L'acoustique picoseconde : un sonar dédié aux nanosciences

Laurent BELLARD, Bernard PERRIN

Institut des NanoSciences de Paris, Université Pierre et Marie Curie

laurent.belliard@upmc.fr

L'introduction, dans les années 1980, de sources laser pulsées femtoseconde, fiables et d'emploi aisé, a suscité un vif intérêt dans le domaine de l'acoustique. En effet, les mécanismes de génération et de détection d'impulsions acoustiques, inhérents à l'utilisation de ces nouvelles sources laser, ont permis un gain de deux à trois ordres de grandeur sur la gamme des fréquences des ondes longitudinales pouvant être ainsi engendrées, ouvrant ainsi la voie à des études élastiques au sein des nanostructures. H.J. Maris présente en 1984 la génération et la détection de phonons cohérents dans l'As₂Te₃ et envisage tout naturellement la détermination de grandeurs telles que la vitesse de propagation ou l'atténuation de phonons très hautes fréquences (plusieurs centaines de GHz) dans des systèmes où leur longueur d'absorption peut s'avérer très courte. Cette technique est de nos jours appelée « acoustique picoseconde ».

Des ondes acoustiques à l'acoustique picoseconde

La manipulation des ondes, au sens général du terme, est une approche très universelle pour recueillir une multitude d'informations sur les milieux qui nous environnent. En particulier, la mise en situation des ondes acoustiques, qui sous certaines conditions peuvent pénétrer profondément dans les systèmes, est abondamment utilisée par l'homme. Mère Nature n'est pas en reste à ce sujet : dans le domaine animalier, l'écholocation développée par les cétacés et les chiroptères en est un exemple éloquent. La génération et la détection des ondes acoustiques ont été grandement favorisées par l'apparition des transducteurs

piézo-électriques, qui, par leur déformation sous champ, assurent les notions de génération, mais également de détection en réagissant électriquement à une sollicitation mécanique. De nos jours, de telles sources et détecteurs sont abondamment utilisés dans des domaines très variés : citons pour exemple l'imagerie médicale, le contrôle non destructif en aéronautique ou les sonars marins... Néanmoins, la génération assistée par des transducteurs piézo-électriques s'avère limitée en fréquence. Le corollaire étant que la longueur d'onde des ondes acoustiques ainsi générées ne peut être réduite à des échelles nanométriques, limitant par là même leur intérêt dans le cadre des nanosciences. Afin de contourner une telle limitation, la génération et la détection de ces ondes acoustiques par des voies optiques ont commencé à émerger, au début à l'aide de sources lasers nanoseconde, et de nos jours, sous l'impulsion de H.J. Maris, en utilisant des sources laser pulsées délivrant des impulsions de lumière dans la gamme de la centaine de femtosecondes (10^{-13} s). C'est ainsi que la technique communément appelée « acoustique picoseconde », au regard de la durée temporelle des impulsions acoustiques créées, a vu le jour.

Principe de la mesure

L'acoustique picoseconde est une technique permettant la génération et la détection tout optique dans un schéma de type pompe-sonde, en utilisant des lasers impulsions femtoseconde du type Ti:saphir. Une impulsion ultra brève (100 fs), communément appelée la pompe, est absorbée par le système. Cet apport d'énergie engendre une déformation locale du réseau, qui de proche en

proche se propage au sein du système. Au cours de sa propagation et en fonction de la structure de ce dernier, cette onde acoustique longitudinale subit des réflexions partielles ou totales au niveau des différentes interfaces. Ainsi, après un certain délai, l'écho émerge à la surface libre du système où il est détecté par une seconde impulsion laser, nommée la sonde. Afin de suivre l'évolution temporelle de la réflectivité de la surface libre, cette impulsion sonde est retardée à l'aide d'une ligne à retard. En agissant sur le chemin optique de la sonde et en mettant à profit la grande vitesse de la lumière, le délai pompe-sonde peut être contrôlé avec une résolution temporelle bien inférieure à la durée des impulsions et ceci sur des durées de l'ordre de 12 ns, le taux de répétition standard des lasers femtoseconde commerciaux étant de 80 MHz (figure 1).

