électrique à 612,5 nm), puis d'une anisotropie de réfraction en 1971 (avec Si et GaAs dans l'infrarouge proche). Mais comme ces matériaux ne sont guère utilisés en optique, ces phénomènes sont restés méconnus des opticiens lithographistes, jusqu'à leur résurgence toute récente au niveau du monde industriel, gêné dans sa croissance par l'observation inédite de ces effets de double réfraction dans la fluorine ! Après avoir éliminé leur explication par biréfringence de contrainte, on a réussi en 2001 les premières mesures<sup>3</sup> directes de la biréfringence intrinsèque de  $\text{CaF}_2$  et  $\text{BaF}_2$  pour six longueurs d'onde dans l'ultraviolet, et vérifié leur accord approximatif avec les modèles de l'anisotropie par dispersion spatiale [14] ; à 158 nm la valeur de la biréfringence (*i.e.* l'extremum de différence entre les deux indices associés à une direction de propagation, en fonction de celle-ci) est  $-(1,12 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$  pour la fluorine<sup>4</sup>  $\text{CaF}_2$  et  $+(3,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-6}$  pour  $\text{BaF}_2$ .

Or peu après, pour accroître la densité d'intégration des circuits, les spécifications concernant les objectifs de photo-lithographie sont devenues deux fois plus sévères, en demandant que la valeur absolue de la biréfringence (dont on croyait initialement qu'elle ne pouvait être qu'accidentelle avec les matériaux utilisés) ne dépasse pas  $5 \cdot 10^{-8}$  ! Sachant maintenant que la fluorine a une biréfringence intrinsèque, on voit que les objectifs ne peuvent donner une image satisfaisante que moyennant divers systèmes de compensation élaborés (jouant par exemple sur les orientations relatives des cristaux formant les lentilles successives)... Pour l'ingénierie optique visant à calculer précisément les caractéristiques de l'image fournie par ces objectifs et à améliorer sa correction, il est donc fon-

---

certain éléments-limites de symétrie, il arrivait souvent qu'un cristal adoptât un réseau cubique, quand sa particule était seulement quadratique ou même seulement triclinique. [...] Il en résulte qu'un cristal à réseau cubique peut fort bien être biaxe, alors que, d'après la forme de son réseau, accusée par la figure du cristal, on se croirait autorisé à le considérer comme isotrope. Ainsi ce que l'on considérait autrefois comme des *anomalies optiques* s'expliquerait tout naturellement [...] ».

<sup>3</sup> Elles furent réalisées en atmosphère de diazote, pour s'affranchir de la très forte absorption par le dioxygène (dont le titre doit être inférieur à 10 ppm dans cette expérience) ainsi que des artefacts dus à la variation d'indice avec la pression et la température ([16] p. 71) ; SCHUMANN a été le premier à pouvoir explorer le domaine spectral (auquel reste attaché son nom) allant de la limite imposée par l'absorption par l'air et le quartz à celle imposée par l'absorption de la fluorine, en construisant en 1893 un spectrographe à optique de fluorine réglable sous vide.

<sup>4</sup> En 2002 ont été publiées des mesures de l'indice de réfraction (et du coefficient thermo-optique) de la fluorine par la méthode du prisme (au minimum de déviation) poussée à sa précision maximale – l'incertitude sur l'angle du prisme et sur le minimum de déviation étant réduite à  $0,2''$ , celle sur la température à  $0,05$  °C, sur la pression à  $0,1$  hPa, etc. ; alors l'incertitude sur l'indice est comprise entre  $10^{-6}$  et  $2 \cdot 10^{-6}$ , donc elle n'a pas permis de mettre en évidence la biréfringence intrinsèque, que l'article n'évoque pas [7].

damental de maîtriser ce sujet d'optique cristalline moderne [15]. Le but de cet article est d'en présenter les rudiments théoriques.

Afin d'en faciliter la compréhension, nous commencerons par expliquer une des origines physiques essentielles du phénomène de dispersion, en précisant la distinction entre la dispersion « usuelle » (la plus courante et la plus importante) et la dispersion « spatiale » ; cela nécessite un retour aux sources des caractéristiques optiques des matériaux – à savoir leurs relations constitutives – et fera l'objet de notre première partie. Ensuite, nous montrerons comment calculer les deux indices pour une direction donnée du vecteur d'onde dans un milieu obéissant aux relations constitutives en présence de dispersion spatiale, et nous exprimerons ces indices dans le cas des cristaux à symétrie cubique du type de la fluorine. Enfin, nous examinerons la première notion géométrique importante pour décrire leurs propriétés optiques, à savoir la surface des indices ; tandis que pour la biréfringence classique des cristaux les moins symétriques (donc biaxes) cette surface ne montre qu'une direction de propagation donnant l'extremum de différence d'indices, on verra qu'il y en a six pour la biréfringence par dispersion spatiale dans un cristal à symétrie cubique comme la fluorine ! Alors, la connaissance des caractéristiques de cette surface nous permettra d'appréhender quelques-unes des idées générales visant à minimiser l'effet de la biréfringence dans les objectifs.

## 1. LA NON-LOCALITÉ DANS LES RELATIONS CONSTITUTIVES LINÉAIRES

### 1.1. Relation linéaire générale entre la polarisation et le champ électrique dans un milieu homogène

#### 1.1.1. Présentation qualitative

On sait que les propriétés optiques d'un matériau sont déterminées par sa polarisation  $\mathbf{P}$  et son aimantation  $\mathcal{I}$ , dues à un champ électromagnétique  $(\mathbf{E}, \mathbf{B})$  variable dont le spectre est au voisinage du domaine visible. Pour la plupart des matériaux, les propriétés magnétiques du milieu sont négligeables dans ce domaine spectral (sauf au voisinage de quelques rares résonances magnétiques) ; le phénomène que nous décrivons dans cet article ne les faisant pas intervenir, nous admettrons que  $\mathbf{P}$  ne dépend pas du champ d'induction magnétique  $\mathbf{B}$ , et que le champ magnétique  $\mathbf{H}$  est lié à  $\mathbf{B}$  par la même relation que dans le vide :  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ , où  $\mu_0$  désigne la perméabilité magnétique du vide ([16] p. 34-70).

Il est important de comprendre aussi que le phénomène qui nous intéresse ne fait pas intervenir les non-linéarités de la relation entre  $\mathbf{P}$  et le champ électrique  $\mathbf{E}$  (alors nous les négligerons) : il pourrait donc être observé avec des éclaircissements et des distances de propagation ordinaires. Pour simplifier encore, nous supposerons que le milieu considéré est homogène, c'est-à-dire que ses caractéristiques sont indépendantes du point  $M$  considéré (repéré par son vecteur position  $\mathbf{r}$ ).

Dans ce cadre, on pourrait être tenté de supposer qu'à toute date  $t$  la polarisation serait donnée par

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 (\chi_e) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (1)$$

où  $(\chi_e)$  désigne le tenseur (ou la matrice) de susceptibilité électrique du milieu – et s'il était isotrope, ce tenseur se réduirait à un scalaire  $\chi_e$  donc  $\mathbf{P}$  serait toujours parallèle à  $\mathbf{E}$ . Mais de simples considérations de bon sens montrent qu'une telle relation décrit un cas trop idéal, qui ne saura exister réellement – même dans l'approximation linéaire.

D'abord, la relation (1) dirait que « la polarisation suit parfaitement toutes les variations temporelles du champ électrique, aussi rapides soient-elles »... Or on sait bien que ceci n'est physiquement pas possible, que la polarisation à la date  $t$  doit en fait dépendre du champ électrique aux dates  $t' \leq t$ , et que cela produit une non-invariance par renversement du temps pour la propagation des ondes dans ce milieu – donc une partie des phénomènes d'absorption et de dispersion [16].

De même, les entités chimiques du matériau ayant un volume petit mais non nul, et les champs macroscopiques  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{P}$  étant définis par nivellement des champs microscopiques correspondants [17] sur un volume élémentaire représentatif, la polarisation en  $\mathbf{r}$  doit *a priori* dépendre du champ électrique *au voisinage* de  $\mathbf{r}$  : c'est le phénomène de **non-localité** de la relation entre  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{E}$ , qui engendre une autre partie [16] des phénomènes de dispersion – qualifiée de « spatiale » pour la distinguer de la précédente qui est la dispersion usuelle. En posant les équations qui traduisent ces idées, nous pourrions comprendre que la fluorine est un exemple de milieu anisotrope à cause de la **dispersion spatiale** uniquement...

### 1.1.2. Mise en équation ; convolution pour les champs réels

Dans l'approximation linéaire, la relation la plus générale entre les composantes  $E_j$  et  $P_j$  de deux champs en dimension 3 (comme le champ électrique et le champ de polarisation) s'écrit au sens des distributions

$$P_j(\mathbf{r}, t) = \sum_{l=1}^3 \iiint_{\mathbf{R}^3} \int E_l(\mathbf{r}', t') R_j^l(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') d^3\mathbf{r}' dt' \quad (2)$$

quelle que soit la nature de ces deux champs  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{P}$ , mais en admettant que le premier est la cause du second. Cette relation est bien linéaire puisque, si les *champs* électriques  $\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t)$  et  $\mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t)$  produisent les *champs* de polarisation  $\mathbf{P}_1(\mathbf{r}, t)$  et  $\mathbf{P}_2(\mathbf{r}, t)$ , alors la combinaison linéaire  $v_1\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) + v_2\mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t)$  produit  $v_1\mathbf{P}_1(\mathbf{r}, t) + v_2\mathbf{P}_2(\mathbf{r}, t)$  –  $v_1$  et  $v_2$  étant deux constantes scalaires.

Les variables  $\mathbf{r}'$  et  $t'$  semblent jouer le même rôle formel dans (2), mais physiquement leurs influences sont très différentes : en effet, en vertu du principe de causalité et du second postulat d'EINSTEIN (concernant la célérité maximale  $c$  d'une information), on sait que, rigoureusement, la réponse  $R_j^l$  est telle que

$$R_j^l(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = 0 \quad \text{si} \quad c(t - t') < \|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\| ; \quad (3)$$

ceci vient de la dissymétrie sur la variation de  $t$  (mais pas de  $\mathbf{r}$ ), et une telle fonction  $R_j^l$  est dite « **causale** ».

#### Propriétés simplificatrices

- ♦ Si on néglige l'évolution avec le temps des propriétés du milieu – ce qui est toujours bien justifié à l'échelle de temps des phénomènes étudiés – il est dit « **invariant par translation temporelle** » ; alors

$$R_j^l(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = R_j^l(\mathbf{r}; \mathbf{r}', t - t'), \quad (4)$$

*i.e.* la réponse à une impulsion ne change pas de forme avec la date  $t$  de cette impulsion.

