

Oscillations Brillouin en acoustique picoseconde colorée

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 13 décembre 2005

pour l'obtention du

Grade de Docteur

spécialité : Sciences des Matériaux

par

Renaud CÔTE

Composition du jury

Président : Bahram DJAFARI ROUHANI

Rapporteurs : Bertrand AUDOIN
Bernard PERRIN

Examineurs : Arnaud DEVOS (directeur de thèse)
Christ GLORIEUX

Remerciements

Je suis très reconnaissant à Arnaud Devos pour la qualité de son encadrement comme pour ses qualités humaines. Sa rigueur et son enthousiasme communicatif ont rendu cette expérience très enrichissante, bien au-delà de mes espérances.

Merci à Bahram Djafari Rouhani, Professeur des Universités au LDSMM, Université des Sciences et Techniques de Lille, à Bertrand Audoin, Professeur des Universités au LMP, Université Bordeaux 1, à Bernard Perrin, Directeur de Recherche du CNRS à l'INSP, Université Paris 6 et 7, et à Christ Glorieux, Professeur Associé, à l'ATF, Université Catholique de Louvain, d'avoir accepté de juger ce travail de thèse.

Les expériences présentées dans ce mémoire n'auraient pas pu voir le jour sans échantillons et caractérisations, et le professionnalisme ainsi que la sympathie du personnel de l'IEMN y sont pour beaucoup. Patrice Bigotte, Christiane Legrand, André Leroy, Annie Fattorini et Isabelle Roch-Jeune sont ceux que j'ai le plus sollicités.

Si j'ai pu effectuer ces travaux, c'est avant tout parce que Ghislaine Coulon, Lionel Buchillot, Arnaud Devos et Didier Stiévenard ont pris le risque de m'accepter en DEA à une période où beaucoup trouvaient l'idée téméraire. J'espère que ce mémoire contribuera à montrer qu'ils ont eu raison de m'accueillir.

Je voudrais dire aussi combien les autres membres ou invités de l'équipe d'acoustique picoseconde, Arnaud Lelouarn, Grégory Caruyer, Jean-François Robillard, Valérie Messenger, Patrick Emery, Marc Ternisien et Fanny Poinssotte ont contribué, chacun à leur manière, aux travaux présentés dans ce mémoire, et aussi au plaisir que j'ai toujours eu à venir travailler en leur compagnie.

Mille merci à tous ceux qui, nombreux à l'IEMN, à l'ISEN et à l'USTL, ont enrichi ou facilité ce travail.

Enfin, merci aux parents et amis pour leur soutien sans faille et surtout à Florence, Camille (elle surligna de son plus joli feutre quelques passages certainement intéressants sur mon écran), et Josse (en vidant mon bureau il m'aida à classer tout ce que je n'avais pas perdu, et réciproquement), qui maintiennent avec moi dans les trépidations du quotidien l'équilibre délicat mais O combien épanouissant entre des recherches passionnantes et l'aventure familiale.

*Y a que'que chose qui cloche là d'dans,
J'y retourne immédiatement.*

Boris Vian «La java des bombes atomiques»

Table des matières

Introduction

1	Acoustique picoseconde, oscillations Brillouin et couleur	1
2	Historique et situation actuelle	2
3	Présentation du sujet de thèse	3

Partie I Acoustique picoseconde, oscillations Brillouin et longueur d'onde

1	Les principes physiques	7
1.1	Approche qualitative	7
1.1.1	Géométrie	7
1.1.2	La génération des ondes élastiques	7
1.1.3	Les ondes élastiques	8
1.1.4	Détection des ondes élastiques, cas 1/3 : échantillon opaque	9
1.1.5	Détection des ondes élastiques, cas 2/3 : échantillon transparent	10
1.1.6	Détection des ondes élastiques, cas 3/3 : film mince transparent et impulsion déformante	11
1.1.7	« Diffusion Brillouin résolue en temps » [63]	11
1.2	Un peu de formalisme quand même	12
1.2.1	La génération	12
1.2.2	La propagation	13
1.2.3	La détection	13
1.3	Particularités des oscillations Brillouin	16
1.3.1	Conditions d'existence	16
1.3.2	Effets de la couleur	17
2	Dispositif expérimental	19
2.1	Le cœur du montage : une source laser	19
2.2	Un montage pompe-sonde	19
2.3	Quelques variantes	19
3	Codes de calcul	21
3.1	Deux applications	21
3.2	Comparaison	21

Partie II Propriétés électroniques des matériaux

1 Acoustique picoseconde et propriétés électroniques des métaux	25
1.1 Premières observations	25
1.2 Etude d'autres métaux	26
2 Effets de structure électronique sur les oscillations Brillouin du Silicium	29
2.1 Un effet spectaculaire dans le Silicium	29
2.2 Analyse des premières mesures sur Al/SiO ₂ /Si	30
2.3 Analyses complémentaires	32
2.4 Structure électronique du Silicium et couplage élasto-optique	35
2.5 Mesures autour de E'_0 et E_1	36
2.6 Influence de la température	37
3 Extension des résultats à un autre semi-conducteur, le Germanium	39
3.1 Intérêt du Germanium	39
3.2 Conception des échantillons	39
3.3 Montage	40
3.4 Mesures	41
4 Discussion et compléments	45
4.1 Comparaisons quantitatives avec la littérature	45
4.2 Comparaison Si – Ge	47
4.3 La réponse dépend-elle du type ou du caractère ?	48
4.4 Expériences complémentaires	49
4.4.1 GaP : un contre-exemple ?	49
4.4.2 GaAs : des effets sensibles	49
Synthèse de l'étude sur la relation entre l'acoustique picoseconde et la structure électronique des matériaux	51

Partie III Anatomie des Matériaux transparents

1 Mesures d'épaisseur et de vitesse du son	55
1.1 Problématique	55
1.2 Exploitation des oscillations Brillouin	56
1.3 Intérêt de la démarche	58
1.4 Choix de la longueur d'onde en résonance	59
1.5 Perspectives	61
2 Mesures absolues d'indice et de vitesse du son	63
2.1 Problématique	63
2.2 Principe	63
2.3 Validation expérimentale	65
2.3.1 Montage	65
2.3.2 Expériences sur GaAs	65
2.4 Application à un échantillon de FSG (Fluorinated Silicate Glass : verre de silice fluorée)	67
2.5 Application à un échantillon d'AlN (nitrure d'aluminium)	69
2.6 Discussion	69

3	Approfondissement de l'exploitation des oscillations Brillouin	71
3.1	Pour aller plus loin	71
3.2	Atténuation ultrasonore et masse volumique	71
3.2.1	Un sujet bien balisé	71
3.2.2	Atténuation ultrasonore dans les films minces transparents	72
3.3	Caractérisation des interfaces	76
3.3.1	Détection d'une interface GaAs/GaAs	76
3.3.2	Evaluation des propriétés de l'interface	76
3.4	Largeur spectrale de la sonde	77
3.5	Etudes d'objets tridimensionnels	78
3.6	Discussion	80

	Synthèse de l'étude des matériaux transparents grâce aux oscillations Brillouin	81
--	--	-----------

Conclusion

Annexes

A	Réfectivité d'un échantillon transparent en présence d'une impulsion acoustique	89
A.1	Objet du calcul	89
A.2	Principe du calcul de variation de réflectivité par couplage élasto-optique	90
A.3	Effet d'une impulsion acoustique sur le champ électromagnétique	90
A.4	Description des différentes contributions à la réflectivité	92
A.5	Calcul final des variations de réflectivité dues au couplage élasto-optique	96
B	Coefficient élasto-optique	99
B.1	Un paramètre capital	99
B.2	Définitions et dénominations	99
B.3	Coefficient élasto-optique des diélectriques	100
B.4	Effets de longueur d'onde sur le coefficient élasto-optique	101
C	Quelques notations et unités	105
C.1	Équivalence longueur d'onde - énergie	105
C.2	Paramètres optiques des oscillations Brillouin	105
C.3	Couleurs	105
D	Liste de publications et communications	107
D.1	Publications avec comité de lecture	107
D.2	Conférences internationales avec actes	107
D.3	Autres séminaires	107
	Bibliographie	109

Introduction

1 Acoustique picoseconde, oscillations Brillouin et couleur

L'acoustique picoseconde : un montage pompe-sonde tout optique pour une expérience d'acoustique

Les expériences d'acoustique picoseconde consistent à générer des ondes acoustiques dans un échantillon et à détecter leur effet dans des gammes de fréquences très élevées, entre le giga et le téraHertz, bien au-delà de ce qu'un être vivant peut entendre. Pour générer ces ondes acoustiques on utilise une impulsion lumineuse ultra-brève appelée pompe, qui chauffe brutalement la surface de l'échantillon sur quelques dizaines de nanomètres, ce qui cause l'apparition d'une impulsion acoustique d'une extension égale à la zone échauffée. La durée de cette impulsion acoustique est de quelques picosecondes (10^{-12} s), d'où l'appellation de la technique. Pour détecter l'effet de cette l'impulsion, on envoie une autre impulsion lumineuse sur l'échantillon et on mesure l'intensité réfléchiée. En réalisant plusieurs expériences où la sonde est de plus en plus retardée par rapport à la pompe, on construit une courbe donnant l'évolution de la réflectivité en fonction du temps, avec une résolution de l'ordre de la durée des impulsions. Une telle résolution s'obtient en employant la lumière comme outil de conversion de l'espace en temps. En effet, pour retarder la sonde il suffit d'allonger son trajet. La lumière est tellement rapide qu'un retard aussi court qu'une picoseconde correspond à une distance de 0,3 mm, très facile à réaliser expérimentalement.

De simples oscillations

Dans certains cas des oscillations sinusoïdales apparaissent sur les mesures (voir la figure 1). Ces oscillations se situent dans la gamme des fréquences Brillouin, c'est à dire la gamme des phonons acoustiques, entre le giga et le téraHertz. Elles ont été observées à de nombreuses reprises mais souvent de façon fortuite. Très sensibles à la longueur d'onde du faisceau de détection, autrement dit à sa couleur, ces oscillations et leur dépendance en longueur d'onde constituent le sujet d'étude de ce mémoire. Ainsi s'explique le choix du titre : Oscillations Brillouin en acoustique picoseconde colorée. Avant de détailler davantage la nature et l'intérêt de telles oscillations, leur principale qualité peut être énoncée : ces oscillations accompagnent les impulsions acoustiques au cours de leur propagation en donnant des informations locales sur les échantillons testés.

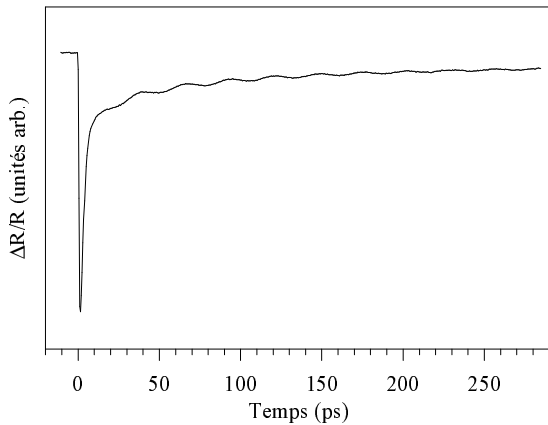


FIG. 1 – Mesure d’acoustique picoseconde sur un substrat de Ge (100) : courbe de réflectivité en fonction du temps. Le pic initial est causé par l’excitation des électrons de la surface. Le fond décroissant est dû à des phénomènes de relaxation. Sur ce fond apparaissent des oscillations, dont la fréquence est ici de 37 GHz. Longueurs d’onde de pompe : 809 nm, de sonde : 1166 nm.

2 Historique et situation actuelle

Une découverte fortuite

En 1984 un groupe de physiciens de l’université de Brown (RI, Etats-Unis) détecte d’étranges oscillations dans des expériences pompe-sonde à l’échelle de la picoseconde [79]. Il s’avère que les propriétés optiques des échantillons n’ont pas seulement été modifiées par l’absorption de photons. Un autre phénomène est mis en évidence, la présence d’ondes acoustiques à des fréquences dépassant considérablement les limites des transducteurs connus. Dès 1986 la théorie est établie et la plupart des potentialités de la technique sont suggérées, parmi lesquelles on peut lire : « It should be advantageous to select the probe frequency in a spectral region where the piezo-optical constants of the studied material are large » [77], mais les sujets d’études sont vastes et cette piste a été très peu défrichée [37]. Ce groupe initial essaime dans diverses directions, et H. J. Maris est aujourd’hui la référence incontournable du domaine. Certains de ces pionniers ont d’ailleurs développé un appareil industriel de caractérisation (Metapulse, Rudolph Technologies [69]) diffusé actuellement dans l’industrie microélectronique.

Un développement important

La technique est ensuite reprise dans la décennie 1990 par deux nouveaux groupes, dirigés par O. B. Wright au Japon (découverte de mécanismes de détection alternatifs) et par B. Perrin à Paris (mesure de la phase et de l’amplitude réfléchies avec un montage interférométrique). Indépendamment de ce mouvement, et même, préalablement, le groupe de K. Nelson (MIT, MA, Etats-Unis) développe dès 1980 [52, 53] une technique proche, initialement centrée sur des ondes de surface à des fréquences légèrement inférieures (20 GHz tout de même) qui fait elle aussi l’objet d’un développement industriel (Philips AMS [59]), d’ailleurs concurrent de Metapulse. . . Aujourd’hui de nombreux groupes publient régulièrement des résultats obtenus par acoustique picoseconde [13], particulièrement en France, où l’on peut compter six équipes réparties sur quatre sites (chronologiquement : Paris, Lille, Le Mans et Bordeaux). Il faut ajouter à cela que des groupes issus d’horizons différents mènent des recherches avec des techniques convergentes. Les échanges entre tous ces groupes sont d’ailleurs fréquents mais les diverses appellations de la technique (acoustique picoseconde, spectroscopie femtoseconde, spectroscopie de phonons induits par laser, diffraction hétérodyne. . .) montrent que la culture n’est pas encore commune et que le champ des applications est vaste.

L'émergence des oscillations Brillouin

A peine la technique d'acoustique picoseconde est-elle découverte, qu'en 1986 Maris et son équipe inventent une variante baptisée « picosecond interferometry » [78]. Ils montrent l'intérêt des oscillations Brillouin pour la mesure de la vitesse du son connaissant l'indice et discutent de leurs aspects fréquentiels. Ils montrent ensuite comment employer la durée des oscillations Brillouin pour mesurer la vitesse du son et évaluer l'indice en connaissant l'épaisseur du film concerné [29]. Puis vient la mesure de l'atténuation ultrasonore à partir des oscillations Brillouin et l'étude des effets de forme d'impulsion sur leur amplitude [45]. Les effets de forme provenant globalement du rapport entre la longueur d'onde de sonde et la longueur de l'impulsion, cette publication est très pertinente lorsque la longueur d'onde de la sonde est amenée à varier. Les oscillations Brillouin restent malgré tout relativement peu étudiées et il faut attendre plusieurs années pour que d'autres équipes innovent sur ce sujet. En 2002 ce sont Bosco *et al.* [6] qui communiquent en premier sur l'effet très fort de la longueur d'onde de sonde sur les oscillations Brillouin sans savoir que cet effet, découvert récemment à Lille, est déjà étudié et donne lieu peu après à des communications régulières [15, 14, 11, 19]. A cette époque un autre groupe (Lim *et al.* [44]) montre comment suivre une transition de phase en mesurant l'évolution de la période des oscillations Brillouin en fonction de la température. Vient ensuite l'emploi de ces oscillations pour évaluer la rugosité d'une surface et pour améliorer la précision des analyses des mesures [66]. Très récemment encore elles ont servi à démontrer la génération d'ondes acoustiques dans une jonction p-n [46].

Toutefois, ces oscillations ont souvent été exploitées *a posteriori* plutôt que recherchées, et les effets de longueur d'onde ont été relativement peu étudiés. Or, c'est la thèse défendue dans ce mémoire, les oscillations Brillouin sont une source d'information très riche, il est possible de favoriser leur apparition et les effets de longueur d'onde sont décisifs.

La spécialité Lilloise

La thématique centrale du groupe Lillois, créé en 1998, est de s'intéresser aux effets de longueur d'onde en acoustique picoseconde. Ces études ont débuté dans les métaux et se sont poursuivies au travers de l'analyse des oscillations Brillouin dans les semi-conducteurs puis les diélectriques [13]. Peu de groupes ont étudié spécifiquement cette question jusqu'à présent, mais l'apparition récente de sources accordables automatiques et les progrès faits dans la génération de supercontinuum sont favorables à un développement du sujet.

3 Présentation du sujet de thèse

Originalité des oscillations Brillouin

Ce qui est frappant dans les oscillations Brillouin, c'est que ce sont des structures régulières, très reconnaissables et souvent d'amplitude importante, alors que la recherche d'échos sur les courbes hachées par le bruit de fond tourne parfois à la divination. Les premières observations montrant que la présence de ces oscillations dépend fortement de la longueur d'onde incitèrent à s'y intéresser, puisque ces effets correspondaient tout à fait à la thématique du groupe. Par rapport aux analyses usuelles, ces structures semblaient apporter une information riche et relativement facile à analyser. En particulier, si l'analyse d'échos peut être comparée à l'échographie médicale, les oscillations Brillouin permettent de voir une sonde acoustique se déplacer à l'intérieur de l'échantillon, à la manière d'une caméra qui se déplacerait dans le corps du patient. Si

le principe de ces oscillations est déjà bien connu, en revanche aucune étude systématique n'a encore été menée.

Organisation du mémoire

Les oscillations Brillouin forment le sujet d'étude de ce mémoire qui, s'il ne prétend pas être exhaustif sur le sujet, s'attache néanmoins à mettre en évidence les mécanismes essentiels qui gouvernent ces oscillations, et propose de nouvelles applications. La première partie rappelle les principes de l'acoustique picoseconde et détaille les mécanismes physiques mis en jeu, puis s'attache particulièrement au cas des oscillations Brillouin. Cette connaissance théorique sera ensuite mise à profit dans les deux parties suivantes pour identifier ou prévoir les phénomènes observés expérimentalement. La seconde partie met plus particulièrement en évidence les effets causés par la structure électronique des semiconducteurs. Ces effets sont d'autant plus intéressants qu'ils concernent les matériaux fondamentaux de l'industrie électronique, celle qui emploie déjà le plus l'acoustique picoseconde comme moyen de caractérisation. La troisième partie s'attache d'abord à l'identification des propriétés d'usage les plus courantes des films minces transparents, souvent employés eux aussi dans l'industrie électronique : épaisseur, vitesse du son (paramètre lié au module élastique) et indice optique. La mesure de ces éléments dans les composants à base de films minces est loin d'être évidente par les techniques actuelles, comme en témoigne l'importance des efforts de recherche sur cette thématique [73]. Ces propriétés connues, il devient alors possible d'analyser plus finement les mesures pour en tirer d'autres informations sur ces matériaux. Il se dégage ainsi l'idée que l'analyse approfondie des expériences doit prendre en compte la dépendance simultanée à de nombreux paramètres, d'où l'utilité de connaître les effets particuliers de chacun de ces paramètres.

Première partie

Acoustique picoseconde, oscillations Brillouin et longueur d'onde

Cette partie décrit les trois piliers sur lesquels s'articule ce travail. Le principal pilier est l'analyse de la physique des expériences. Les phénomènes mis en jeu sont présentés progressivement, d'abord de façon descriptive puis analytiquement, avec un accent particulier mis sur les oscillations Brillouin et leur dépendance en longueur d'onde. Le second pilier est expérimental : le montage du laboratoire, conçu pour explorer de nouveaux domaines ou vérifier des hypothèses, apporte en retour des observations intrigantes. De moindre importance mais indispensable, le troisième pilier est numérique. Les programmes de simulation facilitent la réflexion et le recul sur des situations où les calculs manuels sont vite fastidieux.

1

Les principes physiques

1.1 Approche qualitative

1.1.1 Géométrie

On considère ici une expérience consistant à échauffer brutalement un échantillon semi-infini sur une profondeur faible devant la surface échauffée. Le problème est ainsi unidimensionnel et seules des ondes longitudinales planes parallèles à la surface sont émises.

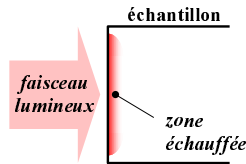


FIG. 1.1 – Géométrie de l'expérience

1.1.2 La génération des ondes élastiques

Un coup de chaleur

C'est une impulsion lumineuse très brève appelée *pompe* (120 fs) qui est employée pour échauffer la surface d'un échantillon de quelques Kelvin. L'élévation de température de la surface suit un profil exponentiel dépendant de l'absorption optique du matériau. La profondeur caractéristique de pénétration de la lumière est appelée *longueur d'absorption* et est limitée typiquement à une dizaine de nanomètres dans les matériaux fortement absorbants comme les métaux. Cette élévation de température provoque une dilatation, mais celle-ci est contrariée par l'inertie du matériau : à l'instant précis où la lumière est absorbée, les atomes n'ont pas encore eu le temps de se déplacer (fig. 1.2). Le résultat est qu'à cet instant initial la surface de l'échantillon subit une contrainte de compression hors équilibre. La relation fondamentale de la dynamique fait que

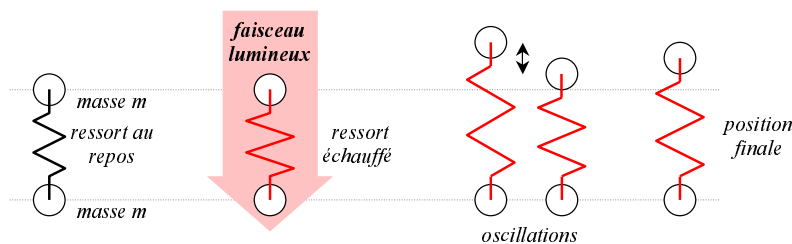


FIG. 1.2 – Étapes successives de l'expérience.

la matière de l'échantillon subit alors une accélération, à l'origine des ondes acoustiques et de leur propagation.

Des électrons excités

Ce schéma explicatif est en réalité incomplet. Le processus de génération décrit ci-dessus et qualifié de thermoélastique ne suffit pas à rendre compte de toutes les observations expérimentales. Il faut alors raffiner la description. La pompe est en effet absorbée par les électrons du matériau. Lorsque ceux-ci se thermalisent, ils émettent leur surplus d'énergie essentiellement sous forme de phonons cohérents (l'impulsion acoustique) et incohérents (la dilatation du matériau à l'équilibre mécanique). C'est ce qui se produit typiquement dans les métaux faiblement absorbants. Toutefois ces électrons excités peuvent avoir un déplacement balistique préalable à leur thermalisation, et en conséquence l'extension spatiale de la zone échauffée peut être significativement plus grande que la longueur d'absorption. Cet effet est particulièrement sensible dans les matériaux très conducteurs comme l'Aluminium (Al). Ce matériau est pourtant privilégié pour la génération d'ondes acoustiques car lorsqu'il est déposé en film mince (typ. 10 nm) les électrons balistiques restent confinés dans le film et y provoquent un échauffement quasiment uniforme. Un autre effet se produit lorsque les électrons, même thermalisés, ne retrouvent pas immédiatement leur état au repos. Ce changement d'occupation des états modifie les relations interatomiques et provoque une déformation par la biais des *potentiels de déformation*. Ceux-ci peuvent être positifs ou négatifs, conduisant à une dilatation ou à une rétraction, dans ce cas opposée à la dilatation provoquée thermiquement. Ce processus est fréquent dans les semi-conducteurs, en particulier dans le silicium (Si) où les contributions thermiques et électroniques sont en général opposées [27]. La manifestation macroscopique de cet effet peut heureusement être décrite elle aussi par un profil exponentiel décroissant superposé au profil de température, de sorte que la modélisation de la déformation initiale n'a pas besoin, en général, de décrire le détail du comportement électronique. L'ordre de grandeur du déplacement de la surface provoqué par la pompe, pour un film d'Al de 10 nm dans les conditions usuelles de notre montage, est d'environ $5 \times 10^{-12} m$ soit 0,05 Å pour un échauffement de 20 K.