Figure 1. Schéma de principe de la génération et de la détection en acoustique picoseconde.

Un intérêt évident pour les couches minces

Cette déformation, lorsqu'elle est créée au niveau d'une surface libre, est composée d'un front de compression suivi d'un front de dilatation. L'estimation du temps

caractéristique de ces deux fronts permet de connaître la durée temporelle de l'impulsion acoustique. Cette durée est de l'ordre de grandeur du rapport $2\xi/V$ avec ξ la longueur de pénétration optique et V la vitesse de l'onde. Dans le cas des métaux, la longueur ξ est de l'ordre de quelques nanomètres (8 nm pour l'aluminium), et la vitesse de quelques nanomètres par picosecondes (6,4 nm/ps pour l'aluminium) : on obtient ainsi un temps caractéristique de quelques picosecondes, ou en corollaire une largeur spatiale de quelques nanomètres.

À ce titre on comprend bien l'intérêt de ce type de génération pour la transposition du principe du sonar (*sound navigation and ranging*) dans le domaine des matériaux en couche mince. La génération d'onde de très hautes fréquences ouvre donc la possibilité de résoudre temporellement des séries d'échos confinés dans des couches minces.

Des raffinements de ce modèle, prenant en compte la diffusion thermique ou la diffusion électronique ont également été proposés par Maris. L'idée principale à retenir est que tout mécanisme qui tend à élargir la zone où l'énergie est transférée au réseau, conduit inévitablement à la génération d'ondes acoustiques spatialement plus étalées, ou en d'autres termes, avec un contenu fréquentiel moins riche en hautes fréquences. Toutefois, si seule une mince couche superficielle absorbante recouvre un matériau, c'est l'épaisseur de cette couche qui déterminera la largeur temporelle de l'impulsion acoustique.

L'apport des mesures interférométriques

Lorsqu'une déformation $\eta(z,t)$ du réseau existe, on s'attend à une modification des constantes optiques du matériau. On peut décrire phénoménologiquement la variation de l'indice de réfraction complexe n du matériau comme suit :

$$\Delta n(z,t) = \frac{\partial n}{\partial \eta} \eta(z,t)$$

Un ébranlement acoustique est également caractérisé par un déplacement des atomes autour de leur position d'équilibre. Par conséquent, lorsqu'une onde longitudinale va émerger à la surface de nos systèmes, on s'attend à ce qu'elle engendre un déplacement de surface. Ce dépla-

cement de surface a pour effet de modifier la partie imaginaire de la réflectivité. Il est alors possible de remonter à ce paramètre à l'aide de mesures interférométriques, approche qui a été proposée par notre équipe de recherche dans les années 1990. En intégrant ces deux types de contributions, le changement relatif de réflectivité de la surface peut s'exprimer comme suit :

$$\frac{\Delta r(r)}{r_0} = ik_0 \frac{4\pi}{1-x^2} \frac{\partial n}{\partial \eta} \int_0^\infty \eta(z,t) \exp(2ik_0 z t) dz + 2ik_0 u(0,t)$$

avec n l'indice optique, $\partial n/\partial \eta$ le coefficient photoélastique, $u(0,t)$ le déplacement de surface, $\eta(z,t) = \partial u_z/\partial z$ la déformation suivant la normale à la surface dans la direction normale z .

La partie réelle de cette équation est obtenue à l'aide de simples mesures de réflectivité. La partie imaginaire est obtenue par des mesures interférométriques dans des configurations du type Sagnac, Mach-Zender ou Michelson.

Cas des systèmes opaques

Dans le cas des systèmes opaques, où $\xi \ll \lambda$, le changement de réflexion induit par une onde acoustique n'existera que si cette dernière pénètre une zone où le champ électromagnétique de la sonde est non négligeable, c'est-à-dire très proche de la surface. Ainsi cette signature apparaît à des intervalles de temps réguliers, à la manière de simples échos (*figure 2*). Les échos acoustiques se trouvent alors

Figure 2. Évolution typique de la partie imaginaire du changement de réflectivité en fonction du temps. Expérience menée sur une couche 220 nm dans un alliage de type $\text{Mo}_{1-x}\text{Si}_x$. Collaboration avec l'Institut P' de Poitiers.