- ◆ Par contre, supposer que le milieu est **homogène** est une hypothèse plus forte : elle revient à dire que la réponse **P** à un « pic » de **E** en un point est invariante par déplacement de ce point, soit

$$R_j(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = R_j(\mathbf{r}, t; \mathbf{r} - \mathbf{r}', t') \quad \forall (\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t'). \tag{5}$$

Nous adopterons ces hypothèses ; alors la relation (2) exprimant **P** est une « convolution spatio-temporelle » de **E** par la réponse percuSSIONNELLE spatio-temporelle et matricielle  $(R)(\mathbf{r}, t)$  :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = (R) * \mathbf{E}(\mathbf{r}, t). \tag{6}$$

### Discussion des ordres de grandeur

Les temps caractéristiques des réponses percuSSIONNELLES sont, naturellement, de l'ordre de grandeur des temps caractéristiques des phénomènes (électroniques, nucléaires, atomiques, moléculaires ou ioniques) responsables de la polarisation et de l'aimantation. Or ceux-ci sont, du moins pour certains d'entre eux, de l'ordre des temps caractéristiques des ondes lumineuses ; donc aucune approximation simple n'existe pour dissimuler les effets de la « convolution temporelle », et ils seront primordiaux. Quant aux dimensions caractéristiques,  $a$ , des réponses percuSSIONNELLES, elles sont pratiquement de l'ordre des dimensions des molécules ou des mailles cristallines (ou, dans le cas des métaux, de la longueur de DEBYE de leur plasma – ce qui revient au même dans les conditions usuelles) [13] p. 4, [18] p. 438, [19] ; or les longueurs d'onde  $\lambda$  (dans le milieu) en optique sont environ mille fois plus grandes, donc l'effet de la « convolution spatiale » sera négligeable en première approximation dans le cas des ondes lumineuses. On dit alors que le milieu est **local**, puisque **P** en un point donné ne s'exprime qu'en fonction de **E** au même point :

$$P_j(\mathbf{r}, t) = \sum_{t'=-\infty}^{t+\infty} \int E_j(\mathbf{r}, t') R_j(\mathbf{r}, t; t') dt'. \tag{7}$$

Ici on ne tient plus compte que des valeurs antérieures de **E** au même point – voir (3). Cependant, cette approximation n'est plus fondée pour les champs oscillants sinusoïdalement à une fréquence de résonance du diélectrique, car dans ce cas le rapport  $a/\lambda$  devient beaucoup plus important, surtout parce que l'indice devient grand et que cela diminue  $\lambda$ ...

#### 1.1.3. Approximation des faibles non-localités

En toute rigueur, n'importe quel milieu (linéaire) est non local. Mais comme  $a/\lambda$  est usuellement très petit (de l'ordre de  $10^{-3}$ ), il sera possible – et bien plus simple – de rendre compte de l'influence de la non-uniformité de **E** en considérant son développement limité sur les variables d'espace au moins à l'ordre 2 ; cela permet de proposer pour la composante  $P_j$  de **P** le développement suivant (le rapport de chaque terme au précédent étant *a priori* proportionnel à  $a/\lambda$ ) :

$$P_j \equiv P_j^{(0)} + P_j^{(1)} + P_j^{(2)}. \tag{8}$$

L'équation (7) donne en fait le terme (linéaire) d'ordre zéro en  $a/\lambda$  uniquement,  $P_j^{(0)}$ , et fait intervenir les réponses percuSSIONNELLES temporelles  $R_j^{(0)j}(\mathbf{r}, t; t')$  qui agissent sur les composantes de  $E_j$  au même point.

Le terme linéaire *d'ordre 1* s'exprime à l'aide des dérivées spatiales *premières* des composantes de  $E_j$  au même point, et des réponses percuSSIONNELLES associées

$$P_j^{(1)}(\mathbf{r}, t) = \sum_{l=1}^3 \sum_{m=1}^3 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial E_l}{\partial X_m}(\mathbf{r}, t') S_j^m(\mathbf{r}, t; t') dt', \quad (9)$$

les réponses  $S_j^m$  étant liées aux transitions dipolaires magnétiques ou quadrupolaires électriques [20]. Par ces termes d'ordre impair *peut* s'expliquer l'activité optique : on sait bien qu'elle ne va exister que si certaines symétries font défaut (penser aux règles de PASTEUR...); ces symétries sont justement celles qui annulent les  $S_j^m$ , d'après la théorie des groupes. Mais l'activité optique apparaît aussi comme conséquence de couplages entre les phénomènes électriques et magnétiques dans les relations constitutives – et c'est plutôt ce qui se passe dans le domaine visible, mais pas en rayons X (où l'activité optique vient d'être récemment observée); en tout cas, il n'est pas facile de savoir quelle est la cause de cette activité au niveau des relations constitutives.

Enfin, le terme linéaire *d'ordre 2* en  $a/\lambda$  peut devenir sensible dans l'ultraviolet : ce sont ses effets que nous voulons étudier dans cet article. Pour simplifier, nous ne considérons que les cas où tous les  $P_j^{(1)}$  sont identiquement nuls : c'est ce qui se produit par exemple pour la fluorine.

**Discussion de l'isotropie rigoureuse ou approchée**

On dira que le milieu est diélectrique rigoureusement isotrope en  $M$  si et seulement si la relation associant  $\mathbf{E}$  à  $\mathbf{P}$  commute avec toute rotation des champs (les axes de ces rotations passant par  $M$ ); cela n'implique pas que cette relation commute avec toute symétrie plane, donc un milieu isotrope peut bien être gyrotrope, *i.e.* optiquement actif. Par exemple, si

$$R_j^l(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = \delta_j^l R(\mathbf{r}, t; \|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\|, t') \quad \forall (\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') \quad (10)$$

( $\delta_j^l$  désignant le symbole de KRONECKER), le milieu est isotrope en tout point (donc non biréfringent) mais aussi optiquement inactif, car la relation associant  $\mathbf{E}$  à  $\mathbf{P}$  commute avec toute symétrie plane.

Tel n'est pas le cas de la fluorine : elle est anisotrope rigoureusement, mais isotrope jusqu'à l'ordre 1 en  $a/\lambda$  (car  $R_j^{(0)l}(\mathbf{r}, t; t') = \delta_j^l R^{(0)}(\mathbf{r}, t; t')$  et  $P_j^{(1)} = 0$ , donc la relation associant  $\mathbf{E}$  à  $\mathbf{P}^{(0)} + \mathbf{P}^{(1)}$  commute avec toute rotation des champs); l'anisotropie vient alors de la dispersion spatiale uniquement, dès l'ordre 2 en  $a/\lambda$  dans ce cas (*i.e.* la relation associant  $\mathbf{E}$  à  $\mathbf{P}^{(2)}$  ne commute pas avec toute rotation des champs).

**1.2. Filtrage pour les composantes spectrales ; premières propriétés**

**1.2.1. Cas général**

Les méthodes mathématiques de traitement du signal montrent l'intérêt d'appliquer à la relation (6) une transformation de FOURIER spatio-temporelle : on introduit celle de  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$  définie par

$$\tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{K}, \omega) = \iiint_{\mathbf{R}^3} \int_{\mathbf{R}^4} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t - i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}} d^3\mathbf{r} dt / (\sqrt{2\pi})^4 \quad (11)$$



où  $i^2 = -1$  (on affecte dans cette définition un signe « moins » aux variables spatiales de l'exponentielle, mais un signe « plus » aux variables temporelles, et le contraire pour la transformée de FOURIER inverse) ; on introduit de même la transformée de FOURIER spatio-temporelle de  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  notée  $\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{K}, \omega)$ , et celles de  $R'_j(\mathbf{r}, t)$  notées  $\tilde{R}'_j(\mathbf{K}, \omega)$  – qui sont les éléments du tenseur  $(\tilde{\mathbf{R}})(\mathbf{K}, \omega) \equiv \varepsilon_0(\chi_e)(\mathbf{K}, \omega) / (\sqrt{2\pi})^4$  par définition. Alors, il vient

$$\tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{K}, \omega) = \varepsilon_0(\chi_e)(\mathbf{K}, \omega) \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{K}, \omega) \tag{12}$$

qui est une relation très intéressante à cause de sa simplicité : les amplitudes des composantes spectrales  $\tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{K}, \omega)$  de  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$  sont égales à celles de  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  multipliées par le tenseur  $\varepsilon_0(\chi_e)$  qui dépend de  $\mathbf{K}$  et  $\omega$  – c'est pourquoi on dit qu'une relation de convolution entre deux fonctions (comme  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{E}$ ) est aussi un filtrage,  $\varepsilon_0(\chi_e)(\mathbf{K}, \omega)$  étant la fonction de transfert de  $\mathbf{E}$  à  $\mathbf{P}$  indépendamment de leur nature électromagnétique. La dépendance de  $(\chi_e)$  avec  $\omega$ , qui est un phénomène usuel, fait que les ondes monochromatiques de pulsations différentes se propagent à des vitesses différentes : on retrouve la signification de base de la dispersion, traduite par une relation – par exemple entre  $\omega$  et  $\mathbf{K}$ , qu'on pourra déduire de (14) – qui découle des équations de MAXWELL jointes à la relation constitutive (12) ; mais si on considère pour un milieu non local sa relation constitutive en elle-même (indépendamment des solutions des équations de MAXWELL), la dépendance de  $(\chi_e)$  avec  $\mathbf{K}$  pour  $\omega$  fixé [21] change la relation entre  $\mathbf{K}$  et  $\omega$  pour les solutions des équations de MAXWELL, cette modification donnant lieu aux phénomènes de dispersion spatiale.

Pour toute la suite, au lieu d'utiliser le tenseur  $(\chi_e)$ , il sera plus commode de se servir du tenseur permittivité électrique relative, défini par  $(\varepsilon_r) \equiv (\varepsilon) / \varepsilon_0 \equiv (\mathbf{1}) + (\chi_e)$ , où  $(\mathbf{1})$  désigne le tenseur unité.

### 1.2.2. Cas des faibles non-localités

La transformation de FOURIER appliquée au développement (8) fait que  $(\varepsilon_r)$  se développe aussi en une somme ([13] p. 117-119) :

$$\frac{\varepsilon'_j(\mathbf{K}, \omega)}{\varepsilon_0} \equiv o'_j(\omega) + \sum_{m=1}^3 p_j^m(\omega) iK_m - \sum_{m=1}^3 \sum_{p=1}^3 q_j^{mp}(\omega) K_m K_p ; \tag{13}$$

la parité des différentes fonctions présentes dans cette expression vient du fait que les fonctions  $R'_j$  sont réelles, donc  $\varepsilon'_j(\mathbf{K}, \omega) = \varepsilon_j^*(-\mathbf{K}, -\omega)$ , l'astérisque désignant le complexe conjugué.

#### Propriétés

- ♦ Le théorème de SCHWARZ se traduit ici par  $q_j^{mp} = q_j^{pm}$  évidemment.
- ♦ Le principe de symétrie des coefficients cinétiques ([18] p. 439-440) entraîne  $\varepsilon'_j(\mathbf{K}, \omega) = \varepsilon'_j(-\mathbf{K}, \omega)$  donc  $o'_j = o_j$ ,  $p_j^m = -p_j^m$ ,  $q_j^{mp} = q_j^{mp}$ , etc. ; le milieu est dit non gyrotrope si et seulement si  $(\varepsilon_r)$  est symétrique pour tout  $(\omega, \mathbf{K})$ , donc c'est le cas si et

seulement si les fonctions  $p_j^m$  (ainsi que les autres termes des tenseurs de rang impair de cette famille) sont nulles.