1.1.3 Les ondes élastiques

Des hypersons

Les ondes générées par l'impulsion lumineuse initiale sont elles-mêmes sous la forme d'une impulsion acoustique, dont l'extension peut être très courte, (20 nm par exemple), ce qui fait leur intérêt pour sonder les micro- et nanostructures. Cette impulsion a alors une durée déterminée par la vitesse du son dans le matériau, typiquement 5000 m/s ou encore... 5 nm/ps ! Sa durée atteint ainsi 4 ps pour notre exemple, soit une fréquence centrée autour de 250 GHz. Le comportement des ondes acoustiques est encore à ces échelles très semblable à l'acoustique macroscopique et la description usuelle convient tout à fait.

Une forme remarquable

A l'instant initial, l'impulsion lumineuse crée en fait deux impulsions acoustiques de forme identique mais de directions opposées (fig. 1.3). La première se dirige vers l'intérieur de l'échantillon, et la seconde se réfléchit immédiatement sur la surface libre puis repart elle aussi vers l'intérieur de l'échantillon. La réflexion sur la surface libre change le signe de la déformation et l'impulsion acoustique résultante prend une forme bipolaire.

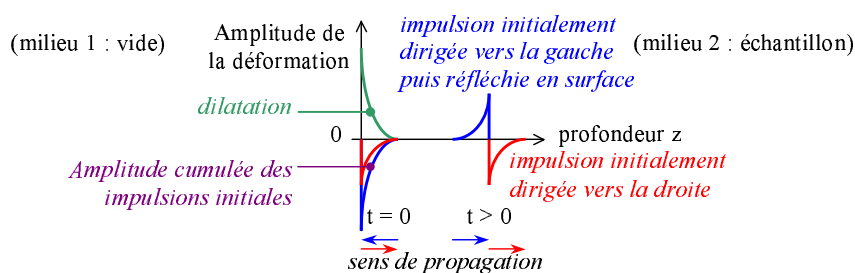


FIG. 1.3 – Génération en surface : formation d’une impulsion bipolaire.

Un comportement classique

Lorsque cette impulsion acoustique rencontre une interface acoustique (désaccord d’impédance), l’impulsion initiale se sépare en deux contributions, l’une transmise et l’autre réfléchi. Dans la plus simple des géométries, la partie réfléchi retourne alors vers la surface où elle est à nouveau réfléchi avant de poursuivre sa propagation. Cet exemple simple, illustré fig.1.4, est utile pour décrire l’étape suivante : la détection.

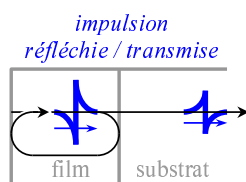


FIG. 1.4 – Expérience dans un film mince sur un substrat d’impédances acoustiques différentes. L’impulsion initiale est séparée en deux à l’interface film/substrat. L’impulsion réfléchi à l’interface est ensuite à nouveau réfléchi à la surface libre.

1.1.4 Détection des ondes élastiques, cas 1/3 : échantillon opaque

La détection : une affaire d’indices

L’acoustique picoseconde met en œuvre un mécanisme original pour la détection des ondes acoustiques, par la mesure du coefficient de réflexion optique de l’échantillon. Lorsqu’une impulsion acoustique est proche de la surface, dans la zone où pénètre le faisceau sonde, les modifications d’indice provoquées par l’impulsion acoustique affectent la façon dont la lumière est réfléchi. Cet effet n’est pas dû au déplacement de la surface (c’est en revanche ce que mesurent les techniques de vibrométrie laser classiques). Quand l’échantillon est opaque, la sonde ne ressent les effets de l’impulsion acoustique qu’à proximité immédiate de la surface. Le reste du temps l’impulsion n’a aucun effet sur la mesure. Cette signature localisée dans le temps est appelée un *écho* (voir fig. 1.5). Comme dans ce cas la génération et la détection de l’impulsion acoustique se font dans le matériau de la surface, celui-ci est nommé *transducteur*. Par extension, ce nom est conservé même lorsque la détection se fait dans une autre portion de l’échantillon.

Couplage élasto-optique

L’impulsion acoustique affecte l’indice optique $\tilde{n} = n + i\kappa$ du matériau, dont la partie imaginaire κ caractérise le degré d’opacité. On décrit ce couplage élasto-optique par la relation phénoménologique suivante : la variation d’indice $\Delta\tilde{n}$ est proportionnelle à la déformation locale η via le coefficient élasto-optique $\frac{\partial\tilde{n}}{\partial\eta}$,

$$\Delta\tilde{n} = \left(\frac{\partial\tilde{n}}{\partial\eta} \right) \eta. \quad (1.1)$$

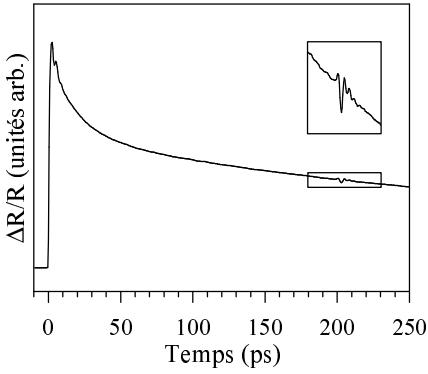


FIG. 1.5 – Mesure sur Al(12nm)/Si₃N₄(850nm)/Si. Sur un fond de forme classique (pic initial puis décroissance lente) se superpose vers 200 ps une perturbation appelée écho (encadré). Elle apparaît au moment où l'impulsion acoustique, générée à l'origine des temps à la surface de l'échantillon, atteint de nouveau cette surface après un aller-retour dans le bi-couche Al/Si₃N₄. $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 805 \text{ nm}$.

Cette relation est en fait tensorielle mais une relation scalaire suffit pour les expériences décrites dans ce manuscrit. Dans la silice ce coefficient vaut $-0,4$ mais il peut être considérablement plus important dans les semiconducteurs et prendre une valeur complexe. Il conduit à une variation relative de réflectivité $\Delta R/R$ de l'ordre de 10^{-6} , valeur faible mais mesurable.

1.1.5 Détection des ondes élastiques, cas 2/3 : échantillon transparent

L'arrivée des oscillations Brillouin

Pour un échantillon transparent comportant au moins une interface optique (discontinuité d'indices) la situation est différente puisque la sonde atteint l'impulsion acoustique en permanence. On assiste alors à un phénomène intéressant : l'impulsion acoustique peut être décrite comme un miroir faiblement réfléchissant, et la lumière réfléchie sur les interfaces de l'échantillon interfère avec celle réfléchie par l'impulsion. Or, l'impulsion est en mouvement, de sorte que les interférences sont alternativement constructives et destructives (voir fig. 1.6). L'intensité réfléchie par l'échantillon est ainsi modulée sinusoidalement par le déplacement de l'impulsion acoustique, ce qui se traduit par des oscillations sur les mesures appelées *oscillations Brillouin* (voir fig.1 p. 2).

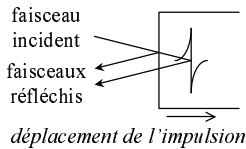


FIG. 1.6 – Principe des oscillations Brillouin. Les faisceaux réfléchis sur la surface et sur l'impulsion voient leur différence de marche évoluer au fur et à mesure du déplacement de l'impulsion. Il en résulte des interférences alternativement constructives et destructives, à l'origine des oscillations Brillouin.

Ordres de grandeur

La fréquence f de ces oscillations dépend du rapport entre la longueur d'onde de la sonde (λ_{sonde}) dans l'échantillon (λ_{sonde}/n) et la vitesse v à laquelle se déplace l'impulsion :

$$f = \frac{2nv \cos \theta}{\lambda_{\text{sonde}}}. \quad (1.2)$$

Le facteur 2 provient du fait que la sonde réfléchie voit son chemin optique augmenter du double du déplacement de l'impulsion, et le facteur $\cos \theta$ prend en compte une éventuelle inclinaison du faisceau sonde par rapport à l'échantillon. Ces éléments seront détaillés par la suite.

Cette formule est utile pour calculer l'ordre de grandeur de la période des oscillations Brillouin. Dans la silice (SiO₂) en incidence normale ($\theta = 0$), avec λ_{sonde} , v , et n valant respectivement

400 nm, 5,9 nm/ps et 1,45 on obtient une période de 23 ps. Au cours de cette durée l'impulsion acoustique se déplace de 140 nm environ. On voit là que cet effet est tout à fait dans les plages temporelles et dimensionnelles explorées par la technique.

1.1.6 Détection des ondes élastiques, cas 3/3 : film mince transparent et impulsion déformante

Un effet d'épaisseur...

En cas d'impulsion acoustique d'intégrale non nulle, un effet supplémentaire est sensible. Dire que l'intégrale de la déformation n'est pas nulle, c'est une façon formelle de dire que la présence de l'impulsion modifie l'épaisseur du film où elle se trouve, d'où l'appellation d'impulsion déformante. En conséquence, le chemin optique entre les extrémités du film est modifié lui aussi, et donc la relation de phase entre les faisceaux réfléchis sur chacune de ces interfaces est affectée. Autrement dit leur relation d'interférence change quand une impulsion déformante entre ou sort d'un film mince transparent, ce qui provoque un changement de la réflectivité de l'échantillon. Ce changement rapide de réflectivité est appelé un *saut* de réflectivité. Cet effet, extrêmement sensible à la longueur d'onde de la sonde est abordé dans la thèse de G. Caruyer [8] (voir fig. 1.7).

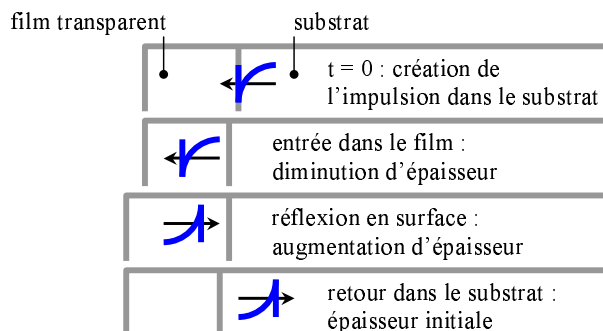


FIG. 1.7 – Expérience avec impulsion compressive générée dans le substrat. Chaque fois que l'impulsion rencontre une interface du film transparent, celui-ci change d'épaisseur.

... et d'indices

Ce n'est pas tout... Si l'on s'intéresse à l'indice, il faut comprendre que *via* le coefficient élasto-optique, l'indice effectif du film, c'est à dire l'indice moyen, est légèrement modifié par une impulsion déformante. Si l'impulsion est strictement compressive, par exemple, la zone comprimée a un indice différent du reste du film. En conséquence le chemin optique entre les extrémités du film est modifié avec les mêmes effets qu'un changement d'épaisseur. Les sauts de réflectivité ont donc deux contributions, l'une due au changement d'épaisseur, l'autre au changement d'indice.

1.1.7 « Diffusion Brillouin résolue en temps » [63]

Le nom des oscillations Brillouin provient du fait qu'elles peuvent être vues comme le résultat d'un processus Raman élémentaire, illustré figure 1.8 : un photon incident est absorbé par un électron au repos, qui absorbe ensuite un phonon acoustique puis retourne à son état initial en réémettant un photon. Dans ce processus l'énergie et les vecteurs d'onde sont conservés. Comme ces deux grandeurs sont liées par la relation $E = \frac{\hbar v}{2\pi} k$ avec v la vitesse et k le vecteur des ondes considérées, seuls les phonons dont le vecteur d'onde est le double de celui des photons de sonde obéissent aux règles de conservation. Leur fréquence est justement celle des oscillations

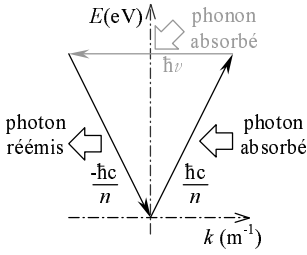


FIG. 1.8 – Schéma du processus Raman élémentaire d'excitation/relaxation d'un électron. L'électron effectue un parcours dans le plan (E, k) et retrouve sa position initiale après relaxation. À côté de chaque interaction le rapport E/k de la particule absorbée ou réémise est indiqué. Le seul phonon permettant de fermer la boucle a un vecteur d'onde deux fois plus grand que celui des photons incidents et réémis.

Brillouin. Comme ces phonons sont cohérents, leur phase peut être considérée. A cause de la règle de conservation de phase ceux-ci déterminent la phase des photons rétrodiffusés qui interfèrent alors avec les photons réfléchis par ailleurs pour donner les oscillations Brillouin.

1.2 Un peu de formalisme quand même

Un modèle unique décrivant la physique de l'acoustique picoseconde est universellement reconnu. Publié dès les débuts de la technique [77] il n'a subi que quelques raffinements pour traiter des cas particuliers. Une description très détaillée est faite dans la thèse de E. Romatet [63]. On se contente ici d'en extraire les éléments utiles à la lecture de ce manuscrit. De même, le lecteur est supposé familier avec le formalisme de l'optique ondulatoire limitée la plupart du temps à des applications unidimensionnelles (dioptrés orthogonaux aux faisceaux lumineux). L'ouvrage de J. -P. Perez [60] traite cette question d'une manière complète et très lisible.

1.2.1 La génération

La déformation initiale provoquée par l'absorption d'une impulsion lumineuse a une forme dictée par la décroissance de l'onde optique dans le transducteur. Dans un échantillon semi-infini l'élévation locale de la température est :

$$\Delta T(z) = (1 - R_{pompe}) \frac{Q}{\rho S \zeta C_V} e^{-\frac{z}{\zeta}}, \quad (1.3)$$

R_{pompe} est le coefficient de réflexion optique de l'échantillon à λ_{pompe} , Q l'énergie de l'impulsion pompe, ρ la densité du matériau, S la surface illuminée, ζ la longueur d'absorption, C_V la capacité calorifique, et z la distance à la surface. La longueur d'absorption s'obtient par la relation

$$\zeta = \frac{\lambda_{pompe}}{4\pi\kappa}, \quad (1.4)$$

Par commodité de notation on emploie plus souvent une grandeur inverse : $\alpha = 1/\zeta$. L'impulsion acoustique a la même forme que le profil de température, et lorsque la génération a lieu à une surface libre la déformation se propageant vers l'intérieur de l'échantillon vaut

$$\eta(z, t) = \begin{cases} -\eta_0 e^{-\alpha(z-vt)} & \text{pour } (z - vt) > 0 \\ \eta_0 e^{\alpha(z-vt)} & \text{pour } (z - vt) < 0 \end{cases} \quad (1.5)$$

avec v la vitesse du son dans l'échantillon et η_0 l'amplitude de la déformation, reliée à ΔT dans le cas cubique ou isotrope par la relation :

$$\eta_0 = \frac{c_{11} + 2c_{12}}{2c_{11}} \beta \Delta T \quad (1.6)$$

avec β le coefficient de dilatation, et c_{ij} les constantes élastiques du matériau. Le terme en $\frac{c_{11}+2c_{12}}{c_{11}}$ vient du fait que la dilatation dans le plan du film est interdite, et le terme $\frac{1}{2}$ traduit le fait que la déformation initiale correspond à la superposition de deux impulsions de directions opposées.

1.2.2 La propagation

Les coefficients de transmission et de réflexion de la déformation à l'interface entre deux milieux numérotés 1 et 2 sont respectivement

$$R_{acc} = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2} \text{ et } T_{acc} = \frac{2Z_1}{Z_1 + Z_2} \frac{v_1}{v_2}, \quad (1.7)$$

où $Z = \rho v$ est l'impédance acoustique des matériaux. Ces grandeurs sont reliées aux constantes élastiques, en particulier c_{11} . La vitesse du son v , habituellement notée v_L car il s'agit d'ondes longitudinales, est reliée à c_{11} pour un matériau isotrope ou cubique (direction [100]) par la relation :

$$c_{11} = \rho v^2. \quad (1.8)$$

1.2.3 La détection

Principe

La détection des ondes acoustiques consiste à mesurer l'intensité d'un faisceau réfléchi sur l'échantillon. On mesure donc la variation du coefficient de réflexion optique R , notée $\Delta R = R - R_0$, avec R_0 le coefficient de réflexion au repos. R s'obtient en calculant le carré du module du coefficient de réflexion en amplitude du champ électrique, noté r_0 au repos et valant $r = r_0 + \Delta r$ en présence d'une impulsion acoustique. Comme Δr est petit, un calcul au premier ordre donne :

$$R = r \cdot r^* = R_0 + 2\text{Re}[r_0^* \Delta r] = R_0 + \Delta R, \quad (1.9)$$

en notant r_0^* le conjugué de r_0 . Le calcul de ΔR revient donc au calcul de Δr .

Effet de l'impulsion acoustique - cas de l'échantillon absorbant ou du massif semi-infini

Le calcul complet de l'effet réfléchissant d'une impulsion acoustique est détaillé en annexe A. Nous en reprenons ici le résultat final dans le cas d'un échantillon semi-infini ou suffisamment opaque ou encore suffisamment grand devant la longueur de cohérence pour qu'il n'y ait qu'une seule interface optique à considérer. Le vide porte l'indice 1, l'échantillon l'indice 2 dans la géométrie de la figure 1.3 p. 9.

A l'abscisse z , l'impulsion peut être considérée localement comme un élément partiellement réfléchissant dont le coefficient de réflexion élémentaire vaut $\delta r'(z, t) = ik_0 \left(\frac{\partial \tilde{n}_2}{\partial \eta} \right) \eta(z, t) dz$ (relation A.5). k_0 désigne le vecteur d'onde de la lumière dans le vide ($k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{sonde}}}$).

La contribution réfléchie par cet élément vaut $\delta r = t_{12} t_{21} \delta r' e^{2ik_2 z}$, avec k_2 le vecteur d'onde de la sonde dans le matériau 2 ($k_2 = k_0 \tilde{n}_2$) et t_{ij} les coefficients de transmission de i vers j . Le terme en $e^{2ik_2 z}$ traduit l'effet du matériau non perturbé sur le faisceau dans son trajet aller-retour de la surface (prise comme origine des phases) à l'impulsion élémentaire. Cela donne au premier

ordre en $\delta r'$ la variation du coefficient de réflexion de l'échantillon :

$$\Delta r = t_{12}t_{21} \int_0^{+\infty} \delta r' e^{2ik_2z} dz = t_{12}t_{21} \int_0^{+\infty} ik_0 \left(\frac{\partial \tilde{n}_2}{\partial \eta} \right) \eta(z,t) e^{2ik_2z} dz = t_{12}t_{21} \int_0^{+\infty} \eta(z,t) f(z) dz \quad (1.10)$$

où $f(z)$ est appelée fonction de sensibilité, qui dépend de la situation expérimentale.

Pour calculer la réflectivité de l'échantillon il suffit de remplacer η par son expression. Dans le cas qui nous intéresse (oscillations Brillouin) on emploie la relation 1.5 et on fait l'hypothèse que l'impulsion est loin de la surface (régime établi, $\alpha vt \gg 1$). Le calcul donne :

$$\Delta R = 2\eta_0 k_0 \text{Re} \left[r_0^* \frac{\partial \tilde{n}_2}{\partial \eta} \frac{4n_1 n_2}{(n_1 + n_2)^2} \frac{k_2}{k_2^2 + \left(\frac{\alpha}{2}\right)^2} e^{2ik_2 v_2 t} \right] \quad (1.11)$$

Si l'on exprime le coefficient élasto-optique sous une forme distinguant son amplitude et son argument (ou sa phase) : $\left(\frac{\partial \tilde{n}_2}{\partial \eta} \right) = \left| \frac{\partial \tilde{n}_2}{\partial \eta} \right| e^{i\phi}$, et en notant de même la constante multiplicative de l'expression précédente sous la forme d'un module C et d'un argument γ :

$$C e^{i\gamma} = 2\eta_0 k_0 r_0^* \frac{4n_1 n_2}{(n_1 + n_2)^2} \frac{k_2}{k_2^2 + \left(\frac{\alpha}{2}\right)^2}, \quad (1.12)$$

l'expression 1.11 devient :

$$\Delta R = C \left| \frac{\partial \tilde{n}_2}{\partial \eta} \right| \cos \left(\frac{4\pi n_2 v_2 t}{\lambda} + \gamma + \phi \right) \exp \left(\frac{-4\pi \kappa_2 v_2 t}{\lambda} \right). \quad (1.13)$$

Cette expression est intéressante à plusieurs titres. Elle montre d'abord que la mesure a une forme oscillante (terme en cosinus) dont la fréquence vaut $\frac{2n_2 v_2}{\lambda}$. C'est ce que l'on appelle les *oscillations Brillouin*. On remarque ensuite l'influence du coefficient élasto-optique sur la mesure : elle est proportionnelle sur l'amplitude, et additive sur la phase. La décroissance exponentielle de l'enveloppe de cette expression montre enfin que les oscillations sont plus ou moins vite atténuées selon le degré d'opacité de l'échantillon.

Dans le cas où les indices optiques et le couplage élasto-optique sont réels, $\gamma = \phi = 0 \equiv [\pi]$ et k vaut $2\pi n/\lambda$. De plus, si le milieu 1 est le vide ($n_1 = 1$) on obtient une expression en cosinus :

$$\Delta R = 2\eta_0 \frac{\partial n_2}{\partial \eta} \frac{4}{k_0(1+n_2)^2 \left(1 + \left(\frac{\alpha}{2k_2}\right)^2 \right)} \cos \left(2\pi \frac{2n_2 v_2}{\lambda} t \right). \quad (1.14)$$

Dans les deux relations ci-dessus apparaît l'importance du coefficient de couplage élasto-optique. Ce coefficient phénoménologique est très peu tabulé, excepté pour les matériaux employés spécialement pour leurs propriétés acousto-optiques, et dans des plages de longueurs d'onde limitées [68].

Dans certaines conditions il est possible de l'évaluer. Pour les matériaux transparents, l'approximation la plus simple est la loi de Gladstone-Dale $\left[\left(\frac{\partial n}{\partial \eta} \right) = 1 - n \right]$ qui ne prend en compte qu'un effet approché de la densité sur l'indice. Pour les semiconducteurs et les métaux l'expression est plus complexe. Elle fait intervenir des termes résonnants à des longueurs d'onde correspondant aux transitions électroniques (modèles de Drude-Lorentz), et l'énergie de ces transitions varie avec la déformation. Ces expressions sont davantage détaillées en annexe B. Cette annexe montre aussi les relations existant entre les différentes grandeurs usuelles décrivant le couplage élasto-optique.

Cas du film mince transparent

Dans le cas d'un film mince le calcul de réflectivité est plus compliqué que dans le cas semi-infini à cause des réflexions internes, mais son principe reste le même. Il est détaillé en annexe A. Il en ressort un effet intéressant : contrairement au cas semi-infini, la partie réelle et la partie imaginaire des oscillations Brillouin dans un film mince ne sont pas tout à fait en quadrature en général. L'expression A.15 contient en effet un terme en $e^{2ik_2z} + e^{2ik_2(d-z)}e^{2ik_2d}r_{23}^2$ (les indices 1, 2 et 3 désignant respectivement le vide, le film transparent et le substrat), qui peut être mis sous la forme $A \cos(2ik_2z + \phi_A) + iB \sin(2ik_2z + \phi_B)$ avec A et B des réels positifs différents, et ϕ_A et ϕ_B des angles différents. L'origine de ce phénomène est dans le fait que dans un film mince transparent, une des contributions à la mesure provient de la réflexion à l'arrière de l'impulsion acoustique (détail en annexe A). Lorsque le coefficient de réflexion optique à l'interface film-substrat est important, cette contribution est sensible. Une conséquence de cet effet est que comme l'amplitude mesurée dépend de l'expression $\text{Re}[r_0^* dr]$, un changement qui affecte la phase de r_0^* ou de dr affecte en conséquence l'amplitude des oscillations Brillouin.

Effet de l'angle de réfraction

Dans le cas d'une incidence oblique, la réflectivité s'obtient de la même manière qu'en incidence normale, mais en prenant garde d'inclure la dépendance angulaire des vecteurs d'onde, et des coefficients de réflexion et de transmission optique. La période des oscillations Brillouin vaut dans ce cas

$$T = \frac{\lambda}{2nv \cos \theta} \quad (1.15)$$

où θ est l'angle de réfraction du faisceau sonde à l'intérieur du film concerné.