TRIOPTICS
FRANCE

UN UNIVERS DE PRÉCISION

- Solutions complètes pour le test des systèmes optiques
- Interféromètres, goniomètres, collimateurs, autocollimateurs, bancs de tests, bancs de FTM...
- Mesure de focale, centrage, front d'onde, FTM, topographie...
- Applications en R & D et production.
- Développements spéciaux.

Banc de FTM
UV-Vis-IR

Interféromètre
dynamique
UV-Vis-IR

Logiciel
d'analyse

Goniomètre
absolu

Contrôle en
production

Tests en
R & D

TRIOPTICS France
 Tél: 04 72 44 02 03
 Fax: 04 72 44 05 06
www.trioptics.fr

superposés à un fond d'origine thermique, résultant de la diffusion de la chaleur apportée par les impulsions pompes. La brutale variation de réflectivité est quant à elle imputable à la mise hors d'équilibre du gaz d'électrons lors de l'absorption de l'impulsion pompe. L'analyse du temps de transit de ces ondes longitudinales, de leur atténuation, de la forme des échos ou de leur signature spectrale sont autant de vecteurs d'informations susceptibles de nous donner des informations sur le comportement élastique du système.

Cas des matériaux transparents

Il en va tout autrement dans le cas des matériaux transparents ou $\xi \gg \lambda$. Dans ce cas, il est possible de démontrer que la composante spectrale de la déformation présentant un vecteur d'onde acoustique $q_{\text{acoustique}}$ égale à $2k_{\text{optique}}$, est favorisée à la détection. Dans l'espace temps où sont réalisées les expériences, cette détection privilégiée se caractérise par une oscillation temporelle à une fréquence égale à $2nV/\lambda$ communément appelée fréquence Brillouin (figure 3). Dans ce cas, une étude de l'évolution de la fréquence Brillouin en fonction de l'angle d'incidence permet de remonter simultanément à l'indice optique et à la vitesse longitudinale du système.

Figure 3. La fréquence de l'oscillation Brillouin permet de remonter à la vitesse longitudinale dans une couche de LiPON, habituellement utilisée comme électrolyte solide dans le domaine des microbatteries Li-ion. Collaboration avec ST Microélectronics et le CEA LITEM.

La chaîne de détection

L'ordre de grandeur des changements relatifs de réflectivité est approximativement compris entre 10^{-7} et 10^{-4} . Il faut

donc trouver une chaîne de détection susceptible d'extraire de si faibles écarts comparés par exemple aux fluctuations en intensité des sources laser qui sont de l'ordre de 10^{-2} voire 10^{-3} dans le meilleur des cas. La méthode classique consiste à imposer une fréquence contrôlable aux phénomènes transitoires acoustiques ou thermiques, en modulant leur origine c'est-à-dire l'intensité lumineuse de la pompe. Cette modulation est obtenue à l'aide d'un modulateur acousto-optique qui rajoute une fonction fenêtre, de fréquence ajustable, au peigne d'excitation du laser. Ensuite, la réflectivité de l'échantillon est analysée par une détection synchrone qui extrait la composante de Fourier à la fréquence de modulation de la pompe. Ainsi les mesures ne sont plus assujetties à l'intégralité du spectre de bruit des lasers mais uniquement à la fréquence choisie qui en général est de l'ordre du MHz, gamme de fréquence où les fluctuations du laser sont faibles.