- ◆ Pour un milieu non absorbant, la matrice  $(\varepsilon)$  est hermitienne :  $(\varepsilon) = {}^t(\varepsilon)^*$ ,  $\mathbf{t}$  en indice supérieur gauche désignant la transposée ([16] p. 63-64). Avec la propriété précédente en plus, on en déduit que  $o_j^l$ ,  $p_j^m$  et  $q_j^{mp}$  sont réels.

Remarques

- ◆ Pour un milieu non local, isotrope jusqu'à l'ordre 2 en  $a/\lambda$  inclus ([13] p. 126 et 133), on aurait  $o_j^l(\omega)$ ,  $p_j^m(\omega)$  et  $q_j^{mp}(\omega)$  proportionnels respectivement à  $\delta_j^l$ , au tenseur antisymétrique élémentaire<sup>5</sup>  $\varepsilon_j^{lm}$ , et à  $\delta_j^m \delta_l^p + \frac{\beta(\omega)}{\alpha(\omega)} \delta_j^l \delta_m^p$  – pour le tenseur d'élasticité d'un milieu isotrope, qui est de rang 4 comme  $q_j^{mp}$ , le couple des coefficients de LAMÉ correspond à  $(\alpha/2, \beta)$ .
- ◆ Si en plus le milieu était non absorbant, tous les coefficients de proportionnalité (y compris  $\alpha$  et  $\beta$ ) seraient réels.
- ◆ Dans ce cas, si  $p_j^m \neq 0$ , pour une onde plane monochromatique homogène progressive  $\mathbf{P}^{(1)}$  est colinéaire à  $\Re(i \mathbf{K} \times \mathbf{E})$  dans le milieu isotrope transparent ( $\mathbf{E}$  désignant la représentation complexe de  $\mathbf{E}$ ), donc  $\mathbf{P}$  pourrait être non colinéaire à  $\mathbf{E}$  *a priori* ; mais on trouve aussi que les seules polarisations possibles de ces ondes transverses sont circulaires ([18] p. 433-434), et *a posteriori* on voit que  $\Re(i \mathbf{K} \times \mathbf{E})$ ,  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{P}$  sont colinéaires...
- ◆ Réciproquement, si  $(\chi_e)(\mathbf{K}, \omega)$  était scalaire mais dépendait de la direction de  $\mathbf{K}$  pour un milieu non local, celui-ci serait anisotrope alors que  $\mathbf{P}$  serait toujours parallèle à  $\mathbf{E}$ .
- ◆ Il existe des cristaux (des classes  $C_{3v}$ ,  $C_{4v}$ ,  $C_{3h}$ ,  $D_{3h}$  selon la notation de SCHÖNFLIES) dépourvus de centres de symétrie, mais pour lesquels les termes d'ordre 1 donnés par  $p_j^m$  sont nuls ; leur activité optique vient des termes d'ordre 3 [22].

**2. ONDE PLANE MONOCHROMATIQUE PROGRESSIVE DANS UN MILIEU NON LOCAL ANISOTROPE**

Puisque les relations constitutives sont linéaires, les ondes planes monochromatiques homogènes progressives sont très utiles pour étudier le cas d'une onde réelle, par décomposition en intégrale de FOURIER. Pour toute la suite, nous ne considérerons que leurs représentations complexes, telles qu'elles apparaissent dans cette intégrale ; nous noterons  $\omega$  leur pulsation,  $\mathbf{K} = nK_0\mathbf{u}$  leur vecteur de propagation où  $K_0 \equiv \frac{\omega}{c}$  et  $u^2 = 1$  (14),  $n$  désignant l'indice complexe pour l'onde dans le milieu (la célérité de la lumière dans le vide étant notée  $c$ ).

---

<sup>5</sup> Le tenseur (de rang 3 en dimension 3) antisymétrique élémentaire  $\varepsilon_j^{lm}$  est défini par :  $\varepsilon_j^{lm} = 0$  si au moins deux des trois indices  $j, l, m$  sont égaux, + 1 ou - 1 si  $(j, l, m)$  se déduit de  $(1, 2, 3)$  par permutation paire ou impaire respectivement.

### 2.1. Méthode d'étude

Tous les champs de l'onde que nous considérerons ici sont donc décrits par une expression analogue à celle de son champ électrique :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t + \mathbf{K}\mathbf{r}} ; \tag{15}$$

$\omega$  et  $\mathbf{E}_0$  sont toujours supposés non nuls.

On admet, comme d'habitude, que le milieu est isolant et immobile ; alors la densité de charge libre volumique est constante ; en régime harmonique elle ne peut qu'être nulle, donc

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{D} = 0 \tag{16}$$

où  $\mathbf{D} \equiv \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$  désigne le vecteur induction électrique.

Les équations de MAXWELL-FARADAY et AMPÈRE donnent toujours

$$\mathbf{B} = \frac{\mathbf{K}}{\omega} \times \mathbf{E} \tag{17}$$

$$\mathbf{K} \times \mathbf{B} = -\frac{\omega}{c^2} \frac{\mathbf{D}}{\epsilon_0} \tag{18}$$

donc, pour les ondes envisagées, en tenant compte de (17-18) on obtient

$$-n^2 K_0^2 \mathbf{u} \times (\mathbf{u} \times \mathbf{E}) = K_0^2 (\epsilon_r) \mathbf{E} \tag{19}$$

Quand on cherche à résoudre cette équation pour prédire l'expression de  $\mathbf{K}$  ou  $n$  en fonction des paramètres  $\omega$  et  $\mathbf{u}$ , il ne faut pas oublier que, dans le cas des milieux non locaux, à  $\omega$  fixé ( $\epsilon_r$ ) dépend de  $\mathbf{K}$  et donc de  $n$  : on passe d'abord par l'expression théorique et inobservable donnant  $(\epsilon_r)(\mathbf{K}, \omega)$ , pour prédire ensuite l'expression observable donnant la relation de dispersion  $\omega(\mathbf{K})$ , dont on peut tirer enfin l'expression observable donnant  $(\epsilon_r)(\mathbf{K}) \equiv (\epsilon_r)(\mathbf{K}, \omega(\mathbf{K}))$ .

Si le déterminant de  $(\epsilon_r)$  était nul, l'onde pourrait être *purement* électrique et longitudinale avec  $\mathbf{E} \in \text{Ker}(\epsilon_r)$  et  $n$  nul ou non (le cas  $n \neq 0$  étant possible grâce à l'absence de champ magnétique et à la présence de charges volumiques de polarisation) ; une telle onde est parfois appelée un « plasmon ».

Nous supposons dorénavant  $n \neq 0$  ; alors l'équation ci-dessus est équivalente à la relation fondamentale

$$\frac{1}{n^2} (\epsilon_r) \mathbf{E} + \mathbf{u} \times (\mathbf{u} \times \mathbf{E}) = 0 \tag{20}$$

Le développement de cette relation vectorielle donne un système linéaire homogène de trois équations à trois inconnues  $\underline{E}_x$ ,  $\underline{E}_y$  et  $\underline{E}_z$ . Comme il doit admettre d'autres solutions que la solution triviale qui conduit à  $\mathbf{E} = \mathbf{0}$ , il faut que son déterminant  $\mathcal{D}$  soit nul ; en l'exprimant en fonction de l'inconnue  $1/n^2$  on a

$$\mathcal{D}(1/n^2) = 0 \tag{21}$$

Cette équation régit les valeurs possibles de  $1/n^2$  en fonction de  $\omega$  et de  $\mathbf{u}$ . **Considérons  $\omega$  fixé dorénavant**, et pour un milieu réel précisons une propriété qui concerne sa rela-

tion constitutive en elle-même (cf. § 1.2.1.), indépendamment de la relation de dispersion que l'on trouvera en résolvant les équations de MAXWELL : d'une part les milieux réels sont toujours non locaux – ne serait-ce que très peu – donc  $(\varepsilon_r)$  dépend de l'inconnue  $1/n^2$  puisqu'il dépend de  $\mathbf{K}$ , mais d'autre part on a toujours

$$\lim_{\|\mathbf{K}\| \rightarrow \infty} (\chi_e)(\mathbf{K}, \omega) = (\mathbf{0}) \tag{22}$$

et a fortiori 
$$\frac{1}{n^2}(\varepsilon_r) \left( n \frac{\omega}{c} \mathbf{u}, \omega \right) \rightarrow (\mathbf{0}) \text{ si } \frac{1}{n^2} \rightarrow 0. \tag{23}$$

On voit donc que si on annulait  $1/n^2$ , pour (20) il y aurait une solution avec  $\underline{\mathbf{E}}$  non nul colinéaire à  $\mathbf{u}$ , donc 0 est un zéro de  $\mathcal{D}(1/n^2)$  ; ce résultat jouera un rôle important dans la sélection des solutions physiques.

**2.2. Cas particuliers de référence**

**2.2.1. Cas d'un milieu local isotrope**

Dans un modèle simplifié, suffisant statistiquement pour les phases désordonnées (fluides ordinaires et verres) lorsque les longueurs d'onde ne sont pas trop courtes, on a

$$\frac{\varepsilon'_j(\mathbf{K}, \omega)}{\varepsilon_0} = \varepsilon_r(\omega) \delta'_j \tag{24}$$

d'où 
$$\mathcal{D} = \frac{\varepsilon_r}{n^2} \left( \frac{\varepsilon_r}{n^2} - 1 \right)^2 ; \tag{25}$$

quand  $\varepsilon_r$  est non nul la seule solution de (21) est donc  $n^2 = \varepsilon_r$  et cela donne seulement  $\mathbf{u} \cdot \underline{\mathbf{E}} = 0$  : pour les ondes de la forme donnée par (15) toutes les polarisations sont possibles, à condition qu'elles respectent la transversalité.

**Discussion**

Dans le cas exceptionnel où  $\varepsilon_r = 0$ , on montre que le champ magnétique est toujours nul, mais  $n$  reste indéterminé :

- ♦ pour  $n \neq 0$  le champ électrique est longitudinal (sa vitesse de phase finie est compatible avec  $\varepsilon_r = 0$  grâce à l'absence de champ magnétique et à la présence de charges volumiques de polarisation) ;
- ♦ pour  $n = 0$ , la vitesse de phase est infinie, le champ électrique est uniforme (dire qu'il est longitudinal n'aurait plus d'intérêt puisque  $\mathbf{K} = \mathbf{0}$ ),  $n^2$  redevient égal à  $\varepsilon_r$  et il n'y a pas de charges volumiques.