Effet de forme d'impulsion

Dans le cas d'un transducteur mince désaccordé acoustiquement déposé sur un matériau transparent, l'impulsion acoustique initiale se réverbère à l'intérieur du transducteur en émettant un train d'oscillations dans le matériau transparent. Les faisceaux réfléchis par chacune des impulsions interfèrent [45, 9]. Il en résulte des oscillations Brillouin d'amplitude et de phase différente par rapport au cas du transducteur accordé. Cet effet n'est pas très sensible à la longueur d'onde pour la plupart des géométries traitées dans ce document. Il pourrait être sensible dans le Si avec une sonde dans le proche ultra-violet. A $\lambda_{\text{sonde}} = 370$ nm, pour une impulsion générée dans un film d'Al de 10 nm, les interférences sont destructives : la distance entre deux impulsions est exactement égale au quart de la longueur d'onde optique dans le Si. Les études fines de la phase des oscillations Brillouin pourraient y être sensibles (Partie II). Toutefois le Si est très opaque à ces longueurs d'onde et le transducteur d'Al bien accordé de sorte que cet effet est finalement négligeable.

Le point de vue fréquentiel

La présence de termes oscillants à une fréquence unique incite à regarder l'expression de la réflectivité d'un point de vue fréquentiel. On peut ainsi constater que l'amplitude des oscillations Brillouin est proportionnelle à la composante de la transformée de Fourier de l'impulsion acoustique à la fréquence des oscillations Brillouin. En effet, lorsque l'impulsion est suffisamment loin de la surface ($\alpha vt \gg 1$) l'expression 1.11 peut être mise sous la forme :

$$\Delta r = \int_{-\infty}^{+\infty} ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \eta(z,t) e^{2ikz} dz. \quad (1.16)$$

En notant $\bar{\eta}_z(\Omega)$ la transformée de Fourier spatiale de η où Ω est la variable réciproque de z il vient :

$$\Delta r = ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \bar{\eta}_z(2k). \quad (1.17)$$

Il est plus pratique d'exprimer cette relation dans le domaine temporel. En changeant successivement la variable z en vt' et t en $\frac{z'}{v}$ il vient :

$$\Delta r = ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} v \bar{\eta}_t^*(2kv), \quad (1.18)$$

ce qui indique que l'amplitude de la variation de réflectivité est proportionnelle à la composante de l'impulsion acoustique à la fréquence des oscillations Brillouin. En faisant varier la longueur d'onde de la sonde ou l'angle d'incidence la mesure de réflectivité donne accès à différentes composantes de Fourier de l'impulsion.

Lorsque les indices sont complexes, la principale différence vient de la phase des oscillations qui n'est plus nulle mais égale à l'argument du facteur complexe $r_0^* \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta} \frac{4n_1 n_2}{(n_1 + n_2)^2} \frac{k}{k^2 + (\frac{\alpha}{2})^2}$ de la relation 1.11. Dans le cas d'un échantillon transparent semi-infini, les éléments de ce terme ont des arguments petits et varient peu avec la longueur d'onde. Pour les films minces transparents ou en cas de dispersion des indices dans un échantillon semi-infini, l'effet de la longueur d'onde sur la phase des oscillations Brillouin peut être important (cas étudié dans la partie II). Une autre conséquence immédiate est que l'impulsion acoustique n'est détectée que si son spectre contient la fréquence des oscillations Brillouin.

Un effet très sensible à la fréquence est l'atténuation acoustique (exemples page 74 et suivantes). Dans les conditions usuelles celle-ci dépend en effet du carré de la fréquence [3, 65], ce qui se traduit par un facteur sur l'amplitude de la déformation en $\exp(-\alpha z)$ avec $\alpha = \delta \omega^2$ désignant ici le coefficient d'atténuation, ω étant la pulsation acoustique, δ un paramètre caractéristique et z la distance de propagation.

1.3 Particularités des oscillations Brillouin

1.3.1 Conditions d'existence

Trois conditions doivent être remplies pour que des oscillations Brillouin apparaissent sur la courbe de réflectivité d'un échantillon traversé par une impulsion acoustique. La première est la transparence du matériau sondé, qui doit être suffisante pour que les oscillations ne soient pas atténuées trop rapidement.

La seconde condition est que l'échantillon laisse une fraction de la sonde incidente entrer puis sortir de la couche à caractériser après interaction avec l'impulsion acoustique. Un film d'Al d'une dizaine de nanomètres déposé sur la surface d'un film transparent demeure par exemple suffisamment transparent pour respecter cette seconde condition. À $\lambda_{\text{sonde}}=400$ nm après deux traversées, il reste environ 10% de l'amplitude initiale du faisceau, malgré la très forte absorption de l'Al ($\kappa = 5$).

La troisième condition est l'existence d'un couplage élasto-optique fort dans le matériau caractérisé. L'amplitude des oscillations Brillouin est en effet proportionnelle au coefficient élasto-optique, noté $\frac{\partial n}{\partial \eta}$, traduisant la variation de l'indice d'un matériau en présence d'une déformation.

1.3.2 Effets de la couleur

Chaque mécanisme de l'expérience possède une dépendance en longueur d'onde, y compris la perception des effets strictement acoustiques. La longueur d'onde est souvent considérée comme une donnée fixe des expériences d'acoustique picoseconde et ses effets sont peu discutés. Pourtant, en la prenant comme paramètre ses effets se révèlent très importants.

Génération des ondes acoustiques

Aux fréquences optiques, la plupart des matériaux absorbants ont une dispersion d'indice importante. Dans les cas extrêmes ils peuvent passer de transparents à opaques : on trouve des lentilles pour l'infrarouge faites de Si, alors que celui-ci est extrêmement absorbant dans le proche UV (voir fig. 2.10 p. 35). Comme l'élévation de température, nécessaire à la génération des ondes acoustiques, est d'autant plus forte que le matériau est absorbant, la longueur d'onde de la pompe est déterminante pour l'efficacité de la génération. De plus, l'extension de l'impulsion acoustique et en conséquence son contenu fréquentiel dépendent eux aussi de l'absorption optique. La fréquence étant un paramètre important à la fois pour la propagation des ondes et pour la détection de leurs effets, c'est dès le phénomène de génération que le choix de la longueur d'onde, ici λ_{pompe} , pèse fortement sur le résultat des expériences. Lorsque l'impact des potentiels de déformation est important [27], comme ceux-ci viennent de transitions électroniques associées à une énergie particulière, l'effet de l'énergie des photons en interaction est crucial. En conséquence de tous ces effets, c'est le proche infrarouge qui est privilégié pour la génération dans l'Al (exemples en partie I), alors que c'est dans le bleu que le GaAs donne les meilleurs résultats (exemples en partie II.2).

Détection des oscillations Brillouin

Dans les descriptions précédentes, la dépendance des oscillations Brillouin à la longueur d'onde de sonde a été mentionnée, mais il convient d'y revenir spécifiquement afin de mettre en évidence combien cette dépendance est multiforme et touche tous les aspects de la détection.

La période des oscillations Brillouin est l'élément le plus évidemment dépendant de λ_{sonde} puisqu'elle y est proportionnelle. Mais elle est aussi fonction de l'indice (expression 1.15) lui-même dépendant parfois fortement de λ_{sonde} (facteur 2 dans le Si entre le rouge et le bleu). Cet effet est souvent mis à profit pour identifier les oscillations Brillouin en testant leur dépendance en longueur d'onde.

Dans les matériaux absorbants, le coefficient élasto-optique lui-même est très influencé par λ_{sonde} . Sa dépendance est double car il est affecté à la fois par les effets sur la partie réelle de l'indice (donnant la partie réelle de $\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}$) et les effets sur l'absorption optique (donnant la partie imaginaire de $\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}$). Comme l'amplitude des oscillations Brillouin est proportionnelle à $\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}$ et leur phase est celle de ce coefficient à une constante près, il y a là une autre forte dépendance des oscillations Brillouin en λ_{sonde} , employée dans ce mémoire pour favoriser l'apparition des oscillations Brillouin ou pour étudier la structure électronique des matériaux au travers du coefficient élasto-optique.

Que l'on s'intéresse aux impulsions acoustiques sous l'angle de leur forme ou de leur distribution de fréquences, chaque approche peut être discutée en termes de λ_{sonde} . Les effets de forme sont peu importants dans les travaux présentés dans ce mémoire, mais il existe d'autres situations où ils jouent un grand rôle dans l'amplitude et la phase des oscillations Brillouin [45]. Les effets fréquentiels sont très importants. Il arrive parfois que le contenu fréquentiel des impulsions soit trop bas pour donner lieu à des oscillations Brillouin lorsque la fréquence de ces dernières est trop

élevée. Il peut être utile dans ce cas de diminuer la fréquence des oscillations Brillouin par un choix adapté de λ_{sonde} . Lorsque les oscillations Brillouin sont détectables, plus leur fréquence est élevée plus elles sont sensibles à l'atténuation ultrasonore (effet quadratique). En conséquence les effets d'atténuation sont mesurables même dans des couches minces lorsque l'on peut visualiser les oscillations Brillouin à des fréquences élevées (exemples en partie III.3).

Indépendamment de l'impulsion acoustique, la structure même des échantillons joue un rôle important. La phase mais surtout l'amplitude des oscillations Brillouin est liée fortement aux éventuelles résonances optiques dans les films minces transparents (d'épaisseur très inférieure à la longueur de cohérence, d'environ $30 \mu\text{m}$), par effets Fabry-Perot multiples. Le premier effet provient des interactions entre l'impulsion et la lumière dans la couche transparente (détail en annexe A) qui se traduisent par un terme résonant quadratique dans leur expression (terme en $1/(1 - r_{mn}r_{nm}e^{2ikd})^2$ dans l'expression A.13). Le second effet vient du coefficient de réflexion de l'échantillon au repos $R = r_0^*r_0$, lui même sensible aux résonances optiques. Que l'on mesure en pratique la variation absolue de la réflectivité ($\Delta R = 2\text{Re}[r_0^*\Delta r]$), voir l'expression 1.9) ou sa variation relative ($\Delta R/R$) celui-ci intervient toujours dans le résultat. Un effet particulièrement intense est présenté fig. 1.4 p. 60 sur les oscillations Brillouin d'un film de silice.

2

Dispositif expérimental

2.1 Le cœur du montage : une source laser

Le montage du laboratoire est basé sur une source laser accordable du proche ultra-violet (UV) au proche infra-rouge (IR), entre 350 nm et 1600 nm. L'élément central est un oscillateur à cristal de saphir dopé au titane (Mira 900f [10]) délivrant des impulsions femtosecondes (120 fs) avec un taux de répétition élevé (76 MHz) dans une plage de longueurs d'onde étendue : de 700 à 990 nm. Cet oscillateur est pompé par un laser continu (Verdi [10]) et atteint une puissance moyenne maximale de 2 W. Pour étendre la gamme de longueurs d'onde du Mira deux moyens sont employés. L'un consiste à disposer un oscillateur paramétrique optique (OPO) en sortie du Mira, dont les deux jeux de miroirs et deux cristaux non linéaires (KTP [potassium titanyl phosphate, KTiOPO_4] et CTA [caesium titanyl arsenate, CsTiOAsO_4]) permettent de couvrir une gamme allant de 1050 à 1600 nm. L'autre moyen d'étendre la gamme de longueur d'onde profite lui aussi de l'énorme densité de puissance des impulsions (focalisées : 500 MW/m^2) pour générer la seconde harmonique dans un cristal de BBO (β -borate oxyde) ce qui permet de couvrir le visible et le proche UV en divisant par deux les longueurs d'onde émises par le Mira ou l'OPO.

2.2 Un montage pompe-sonde

La figure 2.1 reproduit les principaux éléments de l'expérience. Le faisceau initial est séparé en deux faisceaux pompe et sonde par une lame semi-réfléchissante. La pompe est modulée par un modulateur acousto-optique puis focalisée sur l'échantillon. La sonde est retardée de façon réglable par un rétroréflécteur monté sur une platine de translation dont la précision ($1 \mu\text{m}$ soit 6,7 fs) dépasse largement les besoins. Elle est ensuite focalisée sur l'échantillon, s'y réfléchit puis illumine une photodiode qui mesure son intensité. Pour un retard pompe-sonde donné, la photodiode mesure l'intensité moyenne qu'elle reçoit, car le temps de réaction du détecteur est bien plus grand que le taux de répétition de la source. Le signal mesuré étant constitué d'une faible variation sur un fond élevé, une détection synchrone permet d'extraire les variations d'intensité réfléchie lorsque l'échantillon est excité par la pompe modulée.

2.3 Quelques variantes

Nous disposons d'une plaque chauffante et d'un cryostat pour les études en température (part. II, chap. 2.6 p. 37). Rien ne change dans le principe de l'expérience, seul le dispositif de

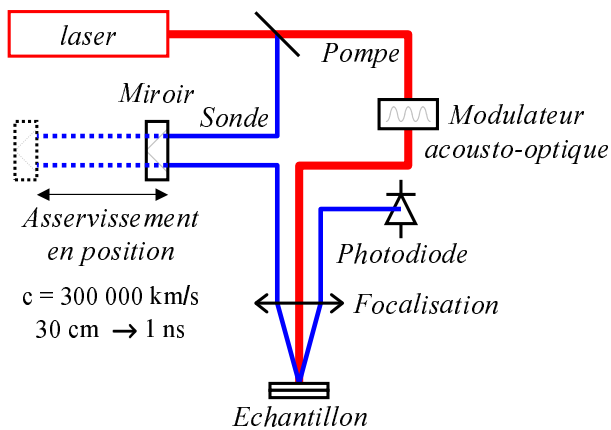


FIG. 2.1 – Schéma de principe de l'expérience.

maintien de l'échantillon est affecté. Pour des mesures avec des angles d'incidence non normaux (part. III, chap. 2 p. 63) la configuration du montage n'est presque pas modifiée non plus.

La possibilité de variantes est très vaste. D'autres équipes utilisent des montages basés sur la déflexion [83] ou la diffraction de la sonde [52], ou encore sur la mesure interférométrique des composantes réelle et imaginaire du coefficient de réflexion [58], voire sur la détection locale (champ proche optique) [70]. La génération des ondes acoustiques peut être provoquée par des impulsions lumineuses multiples [65] ou par des impulsions lumineuses profilées (figures d'interférences [52] ou focalisation ultime [67]) qui affectent la forme de l'impulsion acoustique. La structure des échantillons peut n'être pas unidimensionnelle (lignes [1] ou plots [5] déposés sur des films, colloïdes [18], échantillons anisotropes [50]) et l'échelle d'observation (de la dizaine de fs à la ns, voire au-delà) donne accès à des éléments tels que le comportement des phonons optiques [34] ou la dispersion des phonons acoustiques [32].

3

Codes de calcul

3.1 Deux applications

L'emploi de codes de calculs se révèle très pratique parce que les phénomènes concernés sont multiples et que le calcul analytique devient vite fastidieux. C'est aussi le moyen de réaliser des expérimentations numériques fort utiles pour comprendre les mesures ou pour tester des effets particuliers.

Les simulations présentées dans ce manuscrit ont été réalisées avec deux programmes, *Couches* et *Simure*. *Couches* a été développé par C. Rossignol au LMDH de l'Université Pierre et Marie Curie à Paris (Institut des NanoSciences de Paris). Ce programme très complet (traitement séparé de la pompe et de la sonde, incidence quelconque, atténuation ultrasonore) est basé sur le formalisme détaillé en réf. [65]. En particulier, les effets acoustiques sont traités dans le domaine fréquentiel. *Simure* est un programme moins ambitieux développé dans le cadre de cette thèse. Il est basé sur le calcul analytique de la variation de réflectivité induite par une impulsion de forme exponentielle et traite séparément chacune des impulsions présentes dans l'échantillon, sans discrétisation et uniquement dans le domaine temporel. L'objectif était de comparer *Couches* à un programme ayant une logique différente afin de contribuer à sa validation, mais surtout de maîtriser un code de calcul facile à reprendre (d'où le nom...). Cela permet de réaliser des variantes directement liées à nos applications, comme par exemple les calculs multiples à longueur d'onde variable avec dispersion, ou le recalcul limité aux effets de détection lorsque seule la sonde change. En l'absence de précisions c'est ce dernier programme qui est employé.

3.2 Comparaison

Les résultats donnés par les deux programmes sont très proches. Un des tests d'évaluation est reproduit fig. 3.1. Il est assez représentatif de l'accord général des deux programmes et du point qui les distingue. Sur cette figure est représentée une expérience imaginaire très simplifiée pour faciliter les comparaisons : une impulsion née en surface progresse dans l'échantillon et franchit une interface entre deux matériaux de même impédance mais de vitesse du son différente. Les propriétés optiques pour la sonde sont proches d'un film de SiO_2 sur Si. Le résultat du programme *Couches* est en tirets noirs, celui du programme *Simure* est en traits bleus, avec les mêmes paramètres matériaux pour tous les calculs.

L'amplitude comme la phase des oscillations Brillouin sont pratiquement identiques. Au passage de l'impulsion acoustique à l'interface, visible sous la forme d'un changement de fréquence des oscillations, la structure est identique pour les deux calculs mais son amplitude diffère. La

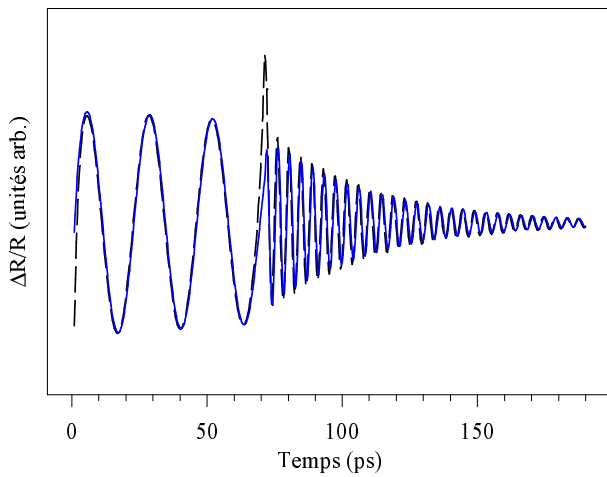


FIG. 3.1 – Comparaison des programmes Couches (tirets noirs) et Simure (ligne continue bleue) dans un échantillon imaginaire. La superposition des oscillations est excellente, les structures à l'interface ont la même forme mais leur amplitude est différente.

différence vient du fait que Couches coupe les plus hautes fréquences, ce qui est d'ailleurs tout à fait justifié physiquement. Ces observations font que pour les simulations où le raccordement à l'interface est important, les résultats obtenus avec l'un des programmes sont toujours comparés avec ceux du second programme. Jusqu'à présent les légères différences constatées entre les résultats numériques sont restées sans impact sur nos conclusions.

Deuxième partie

Propriétés électroniques des matériaux

Des expériences faites sur des échantillons métalliques ont établi que la structure électronique de cette classe de matériaux pouvait affecter fortement les mesures par acoustique picoseconde. Dans cette partie il est d'abord montré que pour des mesures faites sur des échantillons de Silicium l'effet d'un changement de longueur d'onde de la sonde est très intense, dans la continuité des observations antérieures sur des métaux. L'origine de cet effet est ensuite attribuée à la structure électronique du Silicium. La suite de cette partie est consacrée à l'extension de ces résultats à d'autres semi-conducteurs : Germanium, phosphore et arséniure de Gallium. Nous discutons alors de la nature des transitions électroniques selon leur réponse expérimentale.

Acoustique picoseconde et propriétés électroniques des métaux

1.1 Premières observations

En 2000, une couche mince de Tungstène (W) déposée sur Silicium révèle ce qui deviendra ensuite le sujet de cette partie. En faisant varier la longueur d'onde de la sonde (λ_{sonde}) au cours d'expériences d'acoustique picoseconde, les échos détectés dans cette couche voient leur forme évoluer radicalement [16]. Le modèle classique suffit à expliquer ce comportement à une condition importante : le coefficient traduisant le couplage élasto-optique doit varier avec la longueur d'onde. Ce couplage relie les modifications de la constante diélectrique à la déformation.

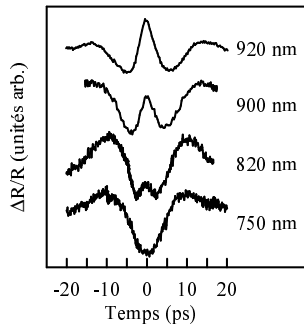


FIG. 1.1 – Echos mesurés sur un film de Tungstène. Leur forme évolue avec la longueur d'onde (ici $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}}$), indiquée à droite des mesures.

A cette époque l'origine physique de cette variabilité du coefficient élasto-optique n'est pas établie mais des rapprochements sont faits avec la spectroscopie de modulation (voir par exemple la référence [7]). Cette technique repose sur la mesure de la variation des propriétés optiques d'un échantillon soumis à une excitation. Lorsque l'excitation est mécanique, cette technique est appelée piézo-modulation. Elle met alors en jeu des principes physiques identiques à ceux présents dans les expériences d'acoustique picoseconde, bien que la géométrie et les conditions de l'expérience soient très différentes. Ce type de mesure peut permettre de relier les variations du couplage élasto-optique aux transitions interbandes [54]. Même s'il n'existe pas de mesures de spectroscopie de modulation mécanique dans le cas du W, ses transitions interbandes sont identifiées. L'une d'elles, située vers 1,6 eV (environ 790 nm, voir l'annexe C), se trouve justement dans la plage de longueurs d'ondes où l'écho change de forme.

1.2 Etude d'autres métaux

Afin de rechercher les mécanismes à l'origine de ces effets, des matériaux dont la structure électronique est mieux connue ont été étudiés : les métaux nobles et l'Aluminium (Al) [17]. Leur structure électronique présente des transitions clairement identifiées. Celles-ci provoquent d'importantes variations du couplage élasto-optique visibles sur les mesures de spectroscopie de modulation.

Pour l'Al, il existe une transition affectant significativement les propriétés optiques vers 1,5 eV (830 nm) [21]. Des expériences d'acoustique picoseconde faites autour de cette longueur d'onde montrent un comportement remarquable des échos détectés dans un film mince d'Al (voir figure 1.2). Sans expliciter les détails des formes d'écho (voir pour cela la référence [17]), on peut facilement remarquer que leur amplitude diminue à partir de 810 nm jusqu'à s'annuler à 850 nm, puis croît à nouveau jusqu'à 880 nm mais avec une forme inversée, ce qui correspond à un changement de signe du coefficient élasto-optique. L'échantillon employé est en fait composé de trois couches déposées sur un substrat de Silicium selon la structure Al(20nm)/Si₃N₄(500nm)/W(300nm)/Si, ce qui provoque des réflexions multiples à l'origine des deux échos inversés vers 260 et 270 ps.

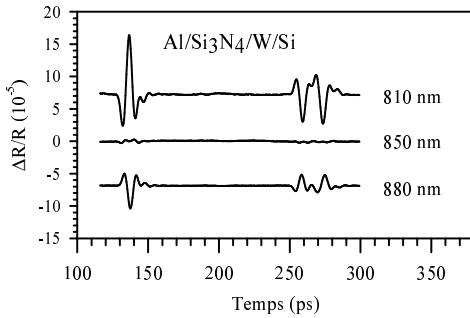


FIG. 1.2 – Echos détectés dans l'Al sur un échantillon de structure Al(20nm)/Si₃N₄(500nm)/W(300nm)/Si. Leur forme s'inverse lorsque la longueur d'onde change (indiquée à droite des mesures, avec $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}}$).

Le cas du Cuivre (Cu) est très semblable à celui de l'Al. Il présente une transition dûment identifiée vers 2,15 eV (577 nm) [33]. Des expériences faites entre 555 nm et 580 nm (fig. 1.3) montrent un comportement des échos identique à l'Al : leur amplitude décroît jusqu'à s'annuler à 575 nm puis augmente de nouveau avec un signe opposé. Ici aussi la structure de l'échantillon, Cu(20nm)/Si₃N₄(500nm)/W(300nm)/Si, explique la forme complexe des mesures.

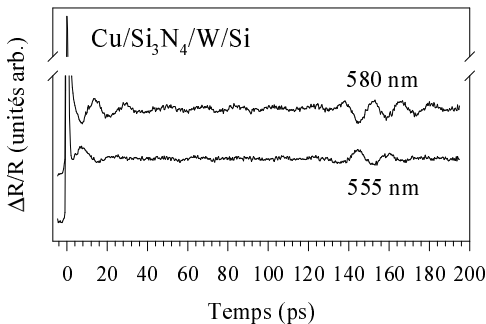


FIG. 1.3 – Echos du Cuivre à deux longueurs d'onde différentes sur un échantillon de structure Cu(20nm)/Si₃N₄(500nm)/W(300nm)/Si. Comme pour l'Al, le signe des échos change quand la longueur d'onde de sonde est modifiée.