Quelques exemples d'utilisation

L'analyse de couches minces et de revêtements

Nombre d'activités requièrent aujourd'hui le dépôt de revêtements submicrométriques à la surface des matériaux pour les fonctionnaliser ou les protéger. Les couches minces ainsi réalisées sont souvent sans équivalent sous forme massive (apparition de solutions solides métastables) et l'étude de leurs propriétés élastiques revêt un très grand intérêt. La détermination des vitesses de propagation du son s'avère une sonde locale extrêmement efficace. En effet, cette grandeur découle directement de l'arrangement de la matière à l'échelle atomique. Ainsi, des modifications subtiles de cet arrangement vont directement se refléter sur cette grandeur. Pour exemple, la figure 4 montre comment évolue la constante élastique C_{33} , déduite de la vitesse longitudinale V_l par la formule $C_{33} = \rho v_l^2$, en fonction de la composition en silicium dans un alliage binaire hors équilibre du type $\text{Mo}_{1-x}\text{Si}_x$. L'augmentation de la teneur en silicium aboutit vers 19 % à une transition de phase entre un état cristallin avec

un réseau cubique centré et une phase amorphe. À cette transition, les constantes élastiques présentent une très forte chute, de plus de 20 %, caractéristique d'un amollissement des propriétés élastiques. Par la suite, l'augmentation en silicium induit une autre transition entre un état métallique et un état semi-conducteur. Là aussi, l'évolution des constantes élastiques permet de mettre en évidence ce phénomène. L'étude de l'évolution des constantes élastiques au sein de couches minces peut être abordée en fonction de plusieurs paramètres comme la composition des alliages, l'épaisseur, les conditions de dépôt, mais également en fonction de paramètres thermodynamiques tels que la pression ou la température. Ce genre de caractérisation peut s'avérer pertinent dans bon nombre d'applications industrielles : citons par exemple l'étude du comportement mécanique des empilements complexes tels que les microbatteries Li-Ion commercialisées par ST Microélectronics, ou encore l'étude des traitements de surface des « verres intelligents » mis au point par Saint-Gobain Recherche.

Les matériaux multicouches

La structuration, dans une direction de l'espace, obtenue par l'empilement périodique de couches de nature différentes est à l'origine de bon nombre de propriétés

Figure 4. Évolution de la constante élastique C_{33} associée à la propagation des ondes longitudinales, mesurée par acoustique picoseconde dans un alliage de type $\text{Mo}_{1-x}\text{Si}_x$. Collaboration avec l'Institut P' de Poitiers et le LSPM de l'Université Paris 13.

qui sont absentes des systèmes massifs. L'apparition des gaps optiques dans les miroirs de Bragg en est un exemple parlant. En ce qui concerne les propriétés de propagation d'ondes acoustiques, nous pouvons rencontrer des phénomènes analogues ; pour cela il suffit simplement que les matériaux constituant la périodicité élémentaire présentent des propriétés acoustiques différentes. Dans ce cas, les courbes de dispersion des ondes acoustiques longitudinales présentent un repliement et l'ouverture de bandes interdites est rendue possible. Ces propriétés étant assujetties à la qualité de la structuration, on comprendra facilement pourquoi les multicouches de semiconducteurs, fabriquées par épitaxie à jet moléculaire, se sont avérées de très bons candidats : ces matériaux dont la croissance est contrôlée plan atomique par plan atomique ont une qualité cristalline si remarquable qu'on les désigne sous le terme de « super-réseaux » pour rappeler l'adaptation des mailles entre chaque couche. Plus que les proprié-

tés nouvelles en termes de filtrage acoustique que de tels empilements offrent, c'est la possibilité d'émettre et détecter des ondes acoustiques de longueurs d'ondes nanométriques qui s'est avérée la plus intéressante. Grâce au contraste de leurs propriétés électroniques, optiques et élastiques, il est possible d'inscrire à l'aide d'impulsions laser femtoseconde dans des super-réseaux des contraintes modulées à l'échelle de la bicouche (appelée période) : ces contraintes permettent alors d'émettre dans les substrats sous-jacents des ondes élastiques ayant des longueurs d'onde comparables à la période du super-réseau et donc de générer des paquets d'onde acoustiques quasiment monochromatiques dans la gamme du terahertz. Le même type de système s'avère par ailleurs un très bon détecteur de ces ondes pour le même domaine de fréquence : la rétrodiffusion du faisceau laser sonde par les ondes acoustiques obéit à une loi de conservation sur les vecteurs d'onde : $\vec{q} = 2\vec{k}$

(q et k étant respectivement les vecteurs d'onde acoustiques et optiques) qui sélectionnent des ondes de quelques dizaines de GHz dans les matériaux massifs (fréquences habituelles de la diffusion Brillouin). Dans le cas des super-réseaux, la modulation nanométrique du coefficient photoélastique et le repliement des courbes de dispersion des ondes acoustiques permettent la détection de fréquences beaucoup plus élevées. Des expériences démontrant la propagation d'ondes acoustiques au terahertz sur des distances macroscopiques ont pu être très récemment menées (figure 5).