**2.2.2. Cas d'un milieu local anisotrope**

Dans le cas des milieux biréfringents classiques on considère que  $\varepsilon_j^i$  dépend de  $\omega$  mais pas de  $\mathbf{K}$ , ce qui est conforme à la propriété (23) ; alors d'une part  $\mathcal{D}(1/n^2)$  est un polynôme de degré 3 au plus, ayant d'autre part 0 pour racine en vertu de (23), donc il est de la forme

$$\mathcal{D}\left(\frac{1}{n^2}\right) = \frac{1}{n^2} P_2\left(\frac{1}{n^2}\right) \tag{26}$$

où  $P_2$  est un polynôme du second degré au plus, et les seules valeurs possibles de  $1/n^2$  sont les racines de  $P_2$ . Usuellement il y en a deux distinctes : ce sont celles que l'on peut tirer aussi de l'équation de FRESNEL des normales aux ondes ([4] p. 452). Pour les ondes de la forme donnée par (15) chacune de ces racines ne peut être associée qu'à une polarisation, *a priori* non transverse pour  $\mathbf{E}$ , mais transverse pour  $\mathbf{D}$  (appelée pour celui-ci « ligne neutre ») ; et on sait que, pour une normale aux ondes  $\mathbf{u}$  donnée, les deux lignes neutres sont orthogonales – une démonstration générale de cette propriété sera donnée au paragraphe 3.1.

**Discussion**

Dans le cas exceptionnel où  $\det(\varepsilon_r) = 0$  et  $\mathbf{E} \in \text{Ker}(\varepsilon_r)$ , on montre que le champ magnétique est toujours nul, mais  $n$  reste indéterminé :

- ◆ pour  $n \neq 0$  le champ électrique est longitudinal, il y a des charges volumiques de polarisation ;
- ◆ pour  $n = 0$ , la vitesse de phase est infinie, le champ électrique est uniforme, il n'y a pas de charges volumiques.

**2.2.3. Cas d'un milieu non local isotrope non gyrotrope**

On considère ici des phases désordonnées dépourvues d'activité optique et on veut rendre compte finement de leur dispersion dans l'ultraviolet lointain. En partant des conclusions du paragraphe 1.2.2., on pose  $\sigma_j^i(\omega) \equiv n_0^2(\omega) \delta_j^i$  dans ce cas<sup>6</sup>, et le développement de  $(\varepsilon_r)$  à l'ordre 2 en  $\mathbf{K}$  donne (cf. note 6) ([13] p. 126 et 133)

$$\boxed{(\varepsilon_r)(\mathbf{K}, \omega) \cong n_0^2(\omega) (\mathbf{1}) - \alpha(\omega) (\mathbf{K}) \mathbf{t}(\mathbf{K}) - \beta(\omega) \mathbf{K}^2 (\mathbf{1})} \tag{27}$$

où  $(\mathbf{K})$  désigne la matrice unicolonne ayant pour coefficients les composantes du vecteur  $\mathbf{K}$  dans une base orthonormée. L'isotropie statistique (cf. note 6) d'un tel milieu est évidente, puisque les matrices  $\mathbf{K}^2 (\mathbf{1})$  et  $(\mathbf{K}) \mathbf{t}(\mathbf{K})$  sont invariantes par changement de base orthonormée – et donc l'application qui à  $\mathbf{E}$  associe  $\mathbf{D}$  commute avec toute rotation, mais aussi avec toute symétrie (et c'est pourquoi le milieu n'est pas gyrotrope).

---

<sup>6</sup> au moins en ce qui concerne la moyenne statistique de  $(\varepsilon_r)$  ; bien entendu, dans un fluide ordinaire l'ordre local fluctuant est responsable d'écart à cette moyenne – et la variance de  $(\varepsilon_r)$  dépend du corps considéré – mais les effets du caractère matriciel de ces écarts seraient très difficiles à observer.

Compte tenu de (27) l'équation (20) devient alors

$$\left( \frac{n_0^2 - \beta \mathbf{K}^2}{n^2} - 1 \right) \underline{\mathbf{E}} + \left( 1 - \frac{\alpha \mathbf{K}^2}{n^2} \right) (\mathbf{u} \cdot \underline{\mathbf{E}}) \mathbf{u} = 0 \quad (28)$$

(nous avons mis ici un signe = au lieu de  $\cong$  pour que le rôle des approximations ultérieures soit mieux visible).

Le déterminant qui en découle se calcule facilement en posant

$$X \equiv \frac{n_0^2}{n^2} - \beta K_0^2 - 1 \text{ et } C \equiv 1 - \alpha K_0^2 ; \quad (29)$$

à l'aide des cosinus directeurs  $u_1, u_2$  et  $u_3$  de  $\mathbf{K} = nK_0\mathbf{u}$  on vérifie facilement qu'il s'écrit

$$\mathcal{D} = \begin{vmatrix} X + C u_1^2 & C u_1 u_2 & C u_1 u_3 \\ C u_2 u_1 & X + C u_2^2 & C u_2 u_3 \\ C u_3 u_1 & C u_3 u_2 & X + C u_3^2 \end{vmatrix} = X^2 (X + C) \quad (30)$$

indépendamment de  $\mathbf{u}$  car  $u_1^2 + u_2^2 + u_3^2 = 1$ . Puisque  $C$  ne dépend pas de l'inconnue  $1/n^2$ , on doit chercher les racines pour  $X$ ; et comme

$$X + C = \frac{n_0^2}{n^2} - (\alpha + \beta) K_0^2 = \frac{n_0^2 - (\alpha + \beta) \mathbf{K}^2}{n^2} \quad (31)$$

on sait qu'usuellement il est non nul. Dans ce cas, la seule solution de (21) est donc telle que  $X$  soit nul, d'où

$$n^2 = n_0^2 - \beta \mathbf{K}^2 = n_i^2 \text{ avec } n_i^2 \equiv \frac{n_0^2}{1 + \beta K_0^2}, \quad (32)$$

et en reportant ce résultat dans (28) on obtient  $\mathbf{u} \cdot \underline{\mathbf{E}} = 0$ ; ici tous les vecteurs normaux à  $\mathbf{u}$  sont des vecteurs propres de  $(\varepsilon_r)$  associés à la valeur propre  $n_i^2$ , et la non-localité n'affecte pas les propriétés des polarisations des ondes dans ce milieu isotrope, car ce sont les mêmes que pour le milieu local (§ 2.2.1.) quand  $\varepsilon_r$  est non nul. Comme l'expression (27) n'est qu'une approximation valable pour le cas des non-localités faibles et isotropes (au moins jusqu'à l'ordre 2 en  $a/\lambda$ ), on a  $\beta K_0^2 \ll 1$  et on peut se contenter du résultat approché

$$n_i \cong n_0 \left( 1 - \frac{\beta K_0^2}{2} \right). \quad (33)$$

*Remarque* : Notons que 0 n'est pas une racine de l'expression approchée de  $\mathcal{D}(1/n^2)$ ; cela vient du fait que l'expression (27) utilisée pour  $(\varepsilon_r)(\mathbf{K}, \omega)$  n'est que la partie principale du développement limité à l'ordre 2 pour  $\mathbf{K}$  au voisinage de  $\mathbf{0}$ , donc il n'est pas surprenant qu'elle ne satisfasse pas la condition (23)...

### Discussion

L'équation de MAXWELL-AMPERE donne

$$\mathbf{K} \times \underline{\mathbf{B}} = -\frac{\omega}{c^2} \left[ (n_0^2 - \beta \mathbf{K}^2) \underline{\mathbf{E}} - \alpha (\mathbf{K} \cdot \underline{\mathbf{E}}) \mathbf{K} \right]. \quad (34)$$

Dans le cas exceptionnel où  $n_0^2 - (\alpha + \beta) \mathbf{K}^2 = 0$ , i.e.  $n^2 = \frac{n_0^2}{(\alpha + \beta) K_0^2}$ , en remplaçant  $n_0^2 - \beta \mathbf{K}^2$  par  $\alpha \mathbf{K}^2$  puis en utilisant l'équation (17) on obtient

$$\mathbf{K} \times \mathbf{B} = -\frac{\omega}{c^2} \alpha [\mathbf{K}^2 \mathbf{E} - (\mathbf{K} \cdot \mathbf{E}) \mathbf{K}] = \frac{\omega}{c^2} \alpha \mathbf{K} \times (\mathbf{K} \times \mathbf{E}) = K_0^2 \alpha \mathbf{K} \times \mathbf{B} ; \quad (35)$$

- ♦ si  $1 - \alpha K_0^2 \neq 0$ , on en déduit que  $\mathbf{K} \times \mathbf{B} = \mathbf{0}$ , mais comme on a aussi  $\mathbf{K} \cdot \mathbf{B} = 0$ , si  $n_0 \neq 0$  l'onde est purement électrique longitudinale et il y a des charges volumiques de polarisation ;
- ♦ si  $1 - \alpha K_0^2 = 0$  ou  $n_0 = 0$ , alors  $\mathbf{E}$  peut être de direction quelconque par rapport à  $\mathbf{K}$ ,  $n$  redevient égal à  $n_i$  et  $\mathbf{B}$  est relié à  $\mathbf{E}$  par (17) – celui-là étant, si  $n_0 = 0$ , identiquement nul ainsi que les charges de polarisation (car  $\mathbf{E}$  est uniforme).

« Nouvelle onde » au voisinage d'une résonance

Au voisinage d'une résonance **dipolaire électrique**, l'expression approximative issue de (13) n'est plus valable ; on peut montrer qu'un développement du tenseur d'« imperméabilité électrique relative »  $(\eta_r) \equiv (\epsilon_r)^{-1}$  est alors une meilleure approximation, et dans le cas d'un milieu isotrope non gyrotrope on a

$$\boxed{(\eta_r)(\mathbf{K}, \omega) \cong N_0^{-2}(\omega) (\mathbf{1}) - A(\omega) (\mathbf{K}) (\mathbf{K}) - B(\omega) \mathbf{K}^2 (\mathbf{1})} \quad (36)$$

où  $N_0$  devient très grand à la résonance, mais pas  $A$  ni  $B$  a priori.

En nous limitant d'office au cas des ondes transversales pour  $\mathbf{E}$  (donc non plasmoniques), qui existent car tous les vecteurs normaux à  $\mathbf{u}$  sont des vecteurs propres de  $(\epsilon_r)$ , l'équation (20) devient

$$(\eta_r) \mathbf{E} = n^{-2} \mathbf{E} \quad (37)$$

et donc 
$$N_0^{-2} - B n^2 K_0^2 = n^{-2} \quad (38)$$

d'où une équation du second degré en  $n^2$  de discriminant  $\Delta$  (positif loin de la résonance) [13] p. 150-152 ; pour une pulsation donnée, et pour toute polarisation transversale, il existe donc deux indices. Dans le cas classique où l'une des racines  $n^2$  est environ  $N_0^2$ , il existe donc une autre racine de module beaucoup plus grand et voisine de  $1/BK_0^2 N_0^2$  ; en mesurant les deux indices  $n$  correspondants on peut donc en déduire  $N_0$  et  $B$ .