Un intérêt pratique de ces observations est qu'elles identifient pour chacun des matériaux une longueur d'onde pour laquelle aucun écho n'est détecté. C'est d'autant plus intéressant que l'Al est couramment utilisé comme transducteur et que le Cu sert lui aussi de transducteur pour le contrôle des circuits intégrés.

À la différence du W, ces mesures peuvent être rapprochées d'expériences de spectroscopie de modulation. Que ce soit pour l'Al [64] ou le Cu [26, 64], ces expériences montrent elles aussi de

fortes variations de la dérivée des propriétés optiques précisément dans la gamme d'énergie (des photons) où les modifications d'échos ont été observées. Les auteurs expliquent ces variations par la présence de transitions électroniques dans cette même gamme d'énergie.

Ces deux exemples confirment l'hypothèse faite sur le W : les expériences d'acoustique picoseconde sur des métaux peuvent être affectées par leur structure électronique. En pratique, l'effet visible est une modification de la forme des échos acoustiques lorsque la longueur d'onde de la sonde est proche de certaines transitions électroniques.

Effets de structure électronique sur les oscillations Brillouin du Silicium

2.1 Un effet spectaculaire dans le Silicium

Un fait expérimental est à l'origine de l'extension de l'étude aux semiconducteurs. Au cours d'expériences sur un échantillon de structure $\text{Al}(13 \text{ nm})/\text{SiO}_2(420 \text{ nm})/\text{Si}$, un simple changement de longueur d'onde de sonde eut pour effet de modifier radicalement l'allure des mesures. La courbe de réflectivité usuelle, fig.2.1 (a), faite à λ_{sonde} dans le proche infra-rouge est constituée d'un pic suivi d'une décroissance lente à laquelle se superpose un écho vers 150 ps. En changeant simplement λ_{sonde} de 804 à 402 nm, fig.2.1 (b), le pic et la décroissance disparaissent pour laisser place à des oscillations d'amplitude très importante. Ces observations se reproduisent dans des échantillons différents dont le seul élément commun est le substrat de Si. L'allure des mesures sur ce semi-conducteur diffère profondément des expériences sur les métaux. Pourtant, nous verrons que les mêmes éléments (coefficient élasto-optique et structure électronique) seront invoqués pour expliquer ces observations.

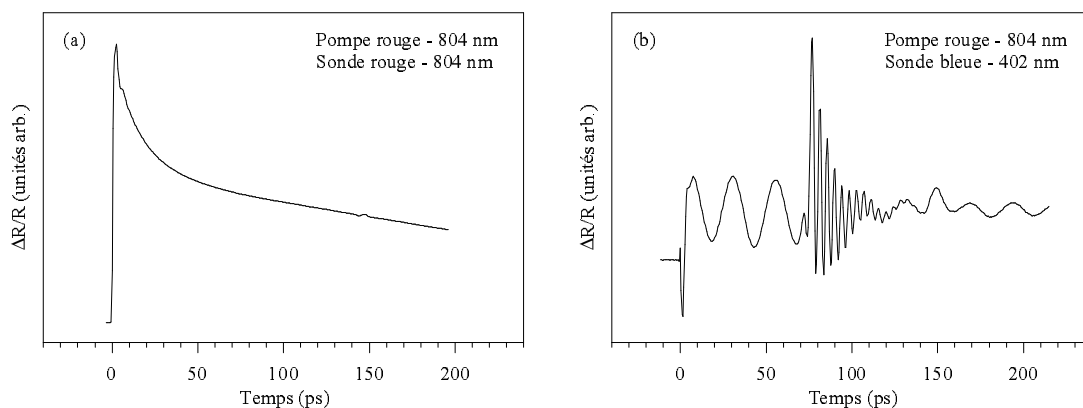


FIG. 2.1 – Effet d'un changement de λ_{sonde} . L'échantillon est bien le même dans les deux cas. . .

2.2 Analyse des premières mesures sur Al/SiO₂/Si

Description de l'échantillon

L'échantillon utilisé dans les expériences suivantes est composé d'une couche de silice pleine plaque déposée sur un substrat de Si et recouverte d'un transducteur mince d'Al selon la structure Al(13nm)/SiO₂(420nm)/Si[orientation(100)] représentée Fig. 2.2. La couche de silice est obtenue par dépôt chimique en phase gazeuse assisté par plasma (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, PECVD). La couche d'Al est déposée par évaporation sous vide. L'échantillon est élaboré à l'IEMN.

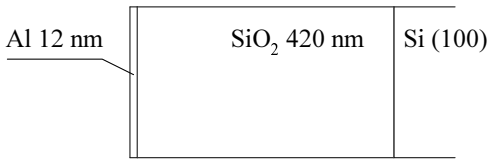


FIG. 2.2 – Structure de l'échantillon étudié. Les épaisseurs des couches sont proportionnées. Leur diamètre est millimétrique.

L'expérience classique : pompe rouge - sonde rouge

Les expériences d'acoustique picoseconde les plus courantes emploient une pompe et une sonde dans le proche infra-rouge à la longueur d'onde centrale des lasers Ti:Sa, typiquement vers 800 nm. Dans ces conditions les mesures sur notre échantillon ont l'allure présentée sur la figure 2.3 (a). Cette figure superpose les mesures présentées à la page précédente dans un but de comparaison. On identifie d'abord le pic de coïncidence pompe-sonde, qui marque l'instant

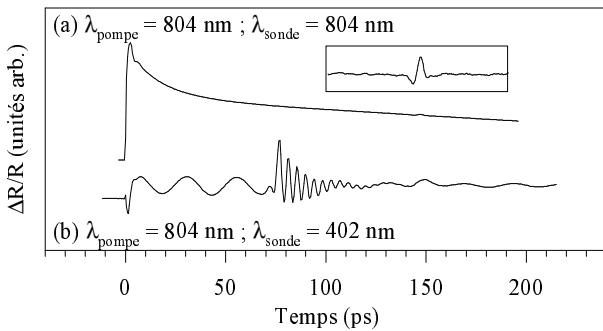


FIG. 2.3 – Comparaison des expériences à λ_{sonde} différente. L'insert agrandit l'écho que l'on devine sur la courbe (a).

où est produite l'impulsion acoustique dans le film d'Al et que nous prenons comme origine des temps. La courbe présente ensuite une décroissance due à la thermalisation de l'échantillon, et un écho apparaît vers 150 ps. Cet écho, agrandi dans l'insert, correspond à la détection dans le transducteur de la fraction de l'impulsion acoustique initiale qui s'est réfléchiée sur l'interface SiO₂/Si. Cela se montre aisément en calculant le temps d'aller-retour de l'impulsion et en vérifiant que le coefficient de réflexion de l'interface n'est pas nul. Connaissant l'épaisseur (resp. 13 et 420 nm) et la vitesse du son (resp. 6,4 et 5,85 nm ps⁻¹) de l'Al et de la silice on en déduit un temps d'aller-retour de 148 ps conforme à la mesure. Le coefficient de réflexion de l'interface SiO₂/Si vaut 0,25. Une partie de l'impulsion acoustique initiale est donc réfléchiée sur cette interface.

Le tableau 2.1 détaille les caractéristiques acoustiques de l'échantillon utiles à ces calculs. Les données matériau de l'Al et du Si sont issues de la littérature. Pour la couche de silice, l'épaisseur est issue de l'optimisation d'une simulation de la mesure à $\lambda_{\text{sonde}} = 804 \text{ nm}$ (ou à $\lambda_{\text{sonde}} = 402 \text{ nm}$ entre parenthèses). Les données calculées à partir de ces épaisseurs sont présentées de la même manière. La différence d'épaisseur entre les deux mesures, non significative pour nos résultats,

TAB. 2.1 – Propriétés acoustiques de l'échantillon Al/SiO₂/Si. Al et Si : données la littérature [47, 57, 2] sauf épaisseur d'Al : donnée de calibration du bâti de dépôt. SiO₂ : valeurs tirées d'optimisation de simulations à $\lambda_{\text{sonde}} = 804$ nm (entre parenthèses : $\lambda_{\text{sonde}} = 402$ nm).

Matériau	Al	SiO ₂	Si
Épaisseur (nm)	12	420.5 (423)	-
Densité (10 ³ kg.m ⁻³)	2,7	2,0	2,33
Vitesse du son (nm.ps ⁻¹)	6,4	5,85	8,43
Impédance acoustique (Mrayl)	17,3	11,7	19,6
Coefficient de réflexion (sens Al→Si)	-	0,2	0,25
Temps de traversée d'une couche (ps)	1,8	71,9 (72,3)	-

vient probablement du fait que les deux mesures n'ont pas été faites exactement au même point de l'échantillon.

Changement de la couleur de sonde : pompe rouge - sonde bleue

Lorsque la longueur d'onde de la sonde est divisée par deux (402 nm, couleur bleue), en gardant la même longueur d'onde de pompe, le signal est considérablement modifié. Ce changement de longueur d'onde s'obtient au moyen d'un cristal de β -borate de baryum (BBO). La figure 2.3 (b) montre la mesure obtenue sur ce même échantillon. On remarque toujours la coïncidence pompe-sonde mais cette fois-ci la courbe présente des oscillations importantes avant l'écho, encore visible vers 150 ps. Comme la pompe n'a pas changé l'impulsion acoustique est la même. Ce qui diffère, c'est la façon de détecter ses effets.

Les oscillations présentent deux domaines distincts. Dans un premier temps, elles ont une amplitude constante et une période assez grande à notre échelle (23 ps). Il s'agit d'oscillations Brillouin provoquées par le passage de l'impulsion acoustique dans la silice (nous emploierons désormais l'expression contractée : « oscillations Brillouin de la silice »). Cette explication s'appuie sur de nombreux arguments. Leur période est bien celle attendue : $T = \lambda/2nv = 23$ ps avec $\lambda = 402$ nm, $n = 1,48$ et $v = 5,85$ (tab. 2.2). Leur durée correspond au temps de traversée de la couche par une impulsion acoustique (72 ps), et elles apparaissent pratiquement dès l'origine des temps. La figure 2.4 reprend en détail le déroulement de l'expérience.

Après 72 ps les oscillations changent brusquement. Cela atteste du passage de l'impulsion acoustique dans le Si. Ici encore, la période des oscillations est bien celle attendue : 4 ps. Comme le Si est relativement absorbant à cette longueur d'onde, plus l'impulsion acoustique s'enfonce dans le substrat plus la lumière réfléchiée par cette impulsion est atténuée. On comprend ainsi la

TAB. 2.2 – Analyse des oscillations Brillouin dans l'échantillon Al(12nm)/SiO₂(420nm)/Si à 402 nm

Matériau	SiO ₂ (simulations)	Si [47, 57, 2]
Longueur d'onde sonde (nm)	402	
Indice	1,48	5,62+0,2i
Vitesse du son (nm.ps ⁻¹)	5,85	8,43
Période théorique $T = \lambda/2nv$ (ps)	23	4
Période mesurée (ps)	23	4

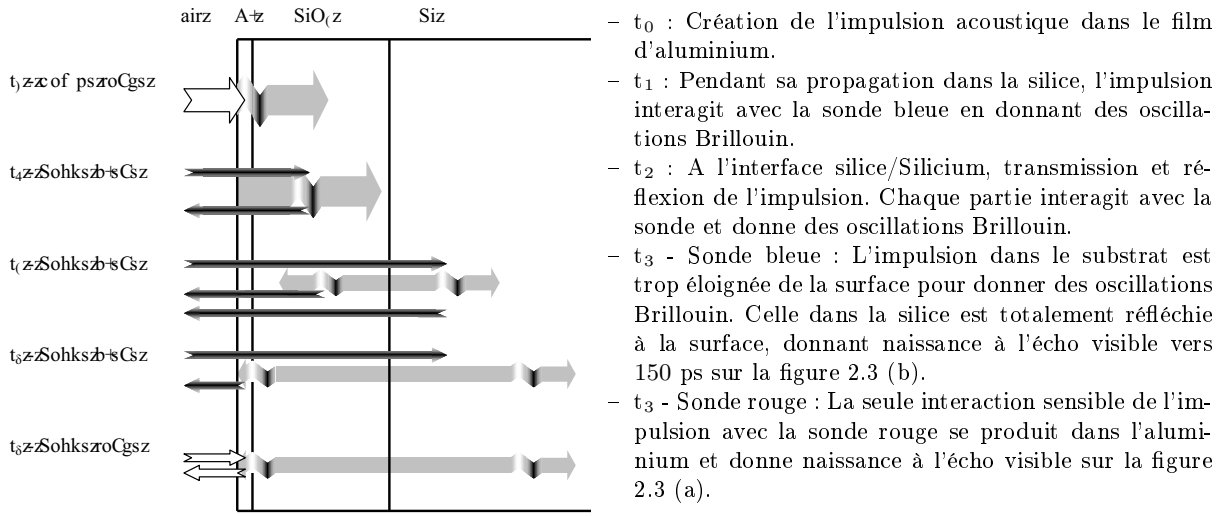


FIG. 2.4 – Description schématique des principales étapes des expériences sur l'échantillon Al/SiO₂/Si pour les deux longueurs d'onde de sonde 804 nm et 402 nm.

décroissance exponentielle de l'amplitude des oscillations Brillouin du Si. Enfin, ces oscillations sont modulées par une autre oscillation de basse fréquence. Il s'agit aussi d'oscillations Brillouin, mais causées cette fois-ci par la partie de l'impulsion acoustique initiale qui s'est réfléchi sur l'interface SiO₂/Si et qui revient vers la surface (voir Fig. 2.4 t₂) pour donner naissance à l'écho (voir Fig. 2.4 t₃ - Sonde bleue). Ensuite, on peut encore observer ces oscillations après réflexion de l'impulsion à la surface de l'échantillon. Le tableau 2.2 récapitule les principales données utiles à l'analyse de ces oscillations.

Cette étude des principaux éléments d'une seule expérience donne déjà de nombreuses informations, cohérentes avec notre interprétation du déroulement des événements. Le paragraphe suivant montre qu'une analyse plus fine et des expériences complémentaires permettent d'en être certains.

2.3 Analyses complémentaires

Pour étayer cette première analyse des mesures nous développons ici plusieurs arguments. Tout d'abord, une vérification de la dépendance des oscillations avec la longueur d'onde confirme leur origine. Ensuite, l'emploi du modèle classique pour simuler les expériences aux deux longueurs d'onde de sonde reproduit bien les mesures avec des données matériaux issues de la littérature. Enfin, l'amplitude élevée du signal de mesure donne un indice supplémentaire sur l'importance des effets sensibles vers 400 nm.

Confirmation du rôle du substrat de Si

Un premier moyen de s'assurer de l'origine des oscillations est de changer les constituants de l'échantillon. Nous avons étudié des échantillons de structure identique au premier échantillon mais dont la couche transparente (initialement de la silice) est remplacée par des couches de nature ou d'épaisseur différente. Pour chaque échantillon, les mesures ont la même allure générale : après les phénomènes transitoires du début de l'expérience, un premier train d'oscillations d'amplitude constante et de période variable précède un second train d'oscillations de grande

amplitude et dont la période (4 ps) est la même pour tous les échantillons. Le changement d'allure des oscillations se produit à des instants concordant avec l'entrée de l'impulsion acoustique dans le substrat. Ces oscillations sont donc bien dues au substrat.

Sur la figure 2.5 les échantillons ont une structure du type Al(13nm)/transparent/Si. Le matériau transparent est, respectivement, du nitrure de Si (Si_3N_4), d'Al (AlN), et de la silice d'une épaisseur différente du premier échantillon (500 nm au lieu de 420 nm). A chaque fois, le Si marque sa présence par des oscillations amorties de grande amplitude et de haute fréquence. De même, Bosco et al. [6] ont reporté ce type de mesures dans des échantillons de structure NiFe(10nm)/NiO(100nm)/Si où le NiFe sert de transducteur et le NiO est transparent.

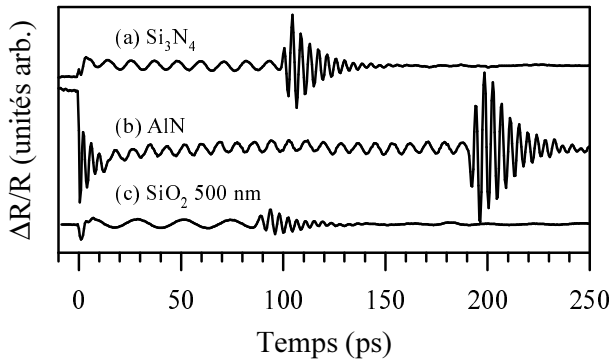


FIG. 2.5 – Exemples d'oscillations Brillouin du Silicium dans des échantillons de structure Al(13nm)/transparent/Si où le matériau transparent est : (a) du nitrure de Silicium, (b) du nitrure d'Aluminium, (c) une couche de silice de 500 nm d'épaisseur.

Nous avons vu dans la première partie (relation 1.15) que la période des oscillations Brillouin dépend de la longueur d'onde de la sonde. Ce point est vérifié en mesurant la période des oscillations attribuées au Si à différentes longueurs d'onde. La courbe sur la figure 2.6 représente la période théorique des oscillations Brillouin calculée à partir de la relation $T = \lambda/2nv$ et des indices de la littérature [2]. Celle-ci concorde avec les mesures représentées par des croix. La période des oscillations est la même que celle théoriquement attendue : il s'agit bien d'oscillations Brillouin du Si.

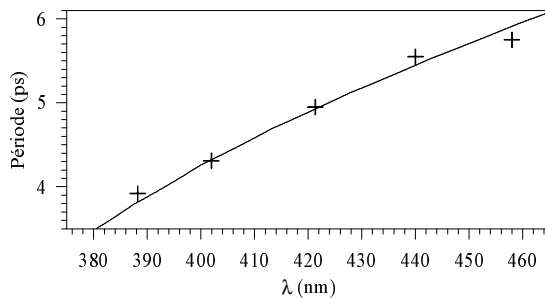


FIG. 2.6 – Période des oscillations Brillouin du Si. Courbe : calcul avec les indices de la réf. [2]. Croix : mesures.

Un modèle unique pour toutes les longueurs d'onde

La description des phénomènes faite jusqu'à présent suffit pour rendre compte des informations principales fournies par la mesure en sonde bleue. Une analyse plus approfondie peut être menée par comparaison avec des simulations numériques. Les figures 2.7 et 2.8 montrent qu'en employant des données tirées de la littérature [47, 57, 2] et du calibrage des bâtis d'élaboration des échantillons il est possible de reproduire très fidèlement les courbes expérimentales à $\lambda_{\text{sonde}} = 804$ nm comme à $\lambda_{\text{sonde}} = 402$ nm. Malgré la grande différence entre les deux expériences, c'est le même modèle qui a servi à les décrire. D'une simulation à l'autre les indices sont simplement modifiés en correspondance avec la longueur d'onde. Les meilleurs résultats sont obtenus

avec une couche de silice dont l'épaisseur diffère très légèrement (de 25 Å) d'une simulation à l'autre. Cette différence pourrait s'expliquer par un léger changement de position du point de mesure entre les deux expériences et n'a qu'une incidence minime sur le résultat. En revanche, le coefficient $\left(\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}\right)$ doit subir de profondes modifications au changement de longueur d'onde. Pour étudier ces modifications, il convient de revenir sur chacune des simulations.

La première simulation, représentée Fig. 2.7 est faite dans le cas où la sonde est rouge (804 nm). Pour faciliter les comparaisons nous avons retranché le fond décroissant de l'expérience afin de ne garder que la contribution acoustique dans la zone située autour de l'écho. Le calcul reproduit bien la position et la forme de l'écho acoustique situé vers 150 ps bien qu'il soit plus étroit, peut être à cause de l'atténuation des plus hautes fréquences. Les répliques après l'écho proviennent du désaccord acoustique entre l'Al et la silice. En plus de l'écho, la courbe simulée présente des oscillations Brillouin dues à la silice et au Si. Leur amplitude a été ajustée pour correspondre au niveau apparent de bruit sur la mesure. Vraisemblablement leur amplitude réelle est inférieure, mais cette évaluation donne des valeurs utiles pour la comparaison avec la mesure à 402 nm.

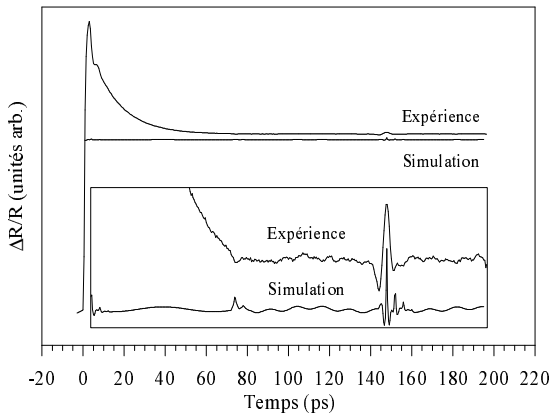


FIG. 2.7 – Mesure et simulation pour l'expérience sur Al/SiO₂/Si à $\lambda_{\text{sonde}}=804$ nm. La mesure est déformée car la contribution thermique, approchée par un terme parabolique, est soustraite dans la zone de l'écho.

La seconde simulation, Fig. 2.8, correspond à la mesure avec une sonde bleue (402 nm). La courbe simulée reproduit très bien la mesure. Quelques différences sont visibles aux points de raccordement des oscillations vers 75 ps. Cela semble attester de la grande sensibilité du dispositif expérimental aux effets des interfaces.

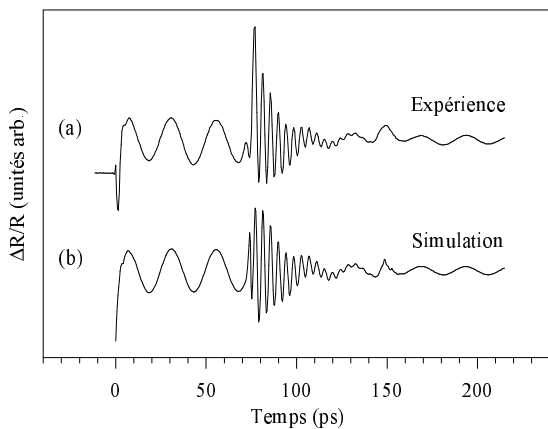


FIG. 2.8 – Mesure et simulation de l'expérience sur Al/SiO₂/Si à $\lambda_{\text{sonde}}=402$ nm. C'est le même modèle que celui utilisé pour la simulation à $\lambda_{\text{sonde}}=804$ nm. La différence s'explique par le changement des coefficients optiques et surtout élasto-optiques.

La rareté des références pour les coefficients élasto-optiques impose des précautions pour leur comparaison. Pour avoir un ordre d'idée nous avons comparé le module des coefficients élasto-

optiques de la silice et du Si normés par celui de l'Al. Le rapport $\left| \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta} / \frac{\partial \tilde{n}_{Al}}{\partial \eta} \right|_{402} / \left| \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta} / \frac{\partial \tilde{n}_{Al}}{\partial \eta} \right|_{804}$ vaut environ 3 pour la silice comme pour le Si. Compte-tenu du niveau résiduel du bruit à 804 nm ces rapports sont certainement minimisés. La première hypothèse était que les coefficients élasto-optiques de la silice et du Si sont plus élevés dans le bleu que dans le rouge, mais elle est mise en doute puisque des oscillations Brillouin sont facilement détectées dans la silice en sonde rouge pourvu qu'elle ne soit pas recouverte d'Al, et les valeurs du coefficient élasto-optique de la silice restent constantes dans la littérature au moins jusqu'à 486 nm [4], ce qui est attendu puisque l'énergie des premières transitions électroniques de ce diélectrique est très élevée : de 6 à 10 eV selon la pureté. Sans se prononcer définitivement sur le cas du Si, il semble que la réponse de l'Al (pic électronique, décroissance thermique et coefficient élasto-optique) soit très forte en rouge et quasi inexistante en bleu. La très forte réponse de l'Al dans le rouge, utile pour la détection d'échos, écrante ainsi les effets des autres constituants de l'échantillon.