Les ondes acoustiques, dans ce domaine de fréquence, sont les principaux porteurs de la chaleur dans les solides et ce genre d'expérience ouvre l'opportunité d'étudier avec précision les mécanismes subtils de l'atténuation des ondes acoustiques de longueur d'onde nanométrique, et d'apporter un éclairage nouveau sur le transport de chaleur dans des nano-systèmes ou des systèmes nanostructurés.

PASSEZ À LA VITESSE DE L' USB 3.0 AVEC LES CAMÉRAS uEye® CP !

Rapide, puissante, qui a fait ses preuves,
l'interface de prochaine génération

**Davantage de modèles
pour la VISION 2012:**

- e2v 2MP 60fps
- CMOSIS 2MP 180fps
- CMOSIS 4MP 90fps

Hall 1, Stand D72

IDS Nous sommes l'USB. IDS a été depuis une décennie le leader industriel des caméras USB. Nous avons intégré toutes nos connaissances dans la prochaine génération des caméras uEye avec port USB 3.0. Vous pouvez vous fier à notre expérience.

www.ids-imaging.fr/usb3

Figure 5. Expériences d'acoustique à 0,4 (a) et 1 THz (b) à l'aide de super-réseaux GaAs/AlAs de périodes respectives 12,5 et 5 nm. Les ondes à 1 THz ont une vitesse plus faible que celles à 50GHz. Collaboration LPN Marcoussis.

Les systèmes anisotropes

Dans les systèmes cristallins, toutes les directions ne sont pas équivalentes d'un point de vue acoustique. En particulier, les vitesses de propagation peuvent très fortement varier. D'autre part, suite aux travaux de Von Gutfeld et d'Every, nous savons par exemple que le flux d'énergie n'est pas obligatoirement dans la direction du vecteur d'onde, que la surface d'onde produite par un point source s'éloigne fortement d'une répartition sphérique et que les surfaces d'ondes présentent de multiples repliements associés à l'anisotropie des tenseurs élastiques, repliements qui engendrent pour certaines directions une « focalisation » de l'énergie. La cartographie des surfaces d'énergie qui émergent à la surface d'un wafer de silicium monocristallin (figure 6) permet entre autres de mettre en évidence la propagation de différents modes acoustiques. Les ondes longitudinales sont à l'origine de la signature dipolaire en forme de cercle, alors que les ondes transverses lentes sont associées à la deuxième structure plus complexe. L'étude de l'évolution spatiale et temporelle

de ces structures est un moyen très fiable pour remonter à l'ensemble des caractéristiques élastiques d'un cristal. En particulier, dans le cas du silicium, il est possible de remonter aux trois constantes élastiques du second ordre, caractéristiques de la phase cubique. Nous avons également étudié l'évolution de ces cons-

tantes en fonction de la pression, mettant ainsi en évidence un comportement non linéaire permettant de remonter aux constantes élastiques du troisième ordre. Cette dernière caractérisation est d'une importance capitale dans le domaine de la réponse élastique des MEMS (microsystèmes électromécaniques), objets dans

Figure 6. À gauche : cartographie (175 x 175 µm²) des déplacements de surface induits par des ondes longitudinales et transverses. À droite : la résolution de l'équation de propagation permet d'identifier en rouge la signature longitudinale et en vert l'onde transverse lente. L'onde transverse rapide, n'est, elle, pas détectée.

lesquels les champs de contraintes résiduelles peuvent fortement affecter le comportement mécanique.