Considérons le cas où  $N_0^2$  est réel positif, et  $B$  réel :

- ♦ si  $B < 0$  les indices sont réel pour l'un, imaginaire pur pour l'autre (l'onde correspondante progressive est donc évanescente et ne propage pas d'énergie en moyenne) ;
- ♦ si  $B > 0$  et  $\Delta < 0$  les indices sont complexes, les ondes correspondantes sont donc toutes amorties (il apparaît une dissipation d'énergie, car  $\mathbf{K}^2 = n^2 K_0^2$  devient complexe et donc  $(\eta_r)$  aussi) ;
- ♦ si  $B > 0$  et  $\Delta > 0$  les indices sont réels, alors dans ce cas la **nouvelle onde** (correspondant ici à l'indice le plus grand) devrait être plus facilement détectable, surtout au

voisinage de la résonance où  $\Delta$  peut s'annuler et les deux indices devenir donc proches.

Il peut aussi exister une nouvelle onde **au voisinage d'une résonance quadrupolaire électrique**, car dans ce domaine  $\beta$  dépend de  $\omega$  et de  $\mathbf{K}$  ([13] p. 185-187). La première observation de ces « nouvelles ondes » serait due à BRODIN en 1959, mais l'interprétation de ses résultats est controversée.

### 2.3. Cas d'un cristal du type de la fluorine

Le système cristallin de la fluorine peut être décrit de la façon suivante : les cations forment un réseau cubique F, et les anions occupent tous ses sites tétraédriques. Pour un cristal ayant une maille cubique et un motif à symétrie cubique (donc comme la fluorine par exemple), le tenseur  $\epsilon_j^i$  est forcément scalaire,  $p_j^{lm}$  est nul et beaucoup de termes du tenseur  $q_j^{lmp}$  sont nuls – sa différence par rapport au cas isotrope étant décrite par un seul paramètre. Dans une base orthonormée dont les vecteurs sont parallèles aux arêtes de la maille conventionnelle cubique, les termes du tenseur permittivité électrique relative s'écrivent alors

$$\frac{\epsilon_j^i(\mathbf{K}, \omega)}{\epsilon_0} = n_0^2(\omega)\delta_j^i - \alpha(\omega)K_j K_i - [\beta(\omega)\mathbf{K}^2 + \gamma(\omega)K_j K_i] \delta_j^i \quad (39)$$

Une telle relation est valable<sup>7</sup> ([13] p. 126 et 133) pour les cristaux des classes  $T_d$  et  $O_h$  (celle de la fluorine est  $O_h^5$ ). La comparaison avec la relation (27) montre immédiatement que  $\gamma$  mérite d'être appelé le « coefficient d'anisotropie » ; il ne présente de vraies résonances (ainsi que  $\alpha$  et  $\beta$ ) que pour les transitions quadrupolaires électriques (étudiées dans [13] p. 171-185). Par contre  $n_0^2$  prend des valeurs très fortes (et complexes) au voisinage des résonances dipolaires électriques uniquement ([13] p. 167 et 339).

Comme le milieu est supposé magnétiquement isotrope depuis le début, la structure d'une onde plane monochromatique progressive est la même que celle qu'on aurait dans un milieu biréfringent classique, car elle est indépendante de la nature de l'anisotropie diélectrique :  $\mathbf{E} \cdot \mathbf{R} = 0$ , et pour une onde homogène dans un milieu transparent les vecteurs réels  $\mathbf{u}$ ,  $\mathbf{D}$ ,  $\mathbf{E}$  et le vecteur de POYNTING  $\mathbf{R}$  sont coplanaires,  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$  étant normal aux vecteurs précédents.

#### 2.3.1. Équation des normales aux ondes

On vérifie aisément que

$$\mathcal{D} = \begin{vmatrix} X + (C - \gamma K_0^2) u_1^2 & C u_1 u_2 & C u_1 u_3 \\ C u_2 u_1 & X + (C - \gamma K_0^2) u_2^2 & C u_2 u_3 \\ C u_3 u_1 & C u_3 u_2 & X + (C - \gamma K_0^2) u_3^2 \end{vmatrix} \quad (40)$$

<sup>7</sup> Cela vient de la structure du tenseur  $q_j^{lmp}$ , qui dépend des symétries du cristal ; pour les cristaux de classe  $O$ ,  $q_j^{lmp}$  a la même structure que pour ceux des classes  $T_d$  et  $O_h$ , mais ceux-là sont en plus gyrotropes donc leur tenseur  $p_j^{lm}$  n'est pas nul.



Pour calculer facilement ce déterminant, il suffit de reprendre le calcul mené au paragraphe 2.2.3., en rajoutant les termes dus au coefficient d'anisotropie  $\gamma$ ; on pose

$$T \equiv u_1^2 u_2^2 + u_1^2 u_3^2 + u_2^2 u_3^2 \quad \text{et} \quad P \equiv u_1^2 u_2^2 u_3^2 \quad (41)$$

et ainsi on trouve

$$\mathcal{D} = X^2(X + C) - \gamma K_0^2 [X^2 + (2C - \gamma K_0^2)T - \gamma K_0^2(3C - \gamma K_0^2)P]. \quad (42)$$

L'équation traduisant la nullité de  $\mathcal{D}$  doit être équivalente à l'« équation des normales aux ondes », que l'on peut aussi trouver en remarquant que la composante numéro  $j$  de la relation (19) donne

$$\begin{aligned} n^2 [E_j - (\mathbf{u} \cdot \mathbf{E}) u_j] &= \frac{1}{\epsilon_0} \sum_{i=1}^3 \epsilon_j^i E_i \\ &= n_0^2 E_j - \alpha K_j (\mathbf{K} \cdot \mathbf{E}) - \gamma K_j^2 E_j \end{aligned} \quad (43)$$

et donc

$$E_j = (\mathbf{u} \cdot \mathbf{E}) \frac{n^2 - \alpha n^2 K_0^2}{n^2 - n_0^2 + \gamma n^2 K_0^2 u_j^2} u_j \quad (44)$$

sous réserve que les dénominateurs ne soient pas nuls. En multipliant membre à membre par  $u_j$  et en sommant de  $j = 1$  à 3, on obtient – sauf dans les cas particuliers où  $\mathbf{u} \cdot \mathbf{E} = 0$  et qui sont rares pour un milieu anisotrope :

$$1 = \sum_{j=1}^3 \frac{n^2 (1 - \alpha K_0^2)}{n^2 (1 + \gamma K_0^2 u_j^2) - n_0^2} u_j^2 \quad (45)$$

Comme  $\mathbf{u}^2 = \sum_{j=1}^3 u_j^2 = 1$ , en remplaçant 1 par cette expression et en regroupant tous les termes dans le même membre, on obtient l'équation des normales aux ondes (dont on peut vérifier qu'elle est en effet équivalente à l'équation (21) lorsque ses dénominateurs et l'indice ne sont pas nuls) :

$$\sum_{j=1}^3 \frac{n^2 K_0^2 (\alpha + \gamma u_j^2) - n_0^2}{n^2 (1 + \gamma K_0^2 u_j^2) - n_0^2} u_j^2 = 0 \quad (46)$$

Les équations régissant les inconnues  $1/n^2$  sont encore du troisième degré comme au paragraphe 2.2.3. ; l'anisotropie modifie les coefficients des termes d'ordre 2, 1 et 0. Il serait donc très lourd d'exprimer analytiquement les trois racines  $1/n^2$  et de bien montrer laquelle doit être physiquement rejetée, car c'est un artefact dû aux approximations de (39) faisant que l'expression (42) de  $\mathcal{D}$  ne s'annule pas en même temps que  $1/n^2$ . Par la suite, nous nous contenterons d'une expression approximative des petits écarts des racines avec celles du cas isotrope (cf. § 2.2.3.), ce qui aura l'avantage d'éliminer automatiquement la racine non physique.

### 2.3.2. Expression des deux indices à l'ordre 1 en $\gamma$

Nous excluons dorénavant le cas exceptionnel où  $X + C$  serait nul. Alors dans le cas isotrope il n'y avait pour l'inconnue  $X$  qu'une seule racine (double) :  $X_j = 0$ , d'où la valeur de l'indice unique  $n_i$  donné par (32). Puisque notre méthode nous restreint à l'étude des faibles non-localités, l'anisotropie qui en résulte doit être faible aussi, et on peut se contenter

d'expressions approximatives de la différence entre  $n$  et  $n_i$ . On pose alors  $X \equiv X_i + x = x$ , et on développe à l'ordre total 2 en  $x$  et  $\gamma$  la relation (42) de l'équation (21) ; il vient une équation du second degré en  $x$ ,

$$C \left[ x^2 - 2\gamma K_0^2 T x + 3(\gamma K_0^2)^2 P \right] \cong 0, \tag{47}$$

dont le discriminant est positif (cf. annexe 1) et qui a pour racines

$$x' \cong \gamma K_0^2 \left[ T + \sqrt{T^2 - 3P} \right] \text{ et } x'' \cong \gamma K_0^2 \left[ T - \sqrt{T^2 - 3P} \right]. \tag{48}$$

On en déduit que 
$$\frac{n_0^2}{n'^2} - \beta K_0^2 - 1 \cong \gamma K_0^2 \left[ T + \sqrt{T^2 - 3P} \right] \tag{49}$$

d'où, compte tenu de la petitesse de  $\beta$  et  $\gamma$  devant  $1/K_0^2$ ,

$$\boxed{n' \cong n_i - \gamma K_0^2 n_0 \frac{T + \sqrt{T^2 - 3P}}{2}} \text{ et de même } \boxed{n'' \cong n_i - \gamma K_0^2 n_0 \frac{T - \sqrt{T^2 - 3P}}{2}}. \tag{50}$$

*Remarque* : Comme  $C$  (qui dépend de  $\alpha$ ) a pu être factorisé grâce à l'approximation conduisant à (47), nos expressions approchées des racines (48) ne dépendent pas de  $\alpha$ .

### 3. COMPARAISON ENTRE LA BIRÉFRINGENCE CLASSIQUE ET CELLE DE LA FLUORINE

Les résultats ci-dessus montrent que l'anisotropie de la fluorine (à l'ordre 2 en  $a/\lambda$ ) provoque une séparation des deux indices et donc une forme de biréfringence, comme dans l'anisotropie classique. Mais les propriétés de ces deux types d'anisotropie présentent des différences notables ! Nous allons maintenant discuter les propriétés de la biréfringence de la fluorine, tout en les comparant à celles de la biréfringence classique.