La simulation numérique des expériences avec un modèle unique permet de reproduire les courbes expérimentales à deux longueurs d'onde de sonde où les mesures sont très différentes. Cela confirme notre bonne compréhension du déroulement de l'expérience. Un degré supplémentaire est franchi en commençant à quantifier le couplage élasto-optique, au moins aussi fort en bleu qu'en rouge pour la silice et le Si mais significativement moins fort pour l'Al.

2.4 Structure électronique du Silicium et couplage élasto-optique

Le mécanisme de détection de notre expérience la rend sensible à la dérivée des propriétés optiques des matériaux qui dépendent directement de leur structure électronique. Il convient donc de s'y intéresser de plus près.

La figure 2.9 reproduit le diagramme de bandes du Si à 0 K. La plus petite transition directe, appelée E'_0 , se situe au point Γ de la zone de Brillouin (transition $\Gamma_{25'} - \Gamma_{15}$). Elle a une énergie très proche des transitions E_1 située entre les deux bandes presque parallèles dans la direction Λ , $L_{3'} - \Gamma_{25'}$ et $L_1 - \Gamma_{15}$. A température ambiante E'_0 et E_1 sont proches de 3,4 eV (365 nm) et sont responsables de la forte absorption du Si dans cette gamme de longueurs d'onde. La figure 2.10 montre l'évolution de la partie imaginaire de l'indice en fonction de la longueur d'onde. On remarque l'opacification très rapide du matériau lorsque la longueur d'onde va de 400 à 350 nm. La ligne verticale indique la position des transitions $E'_0 - E_1$. Il s'avère que c'est précisément dans cette gamme de longueurs d'onde que nous avons fait nos premières observations.

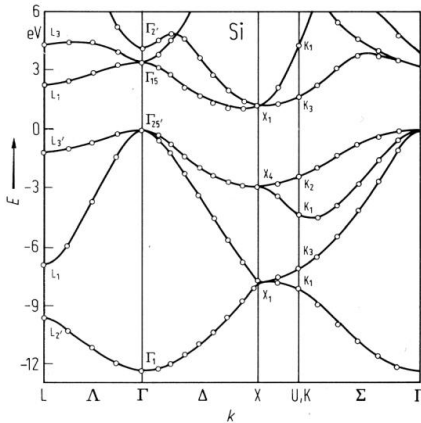
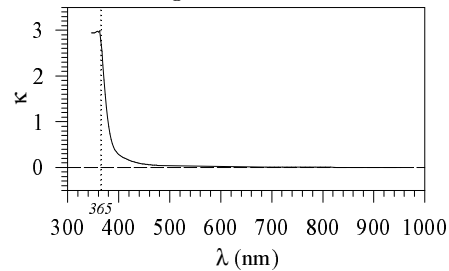


FIG. 2.9 – Structure de bandes du Silicium [47]

FIG. 2.10 – Partie imaginaire de l'indice du Silicium [57]



2.5 Mesures autour de E'_0 et E_1

Jusqu'à présent nos observations se sont cantonnées à proximité de $\lambda_{\text{sonde}} = 400$ nm. L'analyse de la structure électronique du Si pose la question de l'influence des transitions situées vers 365 nm. Pour y répondre nous avons testé la réaction de notre échantillon autour de cette longueur d'onde. La figure 2.11 présente les oscillations Brillouin du Si pour trois longueurs d'onde différentes.

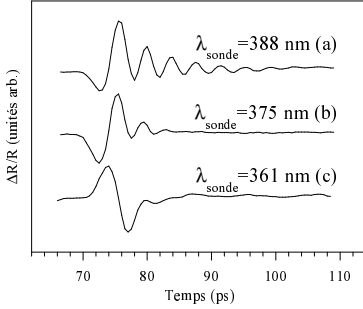


FIG. 2.11 – Oscillations Brillouin du Si dans l'échantillon Al/SiO₂/Si à proximité des transitions E'_0 et E_1 situées vers 365 nm. On remarque d'abord l'atténuation des oscillations lorsque la longueur d'onde diminue. On peut aussi remarquer le changement de phase important entre 375 (b) et 361 nm (c).

Une première remarque vient immédiatement : les oscillations Brillouin sont de plus en plus amorties à mesure que la longueur d'onde diminue. A 361 nm, elles ressemblent davantage à un écho qu'à des oscillations. Cela illustre bien le fait que le mécanisme de détection de l'acoustique picoseconde est identique pour les échos ou pour les oscillations Brillouin. Cela montre aussi l'importance d'intercaler une couche transparente entre le substrat et le transducteur : les phénomènes intéressants ayant lieu dans les premières picosecondes après l'entrée de l'impulsion dans le substrat, il serait très difficile de distinguer la contribution du Si de celle du transducteur si ce dernier était déposé directement sur le substrat.

Le changement de longueur d'onde de la sonde ne peut se faire sans modifier également celle de la pompe mais comme les indices optiques de notre échantillon varient peu autour de 800 nm, les faibles variations de longueur d'onde de pompe sont sans effet sensible sur les mesures.

Le changement de décroissance est une conséquence directe de l'évolution de l'absorption optique du Si avec la longueur d'onde [2]. Semi-transparent à 440 nm ($\kappa = 0,1$; $\zeta \sim 700$ nm) il est en revanche opaque vers 380 nm ($\kappa = 0,9$; $\zeta \sim 70$ nm, voir en annexe C). On comprend donc qu'aux courtes longueurs d'onde, à raison de $8,43 \text{ nm.ps}^{-1}$, l'impulsion acoustique devienne très rapidement hors de la portée de la sonde et donc que les oscillations Brillouin du Si soient très vite amorties.

Un effet de phase

Outre leur décroissance, entre 361 et 375 nm les oscillations présentées sur la figure 2.11 se différencient par une modification brutale de la phase attribuée à une variation du couplage élasto-optique. En effet, un changement de phase du coefficient élasto-optique se traduit par le même changement de phase des oscillations, en supposant les autres paramètres constants.

On peut s'interroger sur le rôle de la couche transparente dans ces observations. La phase des oscillations Brillouin est en effet influencée par les phénomènes interférentiels qui s'y produisent, et ceux-ci changent avec la longueur d'onde. Cet effet est toutefois très sensible à l'épaisseur de la couche. Comme nous avons observé les mêmes changements de phase dans des échantillons où l'épaisseur de la couche transparente est différente ce mécanisme peut être écarté.

Des similitudes intéressantes

Ces observations ont une origine similaire à celles qui avaient été faites dans les métaux où un changement de signe brutal des échos se produisait au passage d'une transition électronique. On peut ici aussi rapprocher ces constatations des mesures faites par piézo-modulation [22]. Ces expériences sont très différentes des nôtres mais reposent sur un couplage entre des effets optiques et mécaniques. Elles révèlent des pics attribués à E'_0 et E_1 précisément dans la gamme de longueurs d'onde où nous avons fait nos observations. Cela conforte notre interprétation.

2.6 Influence de la température

Pour éprouver cette interprétation, nous avons étudié l'influence de la température sur la forme des oscillations Brillouin du Si. D'un point de vue théorique, l'échauffement d'un matériau provoque la diminution de l'énergie de toute transition électronique. En conséquence, notre hypothèse était qu'un changement de température de l'échantillon aurait un effet semblable à celui d'une modification de la longueur d'onde de la sonde.

Montage

Le dispositif de chauffage, schématisé Fig. 2.12 est très rustique par comparaison aux autres composants du banc d'acoustique picoseconde, mais sa simplicité est parfaitement justifiée puisque ses performances correspondent tout à fait aux besoins. L'élément de base est une plaque chauffante classique, dont la régulation est précise à $\pm 5^\circ\text{C}$. Cette imprécision est en fait relativement faible puisque nous souhaitons comparer des mesures à température ambiante avec des mesures à 600 K.

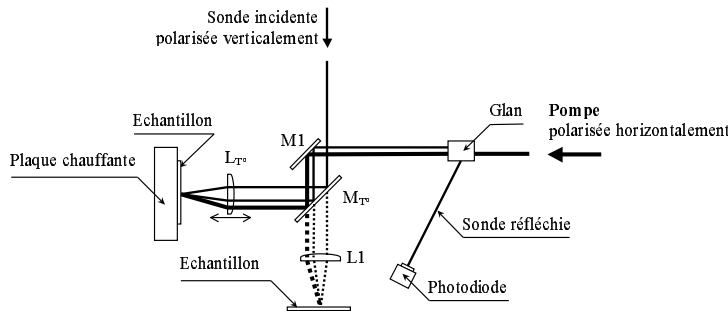


FIG. 2.12 – Schéma de l'extension du montage pour les mesures sur plaque chauffante. Le miroir amovible M_T dévie les rayons de leur trajet habituel (en pointillés) vers la plaque.

La première contrainte est de ne pas modifier le montage existant pour ne pas perturber les autres études en cours. Un miroir amovible M_T est alors employé pour orienter les faisceaux vers le support classique ou vers la plaque chauffante.

La seconde contrainte concerne le réglage. Une fixation souple permet d'orienter manuellement la plaque chauffante en jouant sur ses deux supports (voir Fig. 2.13), et une platine de translation micrométrique sous la lentille de focalisation L_2 est utilisée pour finaliser le réglage.

Résultats

Sur la figure 2.14 (a) et (b) apparaissent deux mesures faites à la même longueur d'onde mais à des températures différentes. La première mesure est faite à une énergie inférieure à la transition du Si ($370 \text{ nm} \equiv 3,35 \text{ eV}$).

FIG. 2.13 – Schéma de fixation et de réglage de la plaque chauffante. Le pointeau supérieur applique un effort permanent. Le mouvement indépendant des deux supports permet le réglage angulaire de la plaque.

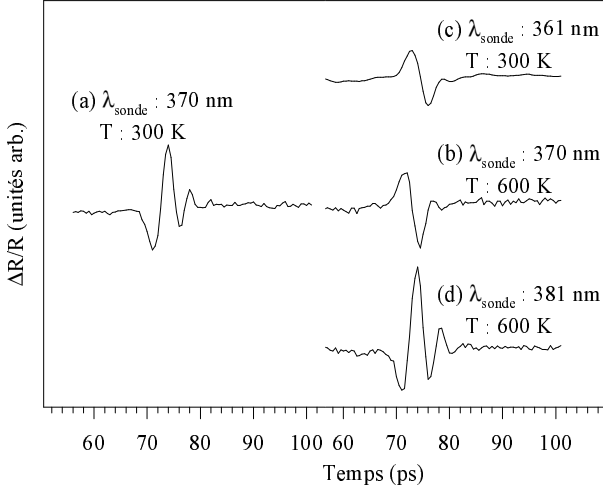
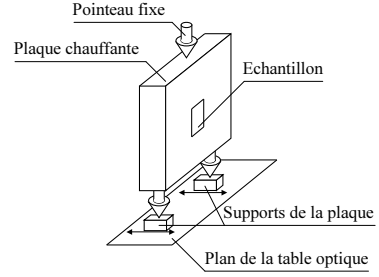


FIG. 2.14 – Echantillon Al/SiO₂/Si. (a) Réponse du Si à $\lambda_{\text{sonde}} = 370 \text{ nm}$ et 300 K. (b) et (c) La température et la longueur d'onde ont un effet similaire sur la phase des oscillations. (d) La longueur d'onde de sonde est décalée vers le rouge pour retrouver à haute température la forme initiale du signal.

Nous constatons qu'une élévation de température a le même effet qu'une élévation de l'énergie de la sonde (diminution de longueur d'onde). La mesure à 600 K ressemble à celles effectuées à des énergies supérieures à la transition [voir Fig. 2.11 (c)], comme si l'élévation de température avait bien diminué l'énergie de cette transition. Lorsque nous diminuons l'énergie de la sonde à cette température (augmentation de longueur d'onde) l'échantillon se comporte comme si l'énergie de la sonde était à nouveau inférieure à celle de la transition, et nous retrouvons avec la courbe 2.14 (c) une mesure identique à la courbe initiale. Cela montre que l'effet de la transition est toujours présent mais à une énergie plus faible comme attendu. A 600 K, l'énergie de la sonde doit être diminuée d'environ 0,1 eV pour retrouver les mesures à température ambiante. Cette valeur peut être comparée à la relation donnant l'énergie des transitions $E'_0 - E_1$ du Si en fonction de la température [41] :

$$E = E_0 - \lambda T, \quad (2.1)$$

où E est l'énergie de la transition en eV, E_0 l'énergie à 0 K, $\lambda = 0,0004$ (cette notation n'a aucun rapport avec une longueur d'onde lumineuse), et T est la température en Kelvin. On obtient une diminution de 0,12 eV pour une élévation de température de 300 K, ce qui correspond à nos observations et confirme l'influence de la structure électronique sur les mesures par acoustique picoseconde dans le cas du Si.

3

Extension des résultats à un autre semi-conducteur, le Germanium

3.1 Intérêt du Germanium

L'étude du Si permet d'affirmer que la structure électronique de ce matériau a des effets sensibles sur les expériences d'acoustique picoseconde. Afin de généraliser cette affirmation et d'étudier plus finement l'effet des transitions nous cherchons à évaluer dans ce chapitre le comportement d'un autre semi-conducteur. Nous avons choisi le Germanium (Ge) car il possède les deux transitions E'_0 et E_1 sondées dans le Si ainsi qu'une troisième, E_0 , situées toutes trois dans la gamme de longueurs d'onde accessible par notre dispositif expérimental moyennant quelques adaptations. Ces transitions se situent respectivement à 399, 587 et 1540 nm. Elles sont identifiées sur la figure 3.1. Ce matériau est particulièrement intéressant car ses transitions E'_0 et E_1 ne sont plus dégénérées comme dans le Si. Il devient donc possible de les étudier indépendamment. Contrairement au Si, la transition E_0 devient accessible (E_0 Si : 295 nm).

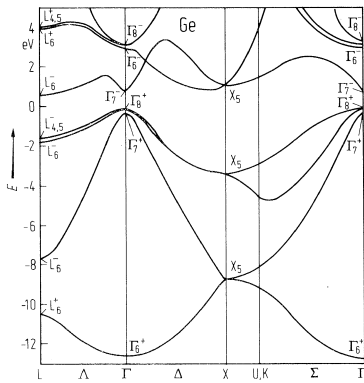


FIG. 3.1 – Structure de bandes simplifiée du Germanium. Les trois transitions directes accessibles avec notre montage sont E'_0 ($\Gamma_8^+ - \Gamma_8^-$), E_1 ($L_{4,5}^- - L_6^-$) et E_0 ($\Gamma_8^+ - \Gamma_7^-$), correspondant respectivement à 399, 587 et 1540 nm.

3.2 Conception des échantillons

Le Ge est plutôt opaque aux longueurs d'onde autour de E'_0 et E_1 . Nous avons donc choisi une structure d'échantillon de type Al/SiO₂/Ge(100) comme pour l'étude sur le Si. Cette structure sépare temporellement les contributions de l'Al et du Ge qui seraient autrement simultanées. Autour de E_0 en revanche, le Ge est assez transparent pour que les oscillations Brillouin soient peu

amorties. En utilisant une pompe à une longueur d'onde absorbée il devient possible de travailler directement sur un substrat, choisi lui aussi d'orientation (100). Les effets non acoustiques causés par la pompe sont limités aux premières picosecondes et s'atténuent bien avant les oscillations Brillouin.

3.3 Montage

Trois montages différents sont nécessaires pour sonder autour des longueurs d'onde choisies. Autour de E'_0 nous employons un montage de type « Rouge-Bleu ». La pompe rouge-infrarouge (autour de 800 nm), est directement issue de la source. La sonde bleue s'obtient en doublant la fréquence initiale avec un cristal de BBO, comme pour l'étude du Si. Pour atteindre E_0 et E_1 nous insérons entre la source laser et le montage pompe-sonde un oscillateur paramétrique optique (OPO) pompé (optiquement) par la source laser impulsionnelle. En sortie de l'OPO nous utilisons le résidu rouge-infrarouge comme pompe, et les impulsions converties dans l'infrarouge sont envoyées sur le trajet sonde. Pour la transition E_0 nous employons directement ce faisceau infrarouge comme sonde (autour de 1540 nm). Pour la transition E_1 le faisceau infrarouge est lui-même transformé dans le visible par un cristal de BBO et nous pouvons alors travailler autour de 580 nm.

La figure 3.2 montre l'implémentation de l'OPO. Le faisceau sortant de la source (Mira) est habituellement envoyé sur le montage avec le miroir M1 pour servir de pompe. La sonde s'obtient en prélevant une partie du faisceau pompe avec une lame semi-réfléchissante S1. Lorsque l'OPO est utilisé, le faisceau initial entre dans la cavité de l'OPO (miroirs M2 et M3) où il est focalisé sur un cristal de CTA (CsTiOAsO_4) pour atteindre 1540 nm ou un cristal de KTP (KTiOPO_4) pour atteindre 1174 nm. Dans ces cristaux, la puissance crête élevée du faisceau favorise la conversion des photons incidents en une somme de deux photons de longueurs d'onde différentes. L'insertion du cristal dans une cavité résonnante réglée sur l'une des longueurs d'onde de conversion permet d'obtenir un faisceau cohérent infrarouge (1050–1600 nm) à partir d'un faisceau initialement dans le proche infra-rouge (700–900 nm). Ce faisceau est alors dirigé vers le trajet sonde du montage (miroir M4). La partie du faisceau initial non convertie par le cristal, appelée résidu, est dirigée vers le trajet pompe du montage (miroir M5). Cette conversion n'affecte pas significativement la durée des impulsions optiques.

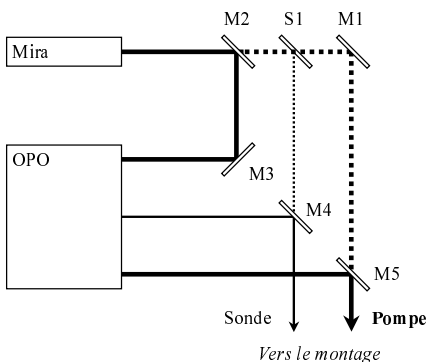


FIG. 3.2 – Insertion de l'OPO entre la source laser et le montage pompe-sonde. Le faisceau sortant de la source (Mira), habituellement séparé en pompe et sonde avec la lame S1, est dirigé ici vers l'OPO (M2 et M3). Le faisceau converti est utilisé comme sonde (miroir M4). Le résidu non converti emprunte lui le trajet pompe (miroir M5).

L'emploi d'un OPO, élément assez instable avec un rendement de conversion limité, et l'utilisation de longueurs d'onde en dehors des spécifications optimales du montage font que les mesures ont un niveau de bruit élevé mais les structures des courbes de réflectivité sont tout à fait identifiables.

3.4 Mesures

Mesures autour de E'_0

Pour ces mesures autour de 399 nm, le montage est donc semblable à celui utilisé pour l'étude du Si : pompe rouge-infrarouge, sonde bleue. Les courbes de réflectivité sont elles aussi similaires à celles du Si (voir fig.3.3). Une impulsion acoustique générée dans la fine couche d'Al en surface commence par traverser la couche de silice en provoquant des oscillations Brillouin (période de l'ordre de 20 ps). Lorsqu'elle arrive dans le substrat, comme pour le Si à faible λ_{sonde} la réflectivité oscille avec une grande amplitude sur une durée très courte à cause de la forte absorption optique du Ge. La silice permet de distinguer temporellement la contribution de l'Al de celle du Ge.

La figure montre l'évolution de la réflectivité autour de E'_0 après soustraction de la décroissance thermique et normalisation par rapport aux intensités pompe et sonde. Pour chaque longueur d'onde de la sonde nous avons ajouté une simulation sous la mesure. Les simulations emploient les mêmes paramètres sauf les indices qui varient avec la longueur d'onde et qui sont tirés de la littérature [35]. Les coefficients élasto-optiques du Ge sont laissés constants. On peut remarquer que l'accord entre les mesures et les simulations reste très bon à toutes les longueurs d'onde. Cela semble indiquer que les coefficients élasto-optiques du Ge sont constants autour de E'_0 .

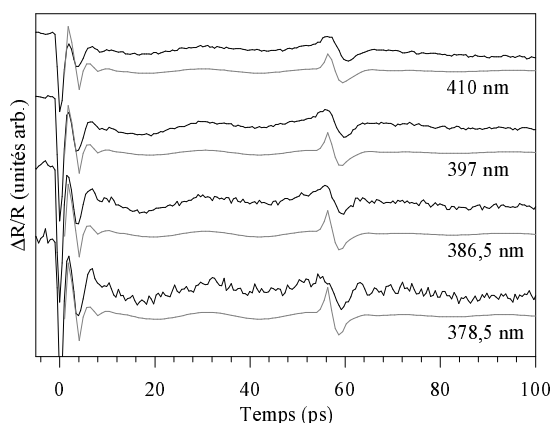


FIG. 3.3 – Mesures dans un échantillon Al/SiO₂/Ge autour de E'_0 (399 nm). Les simulations sous les mesures sont faites avec des coefficients élasto-optiques tous identiques. Le bon accord des simulations avec les mesures, en particulier au niveau de la réponse du Ge vers 60 ps, indique que le coefficient élasto-optique du Ge est peu variable autour de E'_0 .

Mesures autour de E_1

Pour ces mesures autour de 587 nm, nous utilisons comme sonde le faisceau sortant de l'OPO, doublé par un cristal de BBO. La pompe reste aux alentours de 800 nm. La figure 3.4 montre l'évolution de la réflectivité autour de E_1 dans les mêmes conditions que précédemment. Ici les oscillations Brillouin du Ge sont visibles plus longtemps car le matériau est moins opaque.

On peut d'abord remarquer une variation d'amplitude, mais aussi un changement de phase des oscillations Brillouin avec la longueur d'onde. Le changement de phase est clairement perceptible si on compare les oscillations Brillouin mesurées aux simulations. Celles-ci reprennent exactement les mêmes paramètres mécaniques que pour l'étude autour de E'_0 . Les indices optiques sont fixés en correspondance avec la longueur d'onde. Nous avons choisi les coefficients élasto-optiques qui reproduisaient le mieux les mesures à basse longueur d'onde, mais en conservant ces coefficients pour les autres simulations, il s'avère que la phase des simulations s'éloigne de celle des expériences à mesure que la longueur d'onde augmente. On aurait aussi bien pu adapter les coefficients pour reproduire la mesure à 629 nm mais à 565 nm la phase de la simu-

lation aurait été en désaccord avec la mesure. Cela atteste d'un changement dans les coefficients élasto-optiques autour de E_1 .

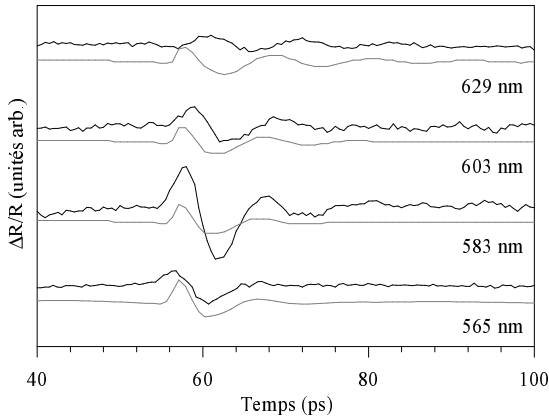


FIG. 3.4 – Mesures dans un échantillon Al/SiO₂/Ge autour de E_1 (587 nm). Les simulations sous les mesures ont toutes les mêmes coefficients élasto-optiques. Le coefficient élasto-optique du Ge, lui, est certainement variable.

Mesures autour de E_0

Les mesures présentées fig. 3.5 font appel à des longueurs d'onde éloignées du domaine usuel, plutôt cantonné à la gamme visible. Ici la sonde est réglée dans le proche infrarouge, autour la transition E_0 (1540 nm). C'est d'ailleurs la première fois à notre connaissance que des expériences d'acoustique picoseconde sont faites à ces longueurs d'onde, et cela montre au passage la possibilité de telles expériences. Ces longueurs d'onde sont atteintes en utilisant pour sonde le faisceau sortant de l'OPO. Ici encore, la pompe reste aux alentours de 800 nm. La simplicité de l'échantillon – un substrat de Ge – se retrouve dans les mesures : leur structure est très simple. Une impulsion unique se déplace de la surface vers l'intérieur de l'échantillon, provoquant des oscillations Brillouin dès l'origine des temps. Cette origine est identifiée par le pic électronique partiellement visible sur la figure. On constate d'abord que les oscillations ont une amplitude constante comme prévu. Le matériau est bien transparent à ces longueurs d'onde.