Les problématiques de surface

L'élasticité ne peut se résumer à des problématiques de volume. En effet, les modes de surface ont très tôt attiré d'éminents scientifiques tels que Lord Rayleigh, Love, Lamb... Les ondes sismiques, ou les ondes à la surface d'un liquide, en sont des exemples parlants.

La génération des ondes de surface, à l'aide de sources laser, a suivi différentes pistes. La première repose sur la focalisation en un point ou une ligne des sources lumineuses à la surface des systèmes. Dans ce cas, la génération présente la particularité de ne pas être sélective en fréquence, on parle d'excitation large bande. La seconde repose sur l'illumination d'un réseau métallique réalisé par lithographie à la surface des échantillons. La modulation de l'échauffement induite par une telle absorption différentielle en-

gendre une modulation de la contrainte qui aboutit à la génération d'ondes de surface présentant un spectre discret en fréquence. Nous avons mis à profit ces approches pour générer des ondes de surface communément appelées ondes de Rayleigh et étudier leur interaction avec des cristaux phononiques.

À l'image des cristaux photoniques qui ont la propriété d'empêcher la lumière de se propager dans certaines gammes de fréquences, il existe un intérêt croissant pour leurs homologues élastiques, que sont les cristaux phononiques. Ceux-ci consistent en un arrangement périodique de plusieurs matériaux, pour lesquels on peut sous certaines conditions, observer un effet de bande interdite, bande de fréquence dans laquelle les ondes sont évanescentes. Si la présence d'une bande d'arrêt dans de tels matériaux ouvre des perspectives d'applications pour le filtrage, il est aussi possible d'utiliser les propriétés inhabituelles des courbes de dispersion dans les bandes passantes qui

aboutissent au phénomène de réfraction négative. Ce phénomène est à l'origine des propriétés de super focalisation de ces cristaux artificiels.

Des domaines applicatifs très diversifiés

L'acoustique picoseconde permet d'aborder l'élasticité à des échelles nanométriques, dans des domaines très divers autant appliqués que fondamentaux. Elle se prête à l'étude d'une grande variété de systèmes, opaques, transparents, organisés, hétérogènes, semi-conducteurs, isolants, métalliques, massifs ou sous forme de couches minces... Cette approche non destructive, tout optique et par conséquent sans contact permet à cette technique d'être pertinente dans bon nombre d'environnements, température et pression variables, systèmes soumis à un stimulus extérieur comme un champ magnétique, électrique, ou un champ de contraintes.

PHOTONIS Tél. : 05.56.16.40.48 – www.photonis.com

PHOTONIS

LEADER MONDIAL DE L'INNOVATION EN PHOTO-DÉTECTION

Créé en 1937, PHOTONIS célèbre cette année ses 75 ans d'innovation. Le Groupe basé à Mérignac en Gironde est spécialisé en haute technologie pour la photo-détection, et se situe parmi les leaders mondiaux de la conception et de la fabrication de tubes intensificateurs de lumière et de photo-détecteurs de très haute performance pour les secteurs de l'industrie, du spatial, de la recherche, du médical et de la défense.

Leadership sur les marchés des photo-détecteurs spéciaux et de la vision nocturne. PHOTONIS développe des photo-détecteurs et des galettes de micro-canaux pour les environnements très exigeants et des applications comme la sûreté nucléaire, le spatial, la spectrométrie, la neurologie, la vision de nuit... PHOTONIS a déposé de nombreux brevets dans ces domaines.

Innovation pour la performance. PHOTONIS investit en permanence en R&D afin que l'innovation rime avec performance. En vision nocturne, cela signifie réduction de la taille, du poids et de la consommation électrique des composants, et qualité d'image supérieure entre autres. Dans la recherche scientifique, les « tubes streak » permettent l'analyse spatio-temporelle de phénomènes lumineux ultra-rapides inférieurs à la picoseconde (10^{-12} s).

Aujourd'hui les composants numériques créés par PHOTONIS proposent une image fluide en pleine résolution de jour comme de nuit pour des applications d'imagerie encore inégalée pour la sécurité et la surveillance, le spatial, l'exploration pétrolière, le médical et la miniaturisation des détecteurs photoniques.

EDPSciences-Pho1

Photoniques 61