#### 3.1. Orthogonalité des lignes neutres pour une onde homogène dans un milieu non absorbant

Puisque pour tout vecteur  $\mathbf{V}$  en dimension 3 sa partie perpendiculaire à  $\mathbf{u}$  réel s'écrit  $\mathbf{V}_\perp = -\mathbf{u} \times (\mathbf{u} \times \mathbf{V})$ , l'équation (19) peut se mettre sous une forme très condensée :

$$\boxed{n^2 \mathbf{E}_\perp = (\varepsilon_r) \mathbf{E}} \tag{51}$$

On voit que  $\mathbf{D}$  est colinéaire à  $\mathbf{E}_\perp$ , mais pas à  $\mathbf{E}$  en général ; d'après la structure de l'onde  $\mathbf{u} \cdot \mathbf{E}$  est nul si et seulement si  $\mathbf{E}$  est un vecteur propre de  $(\varepsilon_r)$ . De (51) on déduit

$$\boxed{[(\eta_r) \mathbf{D}]_\perp = n^{-2} \mathbf{D}} \tag{52}$$

On sait que, contrairement à  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{D}$  est normal à  $\mathbf{u}$  (en vertu de la relation (16)) ; donc pour exprimer la relation ci-dessus il suffit de considérer la restriction-projection  $(\eta_r)_\perp$  de  $(\eta_r)$  sur le sous-espace normal à  $\mathbf{u}$ , et on a :

$$\boxed{(\eta_r)_\perp \mathbf{D} = n^{-2} \mathbf{D}} \tag{53}$$

donc les lignes neutres sont colinéaires aux vecteurs propres de  $(\eta_r)_\perp$ . Dans le cas où le milieu est non absorbant, cette matrice est hermitienne, donc elle est diagonalisable dans une base orthonormée ; alors les lignes neutres sont des polarisations orthogonales. Et si

en plus le milieu est non gyrotrope,  $(\eta_r)_\perp$  est symétrique réelle, donc les lignes neutres sont des polarisations rectilignes orthogonales – que le milieu biréfringent soit local ou non.

### Conséquence

Si un vecteur propre de  $(\varepsilon_r)$  est perpendiculaire à  $\mathbf{u}$ , alors c'est aussi un vecteur propre de  $(\eta_r)_\perp$ , donc c'est une ligne neutre pour  $\mathbf{u}$  d'indice égal à une racine carrée de la valeur propre correspondante de  $(\varepsilon_r)$  – on l'a déjà vu au § 2.2.3. et on le reverra au § 3.3.2. – la dégénérescence de celle-ci pour  $(\varepsilon_r)$  pouvant être plus petite que pour  $(\eta_r)_\perp$ .

### 3.2. Étude de la différence des indices pour une onde homogène : recherche des axes optiques, caractérisation de la biréfringence

Pour une normale aux ondes  $\mathbf{u}$  donnée, la différence des deux indices est

$$n' - n'' \cong -\gamma K_0^2 n_0 \sqrt{(u_1^2 u_2^2 + u_1^2 u_3^2 + u_2^2 u_3^2)^2 - 3u_1^2 u_2^2 u_3^2} \quad (54)$$

L'étude de  $n' - n''$  en fonction de  $\mathbf{u}$ , dont on détermine la direction par rapport à la maille cubique conventionnelle de la fluorine, montre que :

- ♦  $n' - n''$  est nul seulement pour  $\mathbf{u}$  parallèle à l'une des trois arêtes du cube (alors  $T = P = 0$ ) ou bien de ses quatre diagonales ( $T = 1/3$  et  $P = 1/27$ ), donc il y a sept axes optiques (cf. annexe 1) ;
- ♦  $n' - n''$  (ou son module si  $\gamma n_0$  est complexe) est extrémal seulement pour  $\mathbf{u}$  parallèle à l'une des six directions des diagonales des faces du cube (cf. annexe 2), pour lesquelles il prend la même valeur  $b \equiv -\gamma K_0^2 n_0 / 4$  (ou son module) appelée « **biréfringence** » de ce type de cristal – à l'ordre 1 en  $\gamma$ . Dans ce cas  $T = 1/4$ ,  $P = 0$ , et moyennant une permutation judicieuse des vecteurs de la base orthonormée choisie

au début du paragraphe 2.3., on peut toujours poser  $\mathbf{u} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$  ; le calcul rigoureux

montre que les deux indices sont tels que  $n'^2 = \frac{n_0^2}{1 + \left(\beta + \frac{\gamma}{2}\right) K_0^2}$  et  $n''^2 = n_1^2$ , corres-

pondant à  $\underline{\mathbf{E}}$  parallèle à  $\begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$  et à  $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$  respectivement<sup>8</sup>. C'est la différence entre ces

deux indices qui a été mesurée en 2001 (cf. tableau 1).

<sup>8</sup> On obtient d'abord le déterminant  $\mathcal{D} = X \left[ X^2 + (C - \gamma K_0^2) X - \gamma (2C - \gamma K_0^2) / 4 \right]$  dont les racines sont  $X = 0$ ,  $X = \gamma K_0^2 / 2$  et  $X = -C + \frac{\gamma K_0^2}{2}$ , puis en remplaçant  $X$  par ces valeurs dans (20) on trouve qu'elles

$\lambda_a / \text{nm}$	$10^6 b$ (pour $\text{CaF}_2$ )	$10^3 b \times \lambda_0^2 / \text{nm}^2$ (pour $\text{CaF}_2$ )	$10^6 b$ (pour $\text{BaF}_2$ )	$10^3 b \times \lambda_0^2 / \text{nm}^2$ (pour $\text{BaF}_2$ )
365,06	$0,019 \pm 0,004$	$2,5 \pm 0,5$	$0,40 \pm 0,06$	$53 \pm 8$
253,65	$-0,055 \pm 0,007$	$-3,5 \pm 0,5$	$0,95 \pm 0,11$	$61 \pm 7$
193,09	$-0,34 \pm 0,02$	$-12,7 \pm 0,7$	$1,9 \pm 0,2$	$71 \pm 7$
175,19	$-0,57 \pm 0,03$	$-17,5 \pm 0,9$	$2,5 \pm 0,2$	$77 \pm 6$
165,72	$-0,83 \pm 0,04$	$-22,8 \pm 1$	$2,9 \pm 0,2$	$80 \pm 5$
156,10	$-1,18 \pm 0,04$	$-28,8 \pm 1$	$3,4 \pm 0,3$	$83 \pm 7$

**Tableau 1 :** Moyennes, sur plusieurs échantillons de fluorine et de  $\text{BaF}_2$ , des valeurs de la biréfringence  $b$  tirées de [14] pour différentes longueurs d'onde  $\lambda_a$  dans l'air ; étude de la dispersion de  $\gamma n_0 = -b \lambda_0^2 / \pi^2$ .

Ce tableau montre que la variation de  $\gamma n_0$  avec  $\omega$  a des effets inférieurs aux erreurs de mesure pour  $\text{BaF}_2$  de 156 à 193 nm (où  $\gamma n_0$  est négatif), mais pas pour  $\text{CaF}_2$  (les mesures étant plus précises) où  $\gamma n_0$  est positif – d'ailleurs  $\gamma$  change de signe pour  $\text{CaF}_2$  entre 253 et 365 nm. Pour étudier la dispersion de  $\gamma$  dans le cas de la fluorine, nous avons estimé les valeurs de  $n_0$  à partir des données de [7], et nous avons calculé  $\gamma$  à partir des valeurs du tableau 1 ; les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau 2.

$\lambda_a / \text{nm}$	$n_0$	$10^3 \gamma / \text{nm}^2$
365,06	1,4449	$-0,18 \pm 0,04$
253,65	1,4661	$0,24 \pm 0,03$
193,09	1,5018	$0,86 \pm 0,05$
175,19	1,5239	$1,16 \pm 0,06$
165,72	1,5404	$1,50 \pm 0,07$
156,10	1,5630	$1,86 \pm 0,06$

**Tableau 2 :** Valeurs approximatives de  $n_0$  et  $\gamma$  pour la fluorine à différentes longueurs d'onde  $\lambda_a$ .

---

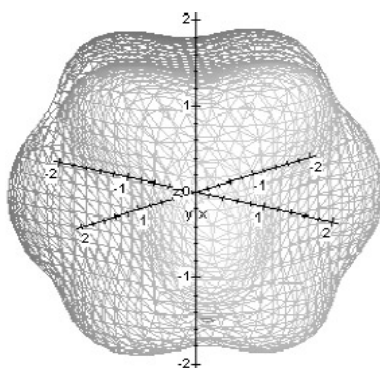
imposent  $\underline{\mathbf{E}}$  parallèle à  $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ , à  $\begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$  et à  $\underline{\mathbf{u}}$  respectivement ; la première racine donne  $n = n''$ , la deuxième  $n = n'$  (on doit exclure la troisième qui est un artefact – cf. § 2.3.1. – donnant un indice différent de  $n_i$  si  $\gamma$  est nul et en plus  $\underline{\mathbf{B}} = n \frac{\underline{\mathbf{u}}}{c} \times \underline{\mathbf{E}} = \mathbf{0}$  !).

### 3.3. Forme de la surface des indices

#### 3.3.1. Généralités

Cette surface est, pour une pulsation  $\omega$  fixée, l'indicatrice de la (ou des) valeur(s) de l'indice de réfraction (i.e. la partie réelle  $\Re n$  de l'indice complexe  $n$ ) en fonction de la direction de la normale  $\mathbf{u}$  pour une onde homogène : c'est le lieu des points  $M$  de vecteur position  $\mathbf{OM} = (\Re n(\mathbf{u}, \omega)) \mathbf{u}$  ; s'il y a deux valeurs de l'indice (une par ligne neutre) cette surface a deux nappes. Cette représentation géométrique est très utile : d'une part, on sait depuis longtemps ([3] p. 684-686) qu'elle permet de déterminer géométriquement les *normales* aux ondes homogènes réfractées dans tout milieu linéaire transparent (en fonction de la normale à l'onde homogène incidente) par la construction de DESCARTES, mais aussi, dans un milieu qui en plus est local, les *rayons* réfractés (car ils sont perpendiculaires à la surface des indices au point donnant les normales aux ondes réfractées) ; très récemment, nous avons démontré [23] que les propriétés de courbure de cette surface permettent de déterminer quantitativement l'évolution de l'étalement et de l'orientation d'un paquet d'ondes tridimensionnel se propageant dans un tel milieu linéaire local anisotrope transparent – ce qui est important pour la compréhension des propriétés de certains commutateurs optoélectroniques à fibres biréfringentes, ou des mesures interférométriques faites sur les impulsions radio provenant de l'ionosphère (où le champ magnétique terrestre induit une anisotropie classique).

La surface des indices de la fluorine (cf. figure 1) diffère nettement de celle d'un milieu uniaxe – classique, à l'ordre 0 en  $a/\lambda$  – puisque aucun des indices ne reste égal à  $n_i$  quel que soit  $\mathbf{u}$ , mais aussi de celle d'un milieu biaxe – classique, à l'ordre 0 en  $a/\lambda$  – puisqu'elle n'a qu'un seul coefficient d'anisotropie ( $\gamma$ ) au lieu de deux (les différences entre l'indice principal intermédiaire et les indices principaux extrêmes), etc.



**Figure 1** : Surface des indices d'un cristal du type de la fluorine (pour plus de clarté, la biréfringence a été amplifiée d'un facteur de l'ordre du million par rapport à celle de la fluorine – ce qui a pu modifier la concavité), les axes représentés ici étant parallèles aux arêtes de la maille cubique conventionnelle ; on devine bien, par exemple en haut à droite, la présence d'un point conique à l'intersection de la surface avec une diagonale de cette maille.