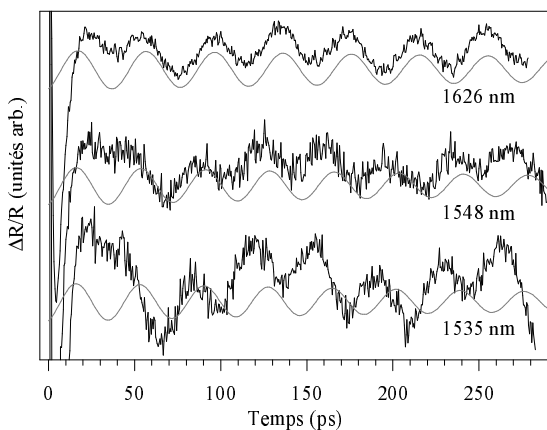


FIG. 3.5 – Mesures dans un substrat de Ge autour de E_0 (1540 nm). Malgré un bruit important les oscillations Brillouin sont clairement identifiables. Sous les mesures sont affichées les simulations correspondantes pour lesquelles les coefficients élasto-optiques sont tous identiques. Comme les simulations se désaccordent avec les mesures lorsque la longueur d'onde diminue, le coefficient élasto-optique du Ge est probablement variable autour de E_0 .

Des simulations correspondant à chaque mesure sont placées sous les courbes expérimentales. Pour les calculs, les indices sont fixés en accord avec les longueurs d'onde mais les coefficients élasto-optiques sont maintenus constants. Lorsqu'on étudie la phase des oscillations, on constate que celle-ci ne peut être reproduite à toutes les longueurs d'onde avec le même coefficient élasto-optique. Sur la figure 3.5 ce coefficient est choisi pour reproduire la mesure à 1626 nm, mais il

ne convient pas pour les deux autres longueurs d'onde. Cela atteste d'un changement dans les coefficients élasto-optiques autour de E_0 .

Première analyse

Ces mesures sur Ge, malgré de notables différences avec les mesures sur Si, permettent elles aussi d'accéder au comportement du coefficient élasto-optique. Ces expériences montrent que le coefficient élasto-optique du Ge est variable autour de E_1 et E_0 mais pas autour de E'_0 . En étudiant des mesures de spectroscopie de modulation sur le Ge [76], on peut remarquer que celles-ci subissent aussi de fortes variations autour de E_1 et E_0 mais pas autour de E'_0 . On retrouve donc pour le Ge comme pour le Si la cohérence entre nos résultats et ceux de spectroscopie de modulation.

Les expériences étant faites autour des mêmes transitions dans le Si et le Ge, il devient possible de comparer leur comportement, ce qui fait l'objet du chapitre suivant.

Discussion et compléments

4.1 Comparaisons quantitatives avec la littérature

Silicium

La recherche d'un accord quantitatif des coefficients élasto-optiques avec la littérature est possible mais d'importantes précautions doivent être prises. Les mesures par piézo-modulation permettent en effet de calculer les coefficients piezo-optiques P_{ij} (voir en annexe B), mais elles sont réalisées dans une géométrie et des conditions expérimentales très différentes de nos expériences, et ces coefficients ne sont pas employés pour eux-mêmes mais leur forme est exploitée pour déterminer la position des transitions électroniques. Ces résultats sont toutefois ce qui est le plus proche des coefficients élasto-optiques dans la littérature.

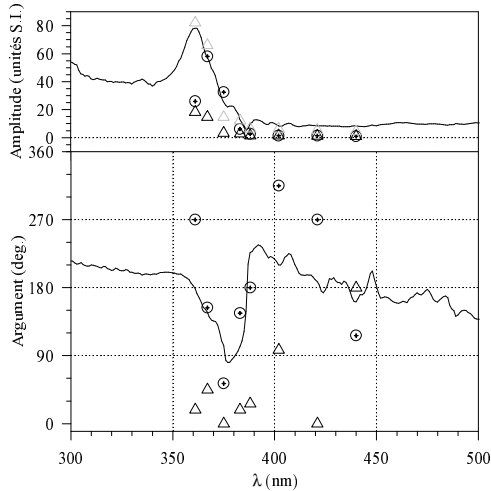


FIG. 4.1 – Module et argument du coefficient élasto-optique $\left(\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}\right)$ du Si en fonction de la longueur d'onde. Les courbes sont calculées à partir de la réf. [22]. Triangles noirs : coefficient élasto-optique simulé à épaisseur de SiO_2 constante. Triangles gris : en appliquant un facteur 5 le module du coefficient élasto-optique simulé suit la référence. Cercles marqués d'une croix : simulation à épaisseur de SiO_2 adaptée au mieux aux mesures.

Par ailleurs, en simulant les expériences d'acoustique picoseconde on détermine des valeurs pour $\left(\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}\right)$, lié à P_{ij} par l'expression (B.2) de l'annexe B : $\left(\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}\right) = \frac{P_{12}c_{11} + 2P_{11}c_{12}}{2\tilde{n}}$. Les résultats de simulation doivent être pris avec précaution car aux faibles longueurs d'onde la réponse du Si est très brève et la transition entre la réponse de la silice et celle du Si est mal décrite par le modèle. Dans un premier temps, nous avons réalisé plusieurs simulations à des longueurs d'onde différentes en intégrant la variation des indices en longueur d'onde, en utilisant le coefficient élasto-optique comme seul paramètre variable, et en nous attachant à reproduire les oscillations du Si après la zone de transition. L'argument des coefficients ainsi obtenus (triangles noirs sur la fig. 4.1) est en désaccord avec celui calculé à partir de la littérature [23] (courbe noire).

L'absence de connaissance précise de l'amplitude de l'impulsion ne permet pas la mesure absolue de l'amplitude des coefficients élasto-optiques. Les résultats présentés sur cette figure sont basés sur la comparaison de l'amplitude de la réponse du Si avec celle de la silice dont le coefficient élasto-optique, estimé par comparaison d'amplitudes de sauts et d'oscillations Brillouin [13, 20], est d'environ $-0,4$ à cette longueur d'onde, dans la continuation des valeurs mesurées à des longueurs d'onde plus grandes [4]. L'amplitude du coefficient élasto-optique du Si ainsi estimée suit la même évolution que la courbe issue de la littérature, mais il faut la multiplier par cinq (triangles gris) pour obtenir des valeurs comparables.

Pour tenter de faire correspondre au mieux les simulations aux mesures, nous avons alors pris le parti de choisir une épaisseur de SiO_2 différente selon les mesures (de quelques nm seulement) afin d'initier la réponse du Si dès qu'un infléchissement des oscillations Brillouin de la silice est sensible sur les mesures. L'épaisseur de l'échantillon est en effet variable, et les mesures n'ont pas toujours été faites au même point. Un faible écart d'épaisseur modifie le temps d'apparition des oscillations Brillouin du Si. Comme la période des oscillations Brillouin du Si est très courte (~ 4 ps), un écart d'épaisseur modifie la phase des oscillations Brillouin du Si à un instant donné. Les cercles marqués d'une croix de la figure 4.1 présentent l'amplitude et la phase du coefficient élasto-optique du Si obtenu de cette manière. On peut constater un accord qualitatif : autour de la transition électronique à 365 nm le coefficient subit des variations importantes en phase et en amplitude, similaire à la référence. L'accord sur la phase est approximatif mais crédible, et l'amplitude issue des simulations se rapproche de la courbe de référence dans le centre de la plage de longueurs d'onde étudiée. Ces fortes différences obtenues avec des paramètres très proches incitent encore une fois à la prudence. Dans l'ensemble cette comparaison va tout de même dans le sens d'une confirmation de notre interprétation sur le lien entre λ_{sonde} et la structure électronique du Si, responsable des variations du coefficient P_{ij} .

Germanium

Quelques comparaisons ont été faites entre les coefficients élasto-optiques obtenus par simulation et ceux déterminés à partir des coefficients piézo-optiques de la littérature [23]. Le désaccord en phase est permanent, seul le comportement (variation ou stabilité) du coefficient élasto-optique est semblable. Selon les hypothèses de simulation l'amplitude peut varier d'un facteur 10, essentiellement à cause des effets de résonance optique, car la plupart des échantillons de Ge étaient recouverts d'un film mince transparent. L'amplitude tirée de la littérature s'inscrit dans l'intervalle déterminé par simulation mais l'incertitude des résultats interdit toute conclusion. Dans le cas de substrats nus, avec un polissage de qualité optique, où l'absence d'effets optiques ou acoustiques de la couche d'oxyde de surface peut être vérifiée, et à des longueurs d'onde où les oscillations Brillouin ont une forte amplitude et une faible atténuation, le désaccord en phase est important et surprenant. La figure 4.2 montre par exemple une mesure faite à 721 nm (courbes noires). La mesure brute (insert) présente des oscillations Brillouin superposées à un fond exponentiel décroissant, retranché pour les comparaisons. Une simulation employant les coefficients élasto-optiques définis à partir de la littérature (en gris) est superposée à la mesure. La période et la décroissance des oscillations Brillouin sont identiques, mais la phase est presque en quadrature. Une explication potentielle de cette différence serait que le matériau a ses propriétés durablement affectées par l'absorption de l'impulsion pompe. Dans ce matériau les porteurs excités ont en effet un temps de relaxation important. Comme les effets électroniques sont forts au point que la déformation initiale est plus due au potentiel de déformation qu'à la dilatation, il est imaginable qu'avec l'excitation électronique d'autres propriétés soient affectées. Toutefois la déformation induite reste faible (de l'ordre de 10^{-5}), la période des oscillations Brillouin reste

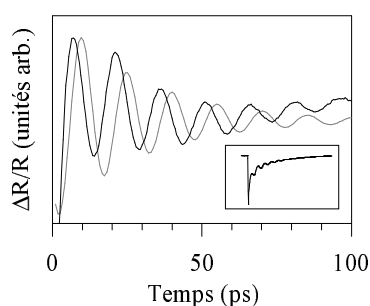


FIG. 4.2 – Mesure sur substrat de Ge (100). $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 721$ nm. Insert : mesure brute. Courbe noire : mesure après soustraction du fond exponentiel. Courbe grise : simulation à partir de données de la littérature.

celle du matériau au repos, et le désaccord est sensible alors que la sonde est dans une plage de longueurs d'onde éloignée de toute transition électronique. Le Ge étant un matériau obtenu avec une très grande pureté depuis longtemps, il est peu probable que les échantillons utilisés pour nos mesures soient très différents de ceux employés dans la littérature en 1991. La zone autour de la transition E_0 (0,8 eV), où le Ge est assez transparent pour que les oscillations Brillouin se maintiennent, n'a pu être testée car les valeurs de notre référence ne descendent pas en dessous de 1,6 eV.

Qu'en retenir ?

La comparaison des coefficients élasto-optiques déterminés à partir de la littérature et à partir des simulations de mesures d'acoustique picoseconde amène à faire les observations suivantes. Premièrement, le résultat des simulations est très sensible à l'épaisseur des films transparents recouvrant les substrats étudiés. Son incertitude est donc élevée. Deuxièmement, les deux méthodes d'obtention des coefficients donnent des résultats en général différents sur la phase, mais du même ordre de grandeur sur l'amplitude. L'accord relatif de phase observé dans le Si doit ainsi être considéré avec prudence. Troisièmement, le désaccord de phase est avéré dans des situations très simples (substrat seul de Ge) où elle peut être extraite des mesures d'acoustique picoseconde avec une bonne certitude. Il est donc prématuré de conclure sur l'accord quantitatif entre les deux techniques comparées. Pour approfondir cette question différentes pistes peuvent être proposées : par exemple la séparation spatiale des zones de création et de détection des impulsions acoustiques, la mesure précise (au nm près) de l'épaisseur des échantillons, le raffinement du modèle en prenant en compte les effets de surface (rugosité) ou d'interface (mauvais collage), l'emploi d'un même échantillon pour les deux techniques ou encore la réalisation simultanée au même point de mesures à des longueurs d'onde différentes. Il ne faut toutefois pas perdre de vue que ces comparaisons concernent des grandeurs obtenues indirectement des mesures, et qu'elles ne remettent nullement en cause nos observations montrant des oscillations Brillouin d'amplitude importante soumises à de fortes variations de phase autour de certaines transitions électroniques, que seule une variabilité des coefficients élasto-optiques peut expliquer.

4.2 Comparaison Si – Ge

À première vue le comportement général du Ge semble différent de celui du Si sur un plan qualitatif. Les oscillations Brillouin du Si disparaissent lorsque la sonde approche de l'infrarouge, alors que des oscillations Brillouin sont toujours visibles dans le Ge quelle que soit la longueur d'onde. Pour le Si, les transitions E'_0 et E_1 sont pratiquement confondues, et lorsque λ_{sonde} diminue à proximité de ces transitions les mesures montrent un changement important de l'amortissement des oscillations Brillouin, qui ressemblent davantage à un écho vers 360 nm.

La comparaison du comportement des coefficients élasto-optiques est plus nuancée. Les mesures faites autour de trois transitions dans le Ge montrent un comportement que l'on peut qualifier en deux types : autour de E'_0 le coefficient élasto-optique du Ge semble rester constant ; autour de E_1 et E_0 celui-ci semble varier. Pour le Si, nous avons aussi observé des variations du coefficient élasto-optique à proximité de la transition E'_0-E_1 . Nous n'avons pu étudier E_0 dans le Si car son énergie, 4,2 eV (295 nm) est trop élevée pour notre montage.

4.3 La réponse dépend-elle du type ou du caractère ?

On peut s'interroger sur le rôle respectif des transitions électroniques dans le cas du Si. Si l'on compare les observations autour des transitions E'_0 et E_1 dans le Ge, il s'avère qu'un changement de phase des oscillations Brillouin est visible pour la transition E_1 et non pas pour E'_0 . On peut donc imaginer que dans le cas du Si les effets observés viennent de la transition de type E_1 si celles-ci sont semblables dans les deux matériaux.

Lautenschlager *et al.* [41] ont établi un classement de plusieurs transitions du Si et des transitions E_1 dans divers matériaux en fonction de leur caractère « de bandes » (« 2D critical point ») ou « local » (« excitonic line shape »), reproduit sur la figure 4.3. Ils ont calculé la dérivée seconde de la constante diélectrique à partir de mesures ellipsométriques et reproduit ces courbes en utilisant un modèle qui relie la constante diélectrique et les transitions électroniques. Selon les paramètres du modèle les transitions correspondent à l'un ou à l'autre des caractères. Ce caractère se retrouve sur les diagrammes de bandes des matériaux suivant que la transition corresponde à un minimum local ou bien à deux bandes parallèles comme on peut le voir fig. 2.9 page 35 dans le cas du Si. La transition E_0 correspond à un minimum local, E_1 désigne les transitions d'énergie équivalente dans la direction Λ , entre les bandes $L_{3'} - \Gamma_{25'}$ et $L_1 - \Gamma_{15}$.

IV	III-V	II-VI
	Excitonic line shape	
Si (12)	AlAs	
Ge (16)	GaP (9.1)	ZnSe (5.9)
	GaAs (up to 300 K) (10.9)	
α -Sn (24)	GaAs ($T > 300$ K) (10.9)	
	GaSb (14.4)	
	InP (9.6)	CdSe (5.8)
	InSb (15.7)	CdTe (7.2)
		HgSe (7.3)
		HgTe (15.2)
2D critical point		

FIG. 4.3 – « TABLE III. Etude du caractère de la transition E_1 pour divers semiconducteurs (...) selon les résultats de l'optimisation de la dérivée seconde de la fonction diélectrique $d^2\epsilon/d\omega^2$. En haut à droite (...) la meilleure optimisation correspond à un caractère local, en bas à gauche c'est le caractère de bandes qui convient le mieux (...) Parenthèses : constante diélectrique à haute fréquence (...) » [41]

D'après cette étude, la transition E_1 du Si a un caractère de bandes, alors que celle du Ge a un caractère local. En revanche la transition E'_0 du Si a un caractère local. Contrairement à notre première hypothèse, la transition E_1 pourrait avoir un effet différent dans le Si et le Ge. Les variations de phase du coefficient élasto-optique pourraient plutôt provenir du caractère local

d'une transition puisque pour E_1 dans le Ge des variations sont détectées. Dans ce cas l'effet sensible dans le Si pourrait provenir du caractère local de sa transition E'_0 .

4.4 Expériences complémentaires

Pour tester cette hypothèse, nous avons réalisé des expériences exploratoires autour des transitions E_0 du GaP et du GaAs, situées respectivement à 2.78 eV (446 nm) et 1,42 eV (873 nm). Ces transitions ont un caractère local, et pourraient donc donner lieu à des effets sur la phase du coefficient élasto-optique.

4.4.1 GaP : un contre-exemple ?

Dans le cas du GaP, les mesures de type pompe rouge - sonde bleue faites sur un échantillon de structure Al/SiO₂/GaP(100) sont présentées sur la figure 4.4, avec la longueur d'onde de mesure à côté de la courbe correspondante. Leur forme ressemble à celles faites avec des substrats de Si, mais ici les oscillations ne disparaissent pas lorsque la longueur d'onde atteint le domaine de transparence du matériau. Lorsqu'on observe la naissance des oscillations Brillouin vers 35 ps (pointillés verticaux), leur phase ne semble pas varier significativement. Cette observation affaiblit notre hypothèse mais elle concerne la transition E_0 et non E_1 .

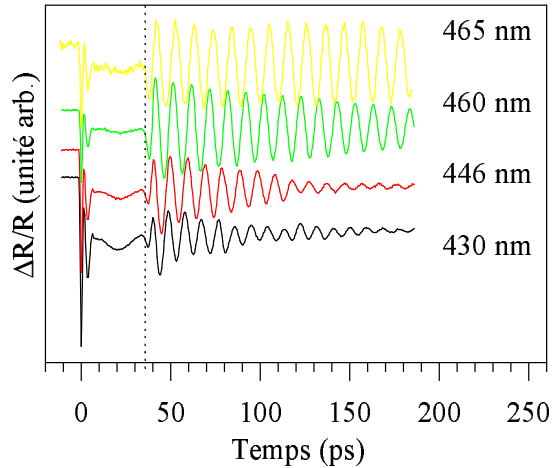


FIG. 4.4 – Mesures sur Al(12nm)/SiO₂/GaP autour de E_0 (446 nm). Les oscillations Brillouin du GaP débutent vers 35 ps. Apparemment leur phase à l'origine ne varie pas avec la longueur d'onde.

4.4.2 GaAs : des effets sensibles

Dans le cas du GaAs, les mesures sont faites sur un simple substrat d'orientation (100) avec une pompe bleue (413 nm). Le GaAs est très absorbant dans cette gamme, et la pompe provoque l'apparition d'une impulsion acoustique qui se propage de la surface vers l'intérieur du substrat. La sonde est fixée à 826 nm. Au lieu de faire varier la longueur d'onde, c'est la température qui est contrôlée de façon à modifier E_0 autour de l'énergie des photons de sonde. Dans cette gamme de longueurs d'onde, le GaAs est légèrement absorbant et les mesures se présentent sous la forme d'oscillations lentement décroissantes. Nous avons d'abord vérifié le comportement optique du matériau en analysant la période et la décroissance des oscillations. Les valeurs obtenues sont dans la même gamme que celles de la littérature [38, 47] et leur évolution est similaire, ce qui atteste la validité des expériences.

Dans un substrat faiblement absorbant pour la sonde, cas du GaAs, la courbe de réflectivité est un cosinus dont la phase à l'origine est celle du coefficient élasto-optique (voir partie I, p.

13) : une phase valant π signifie que le coefficient est réel et négatif. Nous avons alors mesuré la phase à l'origine des oscillations Brillouin du GaAs en fonction de la température. Le résultat est présenté sur la figure 4.5 : à haute température la phase est constante, puis elle varie de façon importante avec la température après le passage de l'énergie des photons de la sonde sous E_0 . Le coefficient élasto-optique est donc variable autour de cette transition «locale», ce qui corrobore l'hypothèse.

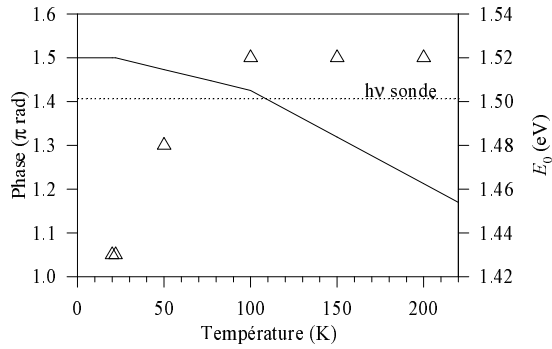


FIG. 4.5 – Triangles : phase à l'origine des oscillations Brillouin du GaAs en fonction de la température. Courbe : énergie de la transition E_0 . Pointillés : Energie des photons sonde.

Ces quelques exemples, même s'ils ne concluent pas sur l'influence du caractère des transitions électroniques, montrent que la technique peut être appliquée à une gamme étendue de matériaux.

Synthèse de l'étude sur la relation entre l'acoustique picoseconde et la structure électronique des matériaux

L'analyse des oscillations Brillouin en fonction de la longueur d'onde a permis de montrer une influence importante de la structure électronique des semi-conducteurs sur les expériences d'acoustique picoseconde. Cela se traduit expérimentalement par de fortes variations d'amplitude ou de phase des oscillations Brillouin avec la longueur d'onde de la sonde. Ainsi, les transitions électroniques peuvent être classées selon leur effet (changement de phase ou non), ce qui pourrait être lié à leur structure locale ou étendue. Ces effets permettent d'envisager l'emploi de l'acoustique picoseconde pour l'étude de la structure électronique des matériaux, avec parmi tous les avantages de la technique la possibilité de faire des mesures non destructives sur des objets nanométriques. Des études sont d'ailleurs en cours dans le laboratoire sur deux systèmes de boîtes quantiques, SiGe dans une matrice de Si, et InAs dans de l'InP, en collaboration avec le LPST de l'Université Paul Sabatier à Toulouse.

Troisième partie

Anatomie des Matériaux transparents

Si l'on peut dire que les oscillations Brillouin apportent l'image quand les échos apportent le son, ce n'est pas seulement parce qu'elles reflètent le passage d'impulsions acoustiques au moment même où celles-ci traversent un échantillon transparent, mais c'est aussi parce qu'elles apportent de nouvelles informations sur l'expérience. Nous montrons ici qu'en choisissant des conditions expérimentales qui favorisent leur apparition, on facilite les mesures usuelles d'épaisseur et de vitesse du son et on assouplit les conditions imposées aux échantillons. Nous établissons ensuite comment, en multipliant les angles d'incidence, se passer de toute donnée préalable sur les constituants des échantillons. Enfin, la richesse de ces mesures est mise à profit pour des caractérisations plus fines, telles que la masse volumique ou l'atténuation ultrasonore, ainsi que pour ouvrir d'autres voies d'investigation.

Mesures d'épaisseur et de vitesse du son

1.1 Problématique

Les premières mesures d'acoustique picoseconde [79] mirent très vite en évidence l'intérêt de la technique pour les mesures d'épaisseur des films minces. Le temps τ d'arrivée du premier écho acoustique, correspondant à un aller-retour d'une impulsion acoustique dans un film est en effet relié à l'épaisseur d par la relation $\tau = 2d/v$ où v est la vitesse du son. Il suffit de connaître la vitesse du son pour déduire l'épaisseur ou réciproquement de connaître l'épaisseur pour en déduire la vitesse. Le temps d'aller-retour peut être connu avec une grande précision, au moins de l'ordre de la picoseconde, mais la détermination précise de la vitesse ou de l'épaisseur est plus difficile car elle requiert la connaissance de la propriété réciproque. Les mesures absolues reposent alors sur le calibrage des bâtis d'élaboration ou d'autres instruments de mesure, ce qui impose certaines précautions. Les techniques de dépôt sous vide [62] produisent des films pouvant facilement varier d'un dixième entre le centre et le bord d'une plaque et il n'est pas toujours facile de garantir que des mesures faites sur des appareils différents ont bien été faites au même point de l'échantillon.