### 3.3.2. Étude locale de la surface des indices au voisinage des axes optiques

Comme les égalités (39) sont invariantes par toute permutation des vecteurs de la base choisie au début du paragraphe 2.3., les propriétés de tous les axes optiques parallèles aux arêtes de la maille conventionnelle cubique sont identiques ; il en est de même pour les propriétés de tous ceux parallèles aux diagonales du cube.

#### Axe optique parallèle à une arête du cube

Moyennant une permutation judicieuse des vecteurs de la base, on peut toujours dire que chacun de ces trois axes optiques est dirigé par le vecteur  $\mathbf{u}_0 = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ .

Pour une normale aux ondes égale à  $\mathbf{u}_0$  et pour *tout*  $\underline{\mathbf{E}}$  perpendiculaire à  $\mathbf{u}_0$  on a  $\underline{\mathbf{D}} = \varepsilon_0 n_i^2 \underline{\mathbf{E}}$  ; donc toute polarisation transverse est possible et  $n' = n'' = n_i$  pour  $\mathbf{u}_0$ .

Pour une nouvelle normale aux ondes  $\mathbf{u}$  faisant un angle  $\nu$  très petit d'ordre 1 avec  $\mathbf{u}_0$ , et d'azimut  $\theta$  par rapport à une arête du cube normale à  $\mathbf{u}_0$ , on a  $\mathbf{u} \cong \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \nu \begin{pmatrix} 0 \\ \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}$  à l'ordre 1 en  $\nu$  ; alors  $T \cong \nu^2$  et  $P \cong \left( \nu^2 \frac{\sin 2\theta}{2} \right)^2$ , donc les variations de  $n'$  et  $n''$  par rapport à  $n_i$  sont du second ordre en  $\nu$  (cf. figure 2a) et fonction  $\pi/2$ -périodique de  $\theta$ .

#### Axe optique parallèle à une diagonale du cube

Moyennant une permutation judicieuse des vecteurs de la base, on peut toujours dire que chacun de ces quatre axes optiques est dirigé par le vecteur  $\mathbf{u}_1 \equiv \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}$ . Avec

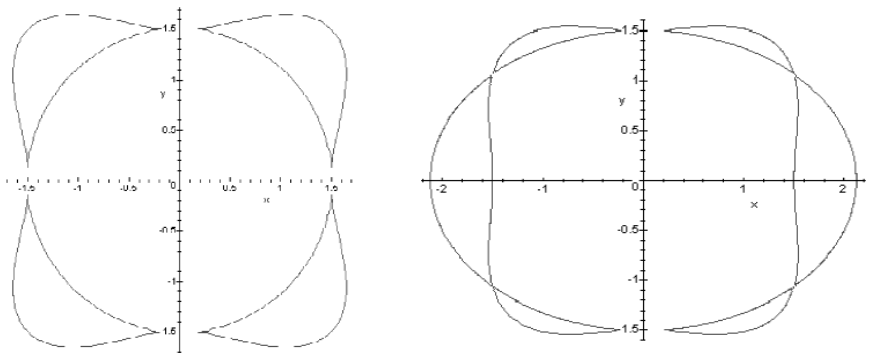
$$\mathbf{u}_2 \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \text{ et } \mathbf{u}_3 \equiv \mathbf{u}_1 \times \mathbf{u}_2 = \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -2 \end{pmatrix} \text{ on constitue une base orthonormée.}$$

Pour une normale aux ondes égale à  $\mathbf{u}_1$  et pour *tout*  $\underline{\mathbf{E}}$  perpendiculaire à  $\mathbf{u}_1$  on a  $\underline{\mathbf{D}} = \varepsilon_0 \left( n_i^2 - \frac{1}{3} \gamma \mathbf{K}^2 \right) \underline{\mathbf{E}}$  ; donc toute polarisation transverse est possible et

$n'^2 = n''^2 = n_i^2 - \frac{1}{3} \gamma \mathbf{K}^2 \cong \left( n_i + \frac{2}{3} b \right)^2$  pour  $\mathbf{u}_1$ . Comme les indices prennent pour ces quatre axes optiques une valeur différente de celle correspondant aux trois axes optiques précédents, on constate une différence de propriété par rapport au cas des milieux classiques biaxes – car pour eux les indices prennent la même valeur pour leurs deux axes optiques.

Pour une nouvelle normale aux ondes  $\mathbf{u}$  faisant un angle  $\nu$  très petit d'ordre 1 avec  $\mathbf{u}_1$ , on a  $\mathbf{u} = \sqrt{1 - \nu_2^2 - \nu_3^2} \mathbf{u}_1 + \nu_2 \mathbf{u}_2 + \nu_3 \mathbf{u}_3$  avec  $\sin \nu = \sqrt{\nu_2^2 + \nu_3^2} \cong \nu$ ; dans les développements limités de  $T$  et  $P$  en fonction de  $\nu_2$  et  $\nu_3$  on voit que les termes d'ordre 1 s'annulent, puis à l'ordre 2 on trouve  $T \cong \frac{1}{3}(1 - 2\nu^2)$  et  $P \cong \frac{1}{27}(1 - 6\nu^2)$ , d'où  $n' - n_i \cong \frac{2}{3}b(1 + \sqrt{2}\nu)$  et  $n'' - n_i \cong \frac{2}{3}b(1 - \sqrt{2}\nu)$ . Les variations de  $n'$  et  $n''$  sont donc du premier ordre en  $\nu$  (cf. figure 2b), et indépendantes de l'azimut de  $\mathbf{u}$  à cet ordre.

On montre ainsi qu'avec les quatre axes optiques parallèles aux diagonales du cube la surface des indices présente huit points coniques, chacun ayant localement une symétrie de révolution dont l'axe est la diagonale respective. Ceci fait apparaître de nouvelles différences avec la biréfringence classique : pour les milieux uniaxes, la surface des indices ne présente pas de points coniques ; elle en présente quatre pour les milieux biaxes ([4] p. 456-457), aucun d'eux n'ayant d'axe de symétrie locale de révolution.



- a. Section par un plan passant par l'origine et parallèle aux plans réticulaires d'indices de MILLER [1 0 0], ou [0 1 0], etc. compte tenu de la symétrie cubique ; le plan de coupe contient deux des trois axes optiques parallèles aux arêtes du cube ; l'une des branches est un cercle de rayon rigoureusement égal à  $n_i$ , et les lignes neutres correspondantes sont toutes perpendiculaires au plan de coupe.
- b. Section par un plan passant par l'origine et parallèle aux plans réticulaires [1 1 0], ou [1 -1 0], ou [1 0 1], etc. ; le plan de coupe contient deux des quatre axes optiques parallèles aux diagonales du cube – on voit bien qu'ils croisent la surface des indices en des points coniques, et que  $|n' - n''|$  est maximum pour une normale aux ondes parallèle à une diagonale d'une face du cube donc à une bissectrice des axes de la figure 2a et à l'axe horizontal de cette figure 2b (c'est cette différence d'indices qui a été mesurée en 2001).

**Figure 2 :** Sections de la surface des indices d'un cristal du type de la fluorine (avec les mêmes valeurs numériques que pour la figure 1 où  $\gamma$  est négatif).

### 3.4. Principes de correction des effets de la biréfringence dans les objectifs de photoréduction

Bien sûr, la double réfraction dans un objectif est très gênante, et si on ne peut pas l'annuler totalement on va chercher à la minimiser. C'est un problème difficile, d'autant que les règles permettant de déterminer la direction des rayons réfractés sont plus compliquées pour un milieu anisotrope *non local* que pour un milieu biréfringent classique [24].

Cependant, on peut déjà noter qu'avec une lentille d'axe ( $\Delta$ ) – de symétrie de révolution des faces – parallèle à l'une des arêtes du cube formant la maille conventionnelle, la différence des indices  $n'$  et  $n''$  pour les rayons réfractés paraxiaux est du second ordre en fonction de l'inclinaison de ces rayons par rapport à ( $\Delta$ ) ; tandis que si ( $\Delta$ ) est parallèle à l'une des diagonales du cube,  $n' - n''$  est du premier ordre en fonction de l'inclinaison. Il vaudrait donc mieux réaliser en fluorine une lentille d'axe ( $\Delta$ ) parallèle à une arête du cube ; mais comme les objectifs concernés ont une très grande ouverture numérique (typiquement 0,93), le choix de cette orientation de ( $\Delta$ ) ne suffit pas pour corriger les aberrations dues à la biréfringence de la fluorine. La technique de correction actuellement retenue consiste à associer les lentilles par groupes, où leurs axes sont parallèles aux arêtes (resp. aux diagonales) du cube, et les azimuts des autres arêtes de la maille cubique varient de  $45^\circ$  modulo  $90^\circ$  (resp.  $60^\circ$  modulo  $120^\circ$ ) d'une lentille à la suivante du même groupe ; il s'ensuit un changement de signe de  $n' - n''$  pour une paire de vibrations propres d'une lentille à la suivante, qui compense partiellement les effets de la biréfringence et les rend compatibles avec les spécifications actuelles pour les objectifs de photo-lithographie [15].

Les techniques de correction des objectifs pour l'ultraviolet lointain pourraient encore utiliser le fait que les biréfringences de  $\text{CaF}_2$  et  $\text{BaF}_2$  (ou  $\text{SrF}_2$ ) sont de signes contraires : en alternant judicieusement les matériaux constituant les lentilles, on peut grandement atténuer les effets de cette biréfringence à une longueur d'onde  $\lambda_0$  donnée. Enfin, en réalisant une solution solide de  $\text{CaF}_2$  et  $\text{BaF}_2$  (ou  $\text{CaF}_2$  et  $\text{SrF}_2$ ) dans des proportions calculées pour  $\lambda_0$ , on peut espérer obtenir un matériau homogène de coefficient d'anisotropie nul [14].

## CONCLUSION

Les relations constitutives et les effets d'anisotropie pour un milieu dans l'approximation linéaire sont plus subtils qu'on ne le dit usuellement : par exemple, on a vu que l'isotropie n'est pas assimilable au parallélisme de  $\mathbf{D}$  et  $\mathbf{E}$  dans toutes les directions, ce qui débouche sur des phénomènes de biréfringence beaucoup plus variés que ceux décrits classiquement pour les milieux classiques uniaxes ou biaxes.

L'intérêt de cette étude théorique fine de la propagation dans ces milieux est d'abord de présenter une plus grande unité (dans le rôle dévolu aux variables d'espace et de temps) et d'englober plus de phénomènes dans un même cadre conceptuel : les nouvelles ondes, le cas des plasmas où les effets de non-localité sont plus forts, l'anisotropie d'absorption et la biréfringence intrinsèque de cristaux ayant des mailles et des motifs à symétrie cubique. Le prix à payer pour ce gain en généralité est de fonder le raisonnement sur la fonction non observable  $(\varepsilon_r)(\mathbf{K}, \omega)$  ; on comprend donc que cette théorie ait été critiquée, avant que les confirmations expérimentales ne soient assez probantes.