La mesure sur des matériaux transparents pose des problèmes supplémentaires. Ceux-ci étant intrinsèquement impropres à la génération d'une onde acoustique, il est souvent nécessaire de les recouvrir d'une fine (~ 10 nm) couche métallique qui joue le rôle de transducteur. Cela ajoute malheureusement une dépendance supplémentaire au temps d'arrivée de l'écho : le temps de traversée du transducteur. Lorsque celui-ci n'est pas parfaitement accordé au matériau la mesure est en plus perturbée par les réflexions multiples dans le transducteur. Pour effectuer des mesures dans un film mince déposé sur Si, on pourrait vouloir profiter de la forte opacité de ce matériau dans la gamme du bleu pour y générer directement l'impulsion acoustique, et ainsi se passer de transducteur. Malheureusement, la déformation du Si est très faible et le rend inefficace pour la génération [84, 82, 27].

Avec des matériaux transparents, on peut favoriser l'apparition d'oscillations Brillouin sur les mesures d'acoustique picoseconde en choisissant une longueur d'onde de sonde adaptée. Leur exploitation permet alors de surmonter plusieurs des difficultés soulevées ici. Le principe général est que la période des oscillations Brillouin donne la vitesse du son d'un matériau, et leur durée donne l'épaisseur de l'échantillon. Les paragraphes suivants montrent d'abord comment exploiter ce type de mesures sur un exemple typique, puis détaillent les conditions d'existence des oscillations Brillouin, la richesse des informations qu'elles procurent, et les effets de la longueur d'onde de la sonde.

1.2 Exploitation des oscillations Brillouin

Un exemple classique

La figure 1.1 montre deux exemples de mesures en incidence normale sur un échantillon de structure Al/Si₃N₄/Si (échantillon n°1, voir tab. 1.1). La mesure (a) est faite à $\lambda_{\text{sonde}} = 804$ nm, la mesure (b) à $\lambda_{\text{sonde}} = 402$ nm. La courbe (c) est un résultat de calcul dans les mêmes conditions qu'au paragraphe 2.3 partie II. La très bonne ressemblance avec la mesure atteste une nouvelle fois de la validité du modèle.

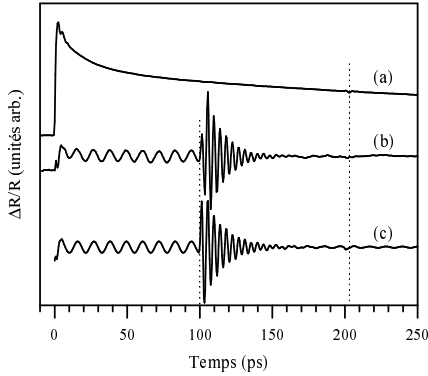


FIG. 1.1 – Expériences sur Al/Si₃N₄/Si
 (a) $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 804$ nm. Barre verticale : position de l'écho (203 ps).
 (b) $\lambda_{\text{pompe}} = 804$ nm, $\lambda_{\text{sonde}} = 402$ nm. Oscillations Brillouin du nitrure avant 100 ps, du Si ensuite.
 (c) Simulation à $\lambda_{\text{pompe}} = 804$ nm, $\lambda_{\text{sonde}} = 402$ nm.

Comme précédemment (fig. 2.3 page 30), l'effet du changement de λ_{sonde} est très marqué. Comme on peut s'y attendre, l'information que les mesures contiennent n'est pas exactement la même. La courbe de réflectivité à $\lambda_{\text{sonde}} = 804$ nm présente un simple accident vers 200 ps identifié comme l'écho réfléchi sur l'interface Si₃N₄/Si. La courbe à $\lambda_{\text{sonde}} = 402$ nm est essentiellement constituée d'oscillations Brillouin présentant deux régimes différents. Les oscillations Brillouin à la fréquence la plus basse sont dues au Si₃N₄, les oscillations Brillouin de plus haute fréquence et amorties sont dues au substrat de Si. Nous avons vu que la période des oscillations Brillouin vaut $T = \frac{\lambda}{2nv \cos \theta}$ (relation 1.15) où λ , n , v et θ sont respectivement la longueur d'onde de sonde, l'indice optique, la vitesse du son et l'angle de réfraction. Grâce à la mesure de la période des oscillations Brillouin, on peut donc calculer la vitesse du son d'un matériau en connaissant son indice [78] et non plus son épaisseur comme précédemment. A partir de la période mesurée (11,2 ps) des oscillations Brillouin du Si₃N₄, de l'indice (2,08) et de la longueur d'onde (402 nm) l'expression 1.15 donne une vitesse du son de 8,63 nm/ps.

Les oscillations Brillouin du Si sont utiles, elles, pour déterminer l'épaisseur de la couche de Si₃N₄. La valeur importante de la réponse du Si fait que les oscillations Brillouin naissent dès que l'impulsion acoustique entre dans le substrat.

La description de l'expérience montre comment se comportent les oscillations Brillouin et quelles informations en tirer. Les explications qui suivent s'appuient sur la figure 1.2 où seuls les points essentiels sont décrits. Dès le début de l'expérience, une fraction de l'impulsion entre dans la couche de Si₃N₄. Ce front initial la traverse à la vitesse des ondes sonores pendant une durée $\tau_2 = d_2/v_2$ où d_2 et v_2 sont respectivement l'épaisseur et la vitesse du son de la couche transparente. A $t = \tau_2$, ce front entre dans le substrat et initie une réponse élasto-optique du Si, germe d'oscillations Brillouin, immédiatement visible grâce à l'importance de la réponse du Si. En repérant cet instant sur les courbes de réflectivité, on obtient τ_2 duquel on peut déduire l'épaisseur de la couche de silice connaissant v_2 . Pour notre exemple, $\tau_2 = 99,5$ ps d'où l'on déduit d_2 : 858 nm. Ainsi, l'exploitation des oscillations Brillouin donne la vitesse du son à partir de la période des oscillations Brillouin puis l'épaisseur d'un film transparent à partir de leur durée.

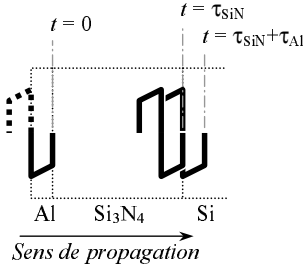


FIG. 1.2 – Trois étapes de la progression de l’impulsion acoustique dans l’échantillon Al/Si₃N₄/Si. Seule la partie de l’impulsion se dirigeant vers la droite de la figure est représentée.

- $t = 0$: Création de l’impulsion acoustique dans le film d’Al.
- $t = \tau_{SiN}$ le front incident de l’impulsion atteint le substrat de Si et y provoque une réponse élasto-optique.
- $t = \tau_{SiN} + \tau_{Al}$: Temps de traversée du bicouche Al/Si₃N₄. Le milieu de l’écho acoustique sera donc situé à $t = 2(\tau_{SiN} + \tau_{Al})$.

Une propriété générale

En réalisant des expériences sur de nombreux matériaux transparents, nous avons remarqué que l’amplitude des oscillations Brillouin dépend fortement de λ_{sonde} , même pour des matériaux diélectriques. Toutes les expériences que nous avons faites dans des matériaux transparents ont donné lieu à d’importantes oscillations Brillouin lorsque λ_{sonde} est réglée aux alentours de 400 nm. A tel point que tout nouvel échantillon transparent étudié dans notre équipe est d’abord sondé à proximité de cette longueur d’onde. Nous avons pourtant étudié des matériaux aux propriétés très éloignées : le nitrure d’aluminium (AlN) aux propriétés piézo-électriques ; différentes sortes de silice, plutôt utilisées pour leurs propriétés isolantes ; des matériaux souples tels que l’oxyde de Si carboné (SiOC) dont le module élastique est environ 60 fois plus faible que celui de l’AlN. Le tableau 1.1 détaille les mesures faites sur ces matériaux, quelques courbes expérimentales sont montrées fig.1.3.

TAB. 1.1 – Les expériences ont été faites à $\lambda_{pompe} = 804$ nm et $\lambda_{sonde} = 402$ nm. Les modules de Young ont été calculés avec un coefficient de Poisson de 0,17 pour chaque matériau.

n°	Matériau	Epaisseur nominale	Période Brillouin	Arrivée dans le Si	Indice	Vitesse du son	Epaisseur mesurée	Densité	Module de Young
1	Si ₃ N ₄	850 nm	11,2 ps	99,5 ps	2,08	8,63 nm/ps	858 nm	3,1 g/cm ³	215 GPa
2	SiO ₂	500 nm	22,8 ps	86 ps	1,48	5,95 nm/ps	514 nm	2,2 g/cm ³	72 GPa
3	SiO ₂	1200 nm	22,7 ps	202,5 ps	1,48	5,98 nm/ps	1212 nm	2,2 g/cm ³	73 GPa
4	AlN	2000 nm	8,5 ps	191 ps	2,16	10,96 nm/ps	2090 nm	3,2 g/cm ³	357 GPa
5	FSG*	500 nm	27,2 ps	106 ps	1,46	5,09 nm/ps	540 nm	2,2 g/cm ³	53 GPa
6	FSG	2000 nm	27,0 ps	431 ps	1,46	5,10 nm/ps	2200 nm	2,2 g/cm ³	53 GPa
7	SiOC	500 nm	61 ps	257 ps	1,45	2,29 nm/ps	589 nm	1,4 g/cm ³	6 GPa

*FSG : Fluorinated Silicate Glass

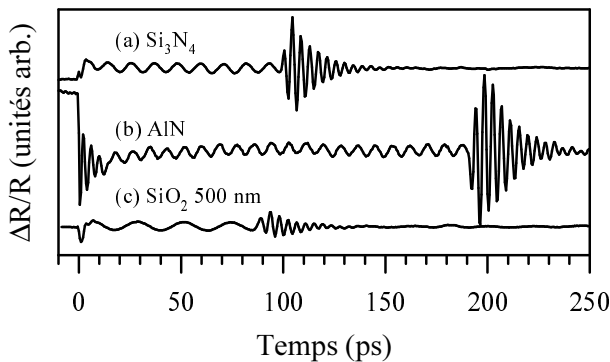


FIG. 1.3 – Exemples d’oscillations Brillouin du Silicium dans des échantillons de structure Al(13nm)/transparent/Si où le matériau transparent est : (a) du nitrure de Silicium, (b) du nitrure d’Aluminium, (c) une couche de silice de 500 nm d’épaisseur.

L’apparition d’oscillations Brillouin au cours de mesures d’acoustique picoseconde dans des

matériaux transparents n'est pas nouvelle [78, 29, 49]. Mais jusqu'à présent, celles-ci avaient été observées par hasard ou sans prendre garde au choix de la longueur d'onde. Ici, la démarche consiste justement à choisir λ_{sonde} pour favoriser les oscillations Brillouin afin d'enrichir les mesures par acoustique picoseconde. Ces oscillations Brillouin sont ensuite exploitées pour mesurer la vitesse du son et l'épaisseur des films puis accéder à des informations plus fines, par exemple sur l'interface film/substrat.

1.3 Intérêt de la démarche

Vitesse du son et épaisseur déterminées en utilisant l'indice

En connaissant la vitesse du son déduite des oscillations Brillouin et la durée de ces oscillations, la même mesure suffit pour obtenir la vitesse du son et l'épaisseur du film. C'est un gain de temps et de fiabilité puisque les deux mesures sont faites dans des conditions naturellement identiques.

Le choix d'une longueur d'onde de sonde favorisant les oscillations Brillouin permet d'obtenir la vitesse du son pourvu que la longueur d'onde, l'angle de réfraction et l'indice soient connus. La longueur d'onde et l'angle d'incidence peuvent être obtenus avec une grande précision en utilisant du matériel classique. Nous utilisons par exemple un spectromètre dont la résolution est de 0,44 nm (Ocean Optics, modèle HR2000 [55]). L'incidence normale est contrôlable par rétro réflexion. Pour d'autres incidences, il suffit de tourner l'échantillon en contrôlant son angle. Le paragraphe 2.3.1 revient en détail sur ce point.

La seule donnée nécessaire est donc l'indice. Celui-ci peut être mesuré par ailleurs avec une grande précision, il varie peu sur l'étendue d'un échantillon, et c'est d'ailleurs bien souvent la seule donnée fiable que nous pouvons obtenir. En effet, l'épaisseur des films minces, nécessaire pour la mesure du son à partir du temps d'arrivée de l'écho, change parfois beaucoup avec le point de mesure. L'emploi des oscillations Brillouin fiabilise donc les mesures de vitesse du son.

Indépendance vis à vis du transducteur

La mesure d'épaisseur par cette méthode présente des différences par rapport à l'exploitation du temps d'arrivée de l'écho acoustique. En effet, l'écho arrive avec un délai égal au temps d'aller-retour dans le bicouche, ici Al/Si₃N₄. Il faut donc soustraire le temps d'aller-retour de la couche d'Al pour isoler celui de la couche de Si₃N₄. Cette différence est d'ailleurs clairement visible sur la figure 1.1 : les oscillations Brillouin naissent à 99,5 ps, si l'écho arrivait au double de ce temps il serait à 199 ps or il n'arrive qu'à 203 ps. La différence (4 ps) correspond à un aller-retour dans la couche d'Al (deux fois τ_1 sur la figure). Ce point était déjà visible sur les mesures servant à l'étude du Si (voir fig. 2.3 et tab. 2.1 partie II) même s'il n'était pas mis en avant.

L'exploitation des oscillations Brillouin permet donc de se passer de la connaissance du transducteur. C'est une source d'imprécision et de difficultés en moins. Cela évite le calibrage du dépôt du transducteur, opération difficile et peu durable compte-tenu de la finesse des films et de la technologie habituellement employée (évaporation sous vide). Cela évite aussi d'avoir à mesurer le temps de traversée du transducteur qui ne peut se faire que si celui-ci est désaccordé (voir par exemple p. 69, fig. 2.6), or le désaccord acoustique nuit à la détection de l'écho. . .

Puisque le transducteur n'est plus utile pour la détection, il peut plus facilement être optimisé pour la génération.

Indépendance vis à vis du Substrat

Pour mesurer la vitesse du son à partir d'un écho, il faut un écho. C'est à dire qu'il doit y avoir une interface suffisamment marquée entre le film et le substrat pour qu'une fraction importante de l'impulsion acoustique s'y réfléchisse et revienne vers la surface. Pour la mesure à partir des oscillations Brillouin, aucune condition n'est requise sur l'accord acoustique avec substrat. Il suffit de mesurer la période des oscillations Brillouin dans le film. Pour la mesure de l'épaisseur à partir des oscillations Brillouin, un bon accord film/substrat est favorable à la détection de la réponse du Si, mais celle-ci est si intense que même en cas de désaccord acoustique, la faible fraction de l'impulsion acoustique qui entre dans le Si y provoque une réponse détectable.

Mesures riches

L'exploitation des oscillations Brillouin apporte des informations supplémentaires ou complémentaires par rapport à la mesure à partir d'échos, en respectant la géométrie habituelle des échantillons caractérisés par acoustique picoseconde. Par exemple la vitesse du son intervient à la fois dans la période des oscillations Brillouin, dans le temps de traversée de la couche transparente mais aussi dans l'amplitude des oscillations Brillouin transmises et réfléchies *via* l'impédance acoustique. L'épaisseur intervient dans le temps de traversée, dans la réflectivité absolue de l'échantillon, mais aussi dans la phase des oscillations Brillouin. En pratique, cette situation est plus contraignante lorsqu'il s'agit de reproduire la mesure par simulation que dans le cas des échos où les seules propriétés optiques sensibles sont celles de la couche de surface. La grande amplitude du signal, l'importante amplification possible grâce à l'absence de composante continue et le fait que l'impulsion atteigne le substrat au temps correspondant (quasiment) à la moitié du temps d'arrivée de l'écho contribuent à diminuer le temps d'acquisition.

Limitations de la technique

Mesurer la période des oscillations Brillouin impose en pratique de travailler avec des films relativement épais : en dessous de 100 nm en moyenne, les oscillations sont limitées à une seule période, difficile à déterminer. Une autre limitation générale à l'acoustique picoseconde, est que la mesure de la vitesse du son ou de l'épaisseur requiert la connaissance préalable de l'une de ces deux données ou bien de l'indice du matériau. La nécessité de données d'entrée est une situation fréquente en métrologie, mais c'est toujours une source d'incertitude. Lorsque aucune de ces données n'est connue, des estimations sont toutefois possibles grâce à la dépendance multiple des courbes de réflectivité vis à vis de ces paramètres, mais c'est une méthode lourde voire inapplicable pour des échantillons même assez simples. Le chapitre suivant, page 63, propose une solution à ce problème en établissant une méthode directe pour déterminer l'indice uniquement à partir de mesures d'acoustique picoseconde sans connaissances préalables sur les échantillons.

1.4 Choix de la longueur d'onde en résonance

Une différence de 8 nm seulement

L'une des propriétés bien connue des lames minces est qu'elles renvoient la lumière différemment selon la longueur d'onde. Cet effet vient des réflexions multiples entre les faces de la lame dont les interférences sont plus ou moins constructives selon l'accord entre la longueur d'onde d'une part et l'épaisseur de la lame d'autre part. Un exemple proche est traité en annexe A, figure A.4. On pouvait se demander si cet effet de résonance n'expliquerait pas la différence

importante, visible sur la figure 1.4, entre les amplitudes (normalisées) des oscillations Brillouin du FSG mesurées à des longueurs d'onde très proches (390 et 398 nm). Cette différence atteint presque un facteur 15 sur un échantillon de structure Al(12nm)/FSG(2000nm)/Si.

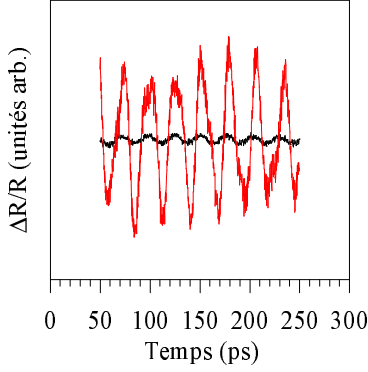


FIG. 1.4 – Expériences sur Al(12nm)/FSG(2000nm)/Si. Fenêtre temporelle limitée aux oscillations Brillouin du FSG. L'amplitude est normalisée par rapport aux intensités pompe et sonde. Courbe noire (plus petite amplitude) : $\lambda_{\text{pompe}} = 780 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 390 \text{ nm}$. Courbe rouge (grande amplitude) : $\lambda_{\text{pompe}} = 796 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 398 \text{ nm}$. Une faible variation de λ_{sonde} a un impact important sur l'amplitude des oscillations Brillouin du FSG alors que l'effet de la pompe est inchangé.

Un modèle simplifié

Le calcul exact de l'amplitude des oscillations Brillouin est fastidieux et peu lisible, nous préférons nous limiter au calcul approché des termes significatifs. Pour alléger les notations, les calculs se limitent au cas d'un échantillon composé d'un matériau transparent sur substrat en présence d'une impulsion bipolaire (voir fig. 1.5), mais cela n'empêche pas la prise en compte de l'effet optique de la couche d'Al. Il suffit pour cela d'adapter les coefficients de réflexion et de transmission.

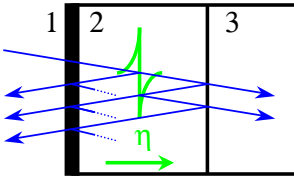


FIG. 1.5 – Géométrie du modèle simplifié. (1) vide, (2) FSG, (3) Si. La couche d'Al à l'interface (1)/(2) est prise en compte en utilisant des coefficients de réflexion et de transmission adaptés.

Le point de départ du calcul reprend l'expression exacte de l'amplitude $|\Delta R|$ des oscillations Brillouin donnée par la relation A.15, d'où l'on déduit :

$$|\Delta R| \propto \left| \text{Re} \left[r_0^* \frac{t_{12}t_{21}}{(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})^2} \int_0^d \eta(z,t)f(z)dz \right] \right|. \quad (1.1)$$

L'indice 1 se rapporte au vide, l'indice 2 au matériau transparent d'épaisseur d dans lequel la sonde a un vecteur d'onde k_2 , et l'indice 3 au substrat, r et t sont les coefficients de réflexion et de transmission optique. Cette expression est proche de l'expression 1.10, p. 14, mais prend en compte la résonance dans la couche de FSG. L'intégrale $\int_0^d \eta f(z)dz$ donne des termes en $e^{\pm 2ik_2Vt}$ responsables des oscillations Brillouin, et son amplitude est faiblement dépendante de la longueur d'onde (sauf dans le cas particulier de trains d'impulsions accordés avec λ_{sonde} [45, 9]). Nous la considérons ici comme constante en amplitude. Le facteur $1/(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})^2$ traduit les effets de résonance optique. Il est maximal pour les longueurs d'onde rendant le produit $r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}$ réel positif, ce qui correspond à un maximum d'intensité dans la couche transparente. On peut alors approcher l'amplitude des oscillations Brillouin par l'expression :

$$|\Delta R| \sim \propto \left| r_0^* \frac{t_{12}t_{21}}{(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})^2} \right|. \quad (1.2)$$

Le coefficient de réflexion de l'échantillon $R = r_0^* r_0$ s'obtient avec l'expression

$$r_0 = r_{12} + \frac{t_{12} t_{21} r_{23} e^{2ik_2 d}}{1 - r_{21} r_{23} e^{2ik_2 d}}. \quad (1.3)$$

Les extrema de ce terme sont semblables à ceux de la valeur approchée de $|\Delta R|$ (pour des indices réels les extrema sont identiques). Dans le cas général R est minimal près des maxima de $|\Delta R|$.

Comme les expériences reviennent à la mesure de $\Delta R/R$, on s'attend à une amplitude maximale des oscillations Brillouin à proximité des longueurs d'onde de résonance. La figure 1.6 compare, dans le cas d'expériences sur Al/FSG/Si, l'amplitude mesurée et le calcul approché de $\Delta R/R$ fait avec les deux relations détaillées ci-dessus, en ajoutant bien sûr l'effet de la couche mince d'Al. Les paramètres donnant les résultats les plus proches des expériences, indiqués dans la légende, sont typiquement dans les intervalles d'incertitude déterminés par ailleurs (voir le chapitre suivant, page 68). Il faut toutefois garder à l'esprit que les approximations du modèle biaisent probablement un peu les résultats.

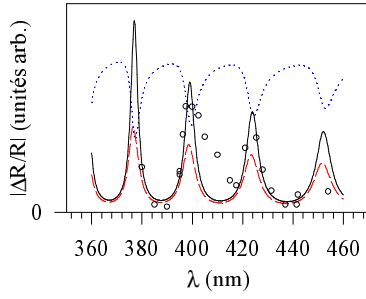


FIG. 1.6 – Amplitude des oscillations Brillouin dans le FSG. Courbe continue noire : calcul approché de l'amplitude de $\Delta R/R$. Cercles noirs : mesures. Tirets rouges : amplitude approchée de ΔR , tirets bleus pointillés : R . Paramètres de calcul : Al(12nm)/FSG(2290nm, $n = 1,47$)/Si.

Nous pouvons constater que l'effet de résonance optique est très fort sur l'amplitude des oscillations Brillouin, bien plus fort que sur le seul coefficient de réflexion. L'importance de l'effet de résonance montre bien que le choix de la longueur d'onde doit être précis pour en tirer parti au cours des mesures. En outre ce phénomène, très sensible à l'indice et à l'épaisseur de la couche transparente, laisse entrevoir un potentiel de gains importants sur la précision des analyses lorsque des mesures spectroscopiques sont réalisées.

1.5 Perspectives

Ce chapitre a exposé le grand intérêt des oscillations Brillouin pour la mesure de l'épaisseur et de la vitesse du son dans les matériaux transparents. Les courbes de réflectivité de ces matériaux présentent généralement des oscillations Brillouin de forte amplitude à une longueur d'onde de sonde adaptée. Les conditions à remplir par les échantillons sont allégées par rapport à l'étude des échos. Les mesures sont ainsi plus riches et plus directes.