La gêne causée par cette forme de biréfringence dans les progrès de l'industrie de la microélectronique est un puissant stimulant pour mieux connaître ces phénomènes afin de trouver des parades efficaces. Vu la richesse des effets impliqués par la non-localité, ne doutons pas que de multiples rebondissements soient possibles dans ce domaine ! Déjà on a signalé la possibilité de stopper des impulsions lumineuses dans des milieux non locaux [25], car la vitesse de groupe peut y devenir nulle à une fréquence précise...

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] CHARTIER G. *Manuel d'optique*. Paris : Hermès, 1997, p. 241-242.
- [2] HUARD S. *Polarisation de la lumière*. Paris : Masson, 1994, p. 308.
- [3] BORN M. et WOLF E. *Principles of optics – Electromagnetic theory of propagation interference and diffraction of light*. Oxford : Pergamon, 1980.
- [4] BRUHAT G. *Cours de physique générale – Optique*. Paris : Masson, 1992.
- [5] READ H. H. *Rutley's elements of mineralogy*. 26<sup>e</sup> édition, Londres : Murby, 1970, p. 188.
- [6] BARONNET A. *Minéralogie*. coll. Géosciences, Paris : Dunod, 1988, p. 69-73.
- [7] DAIMON M. et MASUMURA A. « High-accuracy measurements of the refractive index and its temperature coefficient of calcium fluoride in a wide wavelength range from 138 to 2326 nm ». *Appl. Opt.*, 2002, **41**, p. 5275-5281.
- [8] VAN DEN BERG R. « Extreme UV lithography preserves Moore's law ». *OLE*, juin 2005, p. 29-31.
- [9] Voir par exemple DETTWILLER L. *Les instruments d'optique – étude théorique, expérimentale et pratique*. 2<sup>e</sup> édition, Paris : Ellipses, 2002, p. 185-189.
- [10] Voir par exemple DETTWILLER L. *Les lasers et leurs applications*. Paris : Ellipses, 1998, p. 54-58.
- [11] LORENTZ H. A. *Verh. K. Akad. Wet. Amsterdam, Afd. Natuurkd.* **18**, 1878.
- [12] DE LAPPARENT A. *Précis de minéralogie*, nouveau tirage augmenté. Paris : Blanchard, 1965, p. 97.
- [13] AGRANOVICH V. M. et GINZBURG V. L. *Crystal Optics with Spatial Dispersion, and Excitons*. 2<sup>e</sup> édition, Solid-State Science, vol. 42, Berlin : Springer, 1984 – la première édition russe date de 1965.
- [14] BURNETT J. H., LEVINE Z. H. et SHIRLEY E. L. « Intrinsic birefringence in calcium fluoride and barium fluoride ». *Phys. Rev. B.*, 2001, **64**, 241102(R).
- [15] BURNETT J. H., LEVINE Z. H., SHIRLEY E. L. et BRUNING J. H. « Symmetry of spatial-dispersion-induced birefringence and its implications for CaF<sub>2</sub> ultraviolet optics », *J. Microlith., Microfab., Microsyst.*, 2002, **1**, p. 213-224.
- [16] Pour en savoir plus sur le détail des relations constitutives et leurs conséquences, on pourra consulter le chapitre d'encyclopédie suivant : L. DETTWILLER, « Propagation de la lumière, dispersion et absorption », in J.-L. MEYZONNETTE (éd.), *Optique géométrique et propagation*, Paris : Hermès Lavoisier, 2003.
- [17] JACKSON J. D. *Classical Electrodynamics*. 2<sup>e</sup> édition, New York : Wiley, 1975, p. 226 ss.

- [18] LANDAU L. et LIFCHITZ E. *Physique théorique – tome 8 – Électrodynamique des milieux continus*. Moscou : Mir, 1969.
- [19] GINZBURG V. L. « On crystal optics with spatial dispersion ». *Physics reports*, 1990, **194**, p. 245-251.
- [20] SVIRKO Y. P. « Magnetic dipole and electric quadrupole interactions in the theory of first-order spatial dispersion phenomena ». *Quantum Semiclass. Opt.*, 1998, **10**, p. 303-308.
- [21] ZIMAN J. *Principles of the theory of solids*. 2<sup>e</sup> édition, Cambridge : Cambridge, 1972, chap. 5.
- [22] AGRANOVICH V. M. et GINZBURG V. L. *Fortschr. Physik*, 1965, **13**, p. 175.
- [23] DETTWILLER L. « Shape evolution of a light pulse in a linear birefringent medium ». *J. Opt. Soc. Am.*, 2004, A **21**, p. 288-297.
- [24] DETTWILLER L. « Propriétés inédites de la biréfringence des cristaux à symétrie cubique du type de la fluorine », présenté au congrès *Horizons de l'optique 2005*, Chambéry, 8-10 novembre 2005.
- [25] KOCHAROVSKAYA O., ROSTOVTSSEV Y. et SCULLY M. O. « Stopping light via hot atoms ». *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**, p. 628-631.



**Luc DETTWILLER**  
*Professeur en PC\**  
 Lycée Blaise Pascal  
 Clermont-Ferrand (Puy-de-Dôme)

## Annexe 1

Discutons le signe de la quantité  $D$  apparaissant dans le discriminant de l'équation (47) puis sous les radicaux des relations (48-50) et (54) :

$$D \equiv T^2 - 3P = (u_1^2 u_2^2 + u_1^2 u_3^2 + u_2^2 u_3^2)^2 - 3u_1^2 u_2^2 u_3^2 \tag{1.1}$$

Posons  $U \equiv u_1^2 + u_2^2 \geq 0$  et  $V \equiv u_1^2 u_2^2 \geq 0$ . Comme  $U = 1 - u_3^2 \leq 1$  et que  $U^2 - 4V = (u_1^2 - u_2^2)^2 \geq 0$ , on voit déjà que le domaine ( $\mathcal{D}_1$ ) du plan  $(U, V)$  décrit par ces paramètres est la surface comprise entre l'axe  $OU$  et sous la parabole ( $\mathcal{P}$ ) d'équation  $V = U^2/4$  dans  $[0, 1] \times [0, 1/4]$ .

Ensuite, on note que

$$\begin{aligned} D(U, V) &= [u_1^2 u_2^2 + (u_1^2 + u_2^2) u_3^2]^2 - 3u_1^2 u_2^2 \times u_3^2 \\ &= [V + U(1-U)]^2 - 3V(1-U) \\ &= V^2 - (U-1)(2U-3)V + U^2(U-1)^2 \end{aligned} \tag{1.2}$$

donc  $D$  s'écrit sous la forme d'un trinôme en  $V$ , de racines  $V_1(U)$  et  $V_2(U)$ , de discriminant

$$\delta = (U-1)^2 [(2U-3)^2 - 4U^2] = -3(U-1)^2(4U-3) \tag{1.3}$$

Définissons dans  $[0, 1] \times [0, 1/4] \equiv (\mathcal{D}_2)$  la courbe ( $\mathcal{C}$ ) d'équation  $D(U, V) = 0$ . On voit que  $D(1, V) = V^2 \geq 0$  ; et la seule annulation possible de  $D$  qui ne correspond pas à un point de ( $\mathcal{D}_2$ ) se produit pour  $(U, V) = (1, 0)$ , i.e.  $\mathbf{u}$  parallèle à l'une quelconque des deux directions  $A_1$  ou  $A_2$  des arêtes de la maille cubique telles que  $u_3 = 0$ . Puisque  $D$  est un trinôme en  $V$ , en considérant chaque segment vertical (i.e. pour  $U$  fixé), on voit que le signe de  $D$  est différent des deux côtés de ( $\mathcal{C}$ ). Ensuite, on vérifie facilement que la plus petite de ses racines pour  $U$  au voisinage de 0 est  $V_2(U) \sim U^2/3$  ; donc ( $\mathcal{C}$ ) est au dessus de ( $\mathcal{P}$ ) au voisinage de l'origine. Comme

$$D(U, U^2/4) = U^2(3U-2)^2/16 \geq 0 \tag{1.4}$$

est positif, on voit que ( $\mathcal{P}$ ) est toujours du même côté de ( $\mathcal{C}$ ), à savoir au dessous, et ne le touche dans ( $\mathcal{D}_2$ ) qu'aux points de coordonnées  $(0, 0)$  et  $(2/3, 1/9)$ . Ceci prouve que  $D$  a toujours le même signe, positif car pour  $(u_1, u_2, u_3) = (1/\sqrt{2}, 1/\sqrt{2}, 0)$  on a  $D = 1/16$  ; et  $D$  ne peut s'annuler dans ( $\mathcal{D}_2$ ) que pour  $(U, V) = (0, 0)$  ou bien  $(U, V) = (2/3, 1/9)$ , i.e. pour le cas où  $u_1^2 = u_2^2 = 0$  (donc  $\mathbf{u}$  parallèle à la troisième direction  $A_3$  des arêtes de la maille cubique) ou bien  $u_1^2 = u_2^2 = u_3^2 = 1/3$  (donc  $\mathbf{u}$  parallèle à l'une quelconque des diagonales de la maille).

## Annexe 2

En utilisant les résultats de l'annexe 1, cherchons les directions de  $\mathbf{u}$  telles que  $D$  atteigne son maximum absolu ; c'est une fonction de  $(U, V)$  définie sur  $(\mathcal{D}_1)$ .

Comme on a  $V \leq U^2/4$  sur  $(\mathcal{D}_1)$ , on tire de la relation (1.2)

$$\frac{\partial D}{\partial V} = 2V - (U-1)(2U-3) \leq -\frac{1}{2}(3U^2 - 10U + 6)$$

et cette borne supérieure est négative sur  $(\mathcal{D}_1)$  pour  $U \leq \frac{5-\sqrt{7}}{3} \equiv U_1$ .

Pour  $U \leq U_1$ , le maximum de  $D$  est donc tel que  $V = 0$  ; or  $D(U, 0) = U^2(U-1)^2$  est évidemment maximum pour  $U = 1/2 \leq U_1$ , et vaut  $D(1/2, 0) = 1/16$ . Comme  $(U, V) = (1/2, 0) \Leftrightarrow (u_1^2, u_2^2, u_3^2) = (0, 1/2, 1/2)$  ou bien  $(1/2, 0, 1/2)$ , les quatre directions de  $\mathbf{u}$  réalisant ce maximum de  $D$  forment un sous-ensemble de celui des six directions des diagonales des faces de la maille cubique.

Pour  $U \geq U_1$ , en fonction de  $V$  sur  $[0, U^2/4]$  on observe d'abord une décroissance, puis une croissance de  $D$  ; donc les maxima restant à trouver ne peuvent qu'être parmi les valeurs de  $D(U, U^2/4)$  (sachant que  $D(U, 0) < 1/16$  pour  $U \geq U_1$ ). Or  $D(U, U^2/4)$  est donné par l'expression (1.4), et on montre facilement qu'avec  $U \geq U_1$  elle est maximale seulement pour  $U = 1$  et vaut  $D(1, 1/4) = 1/16$  de nouveau, ce qui donne  $(u_1^2, u_2^2, u_3^2) = (1/2, 1/2, 0)$  i.e.  $\mathbf{u}$  parallèle à l'une quelconque des deux directions restantes parmi celles des diagonales des faces de la maille.