Les échantillons étudiés ici avaient tous un substrat de Si exploité pour ses propriétés élasto-optiques mais les résultats s'appliquent à de nombreux autres types de substrats. La partie II de ce manuscrit montre en effet que certains semiconducteurs donnent naissance à des oscillations Brillouin. D'autres matériaux (quartz et saphir par exemple [45]) ont cette même propriété, et de façon générale tout matériau dont la réponse élasto-optique est forte à une longueur d'onde au moins, par exemple les métaux, peut convenir. Dans ce dernier cas, si la couche transparente est déposée sur un métal ou certains substrats semi-conducteurs (Ge, SiGe, ou GaAs par exemple), le dépôt d'un transducteur devient inutile : l'impulsion acoustique est générée directement dans le substrat. Si des conditions efficaces de génération dans le Si sont établies, cette méthode

permettra d'appliquer l'acoustique picoseconde directement sur tous les composants de la filière Silicium, que ceux-ci contiennent des matériaux opaques ou non.

2

Mesures absolues d'indice et de vitesse du son

2.1 Problématique

Le chapitre précédent montre l'intérêt d'exploiter les oscillations Brillouin pour caractériser les couches transparentes, et soulève la question de l'indépendance des mesures : celles-ci dépendent toujours de données d'entrée obtenues par d'autres moyens de caractérisation. Pour déterminer une vitesse du son à partir de la période des oscillations Brillouin il faut en effet connaître l'indice du matériau. L'ellipsométrie est un outil puissant pour mesurer les indices [25, 81]. Mais l'analyse de matériaux nouveaux reste encore complexe pour les non spécialistes. De plus, la technique possède ses propres limitations. Elle est par exemple très sensible aux propriétés des surfaces, parfois difficiles à décrire dans les modèles utilisés pour reproduire les mesures. Il y a donc besoin d'une méthode pour déterminer l'indice et la vitesse du son par acoustique picoseconde indépendamment de toute autre mesure. C'est l'objet de ce chapitre.

2.2 Principe

Lorsqu'un faisceau lumineux traverse une interface plane entre deux milieux transparents, les angles d'incidence et de réfraction respectent la loi de Snell-Descartes qui s'exprime sous la forme [60] :

$$n_0 \sin \theta_0 = n \sin \theta, \quad (2.1)$$

où n_0 et θ_0 sont respectivement l'indice et l'angle d'incidence dans le premier milieu, et n et θ sont l'indice et l'angle réfracté dans le second milieu. Cette loi indique que l'angle du faisceau réfracté évolue dans le sens inverse de l'indice du milieu dans lequel il se propage.

La période des oscillations Brillouin dépend de l'angle de réfraction du faisceau sonde à l'intérieur de l'échantillon. Cet angle apparaît dans le terme en $\cos \theta$ dans l'expression $T = \lambda/2nv \cos \theta$ (rel. 1.2 p. 10), avec les mêmes notations que dans les chapitres précédents.

En rapprochant ces deux expressions on peut comprendre que la période des oscillations Brillouin évolue plus ou moins fortement avec l'angle d'incidence selon le rapport des indices. Les quelques expressions qui suivent ne font que formaliser cette relation.

Si le second milieu de la relation 2.1 est une couche transparente donnant lieu à des oscillations

Brillouin, on peut exprimer leur fréquence sous la forme :

$$f^2 = - \left(\frac{2v}{\lambda} \right)^2 (n_0^2 \sin^2 \theta_0 - n^2), \quad (2.2)$$

où v est la vitesse du son dans le second milieu.

Si nous réalisons maintenant deux expériences numérotées 1 et 2 avec la même longueur d'onde de sonde, en nommant θ_1 et f_1 (resp. θ_2 et f_2) l'angle d'incidence et la fréquence Brillouin dans le premier (resp. le second) milieu il vient :

$$\frac{n}{n_0} = \sqrt{\frac{\sin^2 \theta_1 - \sin^2 \theta_2}{\left(\frac{f_2}{f_1}\right)^2 - 1} + \sin^2 \theta_1} \quad (2.3)$$

et

$$v = \frac{\lambda}{2n_0} \sqrt{\frac{f_2^2 - f_1^2}{\sin^2 \theta_1 - \sin^2 \theta_2}}. \quad (2.4)$$

Quand le premier milieu est constitué d'air ou de vide ($n_0 = 1$), n et v s'obtiennent immédiatement à partir des angles d'incidence et des fréquences Brillouin. On peut même ajouter que la connaissance de la longueur d'onde n'est pas nécessaire pour l'obtention de l'indice, ce qui n'a de sens néanmoins que pour les matériaux dont l'indice varie peu avec la longueur d'onde.

Dans certains cas, le matériau à caractériser est recouvert par plusieurs autres couches, comme des oxydes natifs ou des films minces métalliques. A condition que les interfaces soient parallèles, la relation 2.1 et ensuite la relation 2.2 restent valides si le premier milieu est de l'air et le second est une couche transparente enterrée, y compris si le film de surface est absorbant [60]. Une première conséquence est que les mesures sont possibles même si l'échantillon est recouvert d'adsorbats ou si la composition des interfaces est inconnue, tant que l'échantillon peut être considéré comme un empilement de couches parallèles. En particulier, la présence du film d'Al souvent utilisé comme transducteur ne fausse pas les mesures. Une seconde conséquence concerne les échantillons contenant plusieurs couches transparentes. Lorsqu'une impulsion traverse successivement deux matériaux transparents, la mesure donne deux trains d'oscillations successifs. On peut alors utiliser les différentes périodes Brillouin pour calculer l'indice de chacune des couches de l'échantillon. Ces affirmations sont évidentes si toutes les couches sont transparentes : il suffit d'appliquer la loi de Snell-Descartes.

En pratique, les angles d'incidence et la longueur d'onde peuvent être mesurés précisément avec du matériel classique. Dans les pages qui suivent nous déterminons une précision angulaire de $0,2^\circ$, et notre spectromètre est précis à $0,44$ nm près. La mesure la plus critique est celle de la fréquence des oscillations Brillouin. C'est ce paramètre qui est déterminant pour la précision des mesures. En effet, même si les angles d'incidence sont bien distincts, dès que l'indice est supérieur à 1 les angles réfractés sont moins différents que les angles d'incidence, ce qui tend à rapprocher les fréquences Brillouin. En conséquence le rapport $\left(\frac{f_2}{f_1}\right)^2$ de l'expression 2.3 est très sensible à l'incertitude sur les fréquences.

La méthode proposée ci-dessus sert à déterminer l'indice et la vitesse du son d'un matériau transparent sans aucune connaissance préalable sur ses propriétés. Dans le cas d'un film mince sur un substrat, en appliquant la méthode décrite dans le chapitre précédent, l'épaisseur du film est elle aussi mesurable sans aucune connaissance préalable. Il est ainsi possible de réaliser des mesures par acoustique picoseconde indépendamment de tout autre moyen de caractérisation.

2.3 Validation expérimentale

2.3.1 Montage

La figure 2.1 montre le schéma de principe du montage. Comme dans le cas des mesures sur plaque chauffante (voir chap. 2.6, p. 37), la contrainte principale était de ne pas nuire aux autres études utilisant ce montage en conservant la souplesse de positionnement de l'échantillon. Le dispositif de mesures en angle permet aussi les mesures en incidence quasi-normale. La platine portant l'échantillon reste inchangée et toujours montée dans un support standard permettant un réglage vertical et angulaire rapide. Dans tous les cas la pompe passe d'abord par un polariseur Glan-Taylor, se réfléchit sur le miroir M1 et est focalisée sur l'échantillon par la lentille L1. La sonde est toujours focalisée par la lentille L1. En incidence quasi normale (échantillon en pointillés), la sonde réfléchie suit le trajet inverse de la pompe jusqu'au polariseur Glan-Taylor où elle est déviée vers la photodiode de mesure car sa polarisation est orthogonale à celle de la pompe. En incidence quelconque la sonde réfléchie est recollimatée par la lentille L2 et la photodiode est déplacée. Le support de la platine est monté sur deux systèmes de rotation coaxiaux : un repositionneur incrémentiel par pas de 15° , et une platine de rotation continue pour les petits ajustements. La platine portant l'échantillon a son axe de rotation qui passe dans le plan de la surface des échantillons pour ne pas modifier la distance du point de mesure par rapport à la lentille. L'incidence normale est réglée par rétro-réflexion sur un filtre spatial de diamètre 2 mm placé à 1 m de l'échantillon. Un premier réglage est fait sans la lentille de focalisation L1 puis celle-ci est placée dans le faisceau de façon à conserver la superposition.

En supposant une superposition à 1 mm près, la précision sur l'angle est de $0,18^\circ$. L'incertitude sur la position angulaire des dispositifs de rotation est négligeable devant cette valeur. Les manœuvres de rotations inférieures à $0,02^\circ$ étant indécélables sur l'amplitude du signal mesuré, l'incertitude sur l'angle est arrondie à $0,2^\circ$.

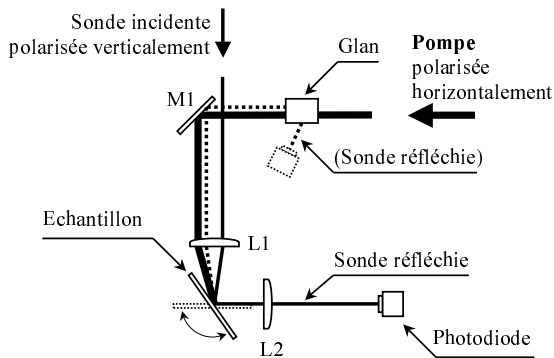


FIG. 2.1 – Schéma de principe des mesures en incidence quelconque. La sonde réfléchie est recollimatée par la lentille L2 et son intensité est mesurée par une photodiode. Pour les mesures en incidence quasi normale la sonde réfléchie suit le trajet en pointillés, colinéaire à la pompe.

2.3.2 Expériences sur GaAs

Pour valider cette technique, il a été choisi d'effectuer une mesure sur GaAs, dont les oscillations Brillouin sont importantes à une longueur d'onde où il est transparent et qui présente moins de variations de propriétés que les diélectriques usuels. Ainsi, la mesure peut être comparée avec les données de la littérature. L'échantillon choisi est un substrat non dopé d'orientation (100).

L'impulsion acoustique est créée directement dans l'échantillon en choisissant $\lambda_{\text{pompe}} = 450 \text{ nm}$, une longueur d'onde où le matériau est absorbant ($\kappa = 1,2$) et où la génération est très efficace. La détection des oscillations Brillouin se fait à $\lambda_{\text{sonde}} = 900 \text{ nm}$, choisie car le GaAs est transparent dans l'infrarouge.

Bien qu'il suffise théoriquement de deux mesures pour déterminer l'indice, cinq mesures ont été faites à des angles différents mais à la même longueur d'onde afin d'évaluer la précision et la cohérence des résultats.

La figure 2.2 montre une mesure représentative des expériences sur GaAs. Le pic aigu, la décroissance et les oscillations Brillouin du GaAs sont bien visibles. Leur fréquence est obtenue par une transformée de Fourier de la mesure, après soustraction préalable de la composante décroissante. L'estimation de l'incertitude est faite en superposant aux mesures des courbes à des fréquences visiblement inférieures ou supérieures à la fréquence expérimentale. Sur la figure 2.3, les barres verticales indiquent la position des minima apparents. Avec cette méthode, l'imprécision estimée sur les fréquences Brillouin est inférieure à 0,5%.

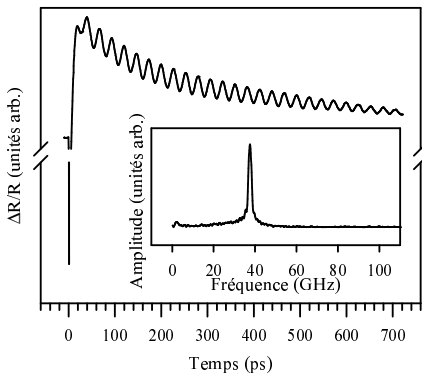


FIG. 2.2 – Mesure sur GaAs à $32,5^\circ$. $\lambda_{\text{pompe}} = 450 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 900 \text{ nm}$. Insert : transformée de Fourier des oscillations.

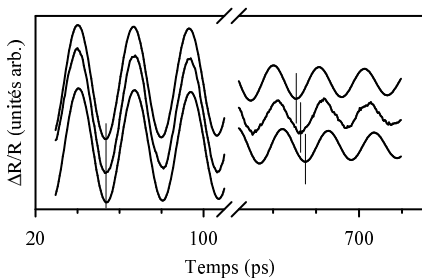


FIG. 2.3 – Estimation de la précision sur la fréquence des oscillations Brillouin. La courbe expérimentale (au centre) est encadrée par deux sinusoides définissant l'intervalle d'incertitude. Les barres verticales indiquent les minima apparents.

Une première vérification est faite en comparant les fréquences des oscillations Brillouin mesurées avec la référence [47] ($v = 4,73 \text{ nm/ps}$, $n = 3,61$). Le désaccord, en deçà de 0,4%, est légèrement inférieur à l'incertitude estimée ce qui accrédite la façon dont elle est évaluée.

Pour analyser les données expérimentales, le carré de la fréquence des oscillations Brillouin est représenté en ordonnée sur la figure 2.4, en fonction du carré du sinus de l'angle d'incidence (en abscisse). Selon la relation 2.2, ce tracé doit donner une droite. Les valeurs expérimentales sont représentées par des croix noires. L'incertitude sur les mesures est représentée par des barres verticales gris clair. La droite oblique noire est la régression linéaire obtenue à partir des mesures. Toujours selon la relation 2.2, l'intersection de cette droite avec l'axe des abscisses donne l'indice du matériau : 3,77 et sa pente donne la vitesse du son : 4,53 nm/ps. La droite oblique grise est tracée à partir des valeurs de l'indice et de la vitesse de référence. Les deux lignes noires en pointillés marquent la limite du domaine où les droites passent par tous les intervalles d'incertitude. Elles servent à la détermination des intervalles d'incertitude sur l'indice [3,47; 4,09] et sur la vitesse du son [4,16; 4,93]. Comme on peut s'y attendre, ce sont les incertitudes sur la première ($4,3^\circ$) et la dernière ($77,5^\circ$) fréquence qui fixent l'incertitude sur l'indice et la vitesse du son. L'incertitude sur les angles ($0,2^\circ$) ou sur λ_{sonde} (0,5 nm) est négligeable. Cette figure appelle plusieurs commentaires.

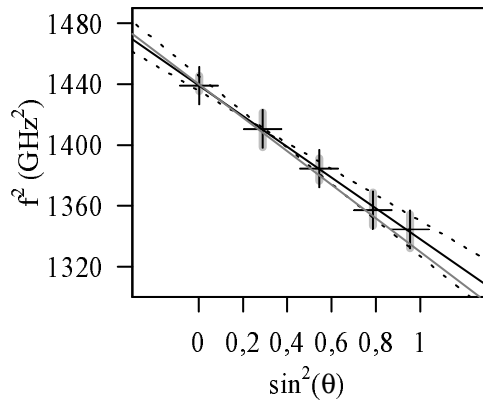


FIG. 2.4 – Carré de la fréquence des oscillations Brillouin du GaAs en fonction du carré du sinus de l’angle d’incidence.
 – Croix noires : mesures.
 – Barres verticales gris clair : incertitude sur les mesures.
 – Droite noire : régression linéaire sur les mesures. Selon la relation 2.2 l’intersection de cette droite avec l’axe des abscisse donne $n = 3,77$ et sa pente donne $v = 4,53$ nm/ps.
 – Droite grise : droite théorique obtenue à partir des données de la littérature [47] ($v = 4,73$ nm/ps, $n = 3,61$).
 – Droites noires en pointillés : intervalle d’incertitude.

Premièrement, les valeurs d’indice et de vitesse du son de référence sont bien comprises dans l’intervalle d’incertitude. Cela démontre la validité de la technique. Deuxièmement, les points expérimentaux sont très proches de la régression linéaire. Cela montre la bonne cohérence des mesures entre elles. Troisièmement, les incertitudes sur l’indice et la vitesse du son sont grandes, supérieures d’environ un ordre de grandeur à l’incertitude sur les fréquences : on obtient finalement comme résultat $n = 3,77 \pm 9\%$ et $v = 4,53 \pm 9\%$. Il est à noter que l’incertitude est d’autant plus grande que les angles sont proches ou que l’indice est élevé, ce qui est le cas du GaAs.

Une autre évaluation de la cohérence des résultats peut être faite en estimant le coefficient d’absorption de l’échantillon. Si l’on considère que l’atténuation des oscillations Brillouin est uniquement due à l’absorption optique, sans atténuation ultrasonore, désalignement des faisceaux ni effets de longueur d’impulsion optique [45], il s’exprime sous la forme : $\kappa = \frac{\lambda\tau}{4\pi v}$ (voir l’annexe C) où τ est le temps caractéristique d’amortissement des oscillations Brillouin. Le calcul donne : $\kappa \sim 0,03$. Il confirme que le matériau est transparent et que κ est réellement négligeable devant n . Cette valeur est toutefois très supérieure à la référence : 3×10^{-4} [56]. Il est vraisemblable que la décroissance des oscillations Brillouin est plutôt due aux mécanismes évoqués précédemment.

Ces résultats montrent que la méthode donne des résultats exacts mais avec une incertitude élevée, et que dans une série de mesures les plus importantes sont celles faites à des angles très différents.

L’application de cette méthode pour la métrologie des couches minces requerrait d’en augmenter la précision. Quelques pistes peuvent être suggérées, comme l’augmentation de la vitesse d’acquisition, de la fréquence de modulation, ou encore de la plage temporelle explorée. Une autre piste d’amélioration, valable dans le cas du GaAs, serait de limiter la fenêtre d’acquisition à la partie contenant les oscillations Brillouin pour pouvoir augmenter l’amplification de la chaîne d’acquisition car seule la fréquence des oscillations Brillouin est exploitée.

Toutefois, même si la précision est d’un à deux ordres de grandeur en dessous de l’ellipsométrie, les paragraphes suivants montrent qu’elle est assez bonne pour obtenir des résultats utiles.

2.4 Application à un échantillon de FSG (Fluorinated Silicate Glass : verre de silice fluorée)

Une première application de la technique fut faite sur un échantillon de FSG au comportement suspect. D’après l’épaisseur nominale et une première mesure par acoustique picoseconde, nous

avons déterminé une vitesse du son de 4,7 nm/ps qui semblait bien basse par comparaison avec celle de la silice, d'environ 5,9 nm/ps. Nos échantillons de FSG ne sont pas uniformes et ont une grande incertitude sur leur épaisseur. Typiquement, l'épaisseur peut varier de 10% sur un même échantillon. De plus, selon les conditions de dépôt les propriétés sont différentes. Ce genre d'exemple illustre bien l'intérêt de réaliser toutes les mesures sur un matériau en un même point de l'échantillon. Sur cet échantillon, la question était de savoir si l'épaisseur était erronée ou si la vitesse du son du FSG est réellement plus basse que celle de la silice. En réalisant deux mesures à des angles distincts (30° et 60°), nous avons obtenu une épaisseur plus grande que prévu et une vitesse du son plus faible que celle du matériau massif, confirmant la tendance donnée par les premières mesures.

Les expériences ont été faites sur un échantillon comportant un film de FSG d'une épaisseur nominale de 2 μm déposé sur un substrat de Si et recouvert d'un transducteur mince (12 nm) d'Al selon la structure : Al(12nm)/FSG(2 μm)/Si. Nous avons utilisé une pompe rouge ($\lambda_{\text{pompe}} = 805 \text{ nm}$) et une sonde bleue ($\lambda_{\text{sonde}} = 402,5 \text{ nm}$) comme décrit dans le chapitre 1. On reconnaît sur la figure 2.5 les oscillations Brillouin du FSG qui cessent brutalement à 431 ps, là où les oscillations Brillouin du Si ont habituellement lieu. En réalité, après cet instant les courbes sont constituées de la superposition de deux oscillations Brillouin, l'une due au Si et l'autre due au FSG car une fraction de l'impulsion initiale est réfléchiée sur l'interface FSG/Si. On peut voir sur la figure que les oscillations Brillouin du FSG sont à nouveau identifiables vers 500 ps lorsque les oscillations Brillouin du Si sont atténuées. La faible amplitude des oscillations Brillouin du Si est peut-être due à l'atténuation des plus hautes fréquences acoustiques dans l'échantillon.

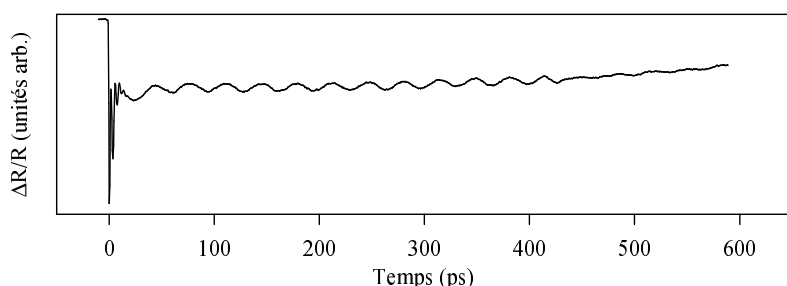


FIG. 2.5 – Mesure sur Al(12nm)/FSG(2 μm)/Si à 60°. $\lambda_{\text{pompe}} = 805 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 402,5 \text{ nm}$. On ne distingue clairement que les oscillations Brillouin du FSG.

En appliquant la même méthode que dans le cas du GaAs, nous déduisons des deux expériences un indice $n = 1,45 \pm 0,04$, une valeur classique pour de la silice. Même si la précision de ce résultat est loin de concurrencer l'ellipsométrie, elle n'est pas si mauvaise : la précision relative est de 3%. A partir des mêmes mesures, on obtient une vitesse du son $v = 5,13 \pm 0,2 \text{ nm/ps}$, une valeur plus élevée que notre première mesure mais toujours significativement moindre que la valeur usuelle pour la silice.

A partir du temps d'apparition des oscillations Brillouin du Si nous avons obtenu une épaisseur $d = 2,21 \pm 0,09 \mu\text{m}$, plus grande que l'épaisseur nominale mais cohérente avec son incertitude.

Comme indiqué dans le paragraphe 2.2, on peut remarquer que la méthode s'applique alors que le FSG est recouvert par de l'Al, un matériau très absorbant [60] au comportement électromagnétique particulier [72] à cette longueur d'onde ($\kappa > 1 > n$). Cela illustre la robustesse de la technique, quelle que soit la nature de la couche de surface.

Une mesure ellipsométrique faite sur une zone de l'échantillon non recouverte par de l'Al a donné un indice de 1,46. Cette valeur, très proche de celle déterminée par acoustique picoseconde (1,45) confirme la validité de la technique.

2.5 Application à un échantillon d'AlN (nitrure d'aluminium)

Même pour des matériaux d'indice supérieur à celui de la silice, la technique peut donner des résultats assez précis si les angles d'incidence sont très différents. Sur l'exemple qui suit l'incertitude sur la vitesse du son est estimée à moins de 3%.

L'échantillon est du même type que précédemment, seule la couche de FSG est remplacée par de l'AlN. La structure est donc : Al(12nm)/AlN(2 μ m)/Si. Ici aussi la valeur de 2 μ m pour la couche d'AlN est nominale. Les longueurs d'ondes sont les mêmes : $\lambda_{\text{pompe}} = 805$ nm, $\lambda_{\text{sonde}} = 402,5$ nm, mais les angles sont cette fois très différents : 2,2° et 57,2°. Assez logiquement, les mesures sont similaires. La courbe de réflectivité sur la figure 2.6 présente des oscillations Brillouin dues à l'AlN d'abord, puis au Si à partir de 191 ps, pour la mesure à 2,2°. A partir de mesures

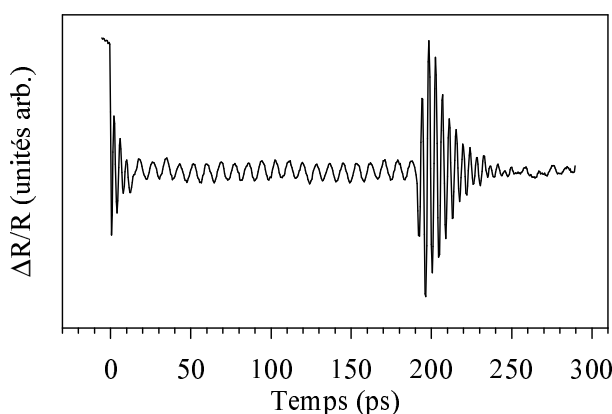


FIG. 2.6 – Mesure sur Al(12nm)/AlN(2 μ m)/Si à 2,2°. $\lambda_{\text{pompe}} = 805$ nm, $\lambda_{\text{sonde}} = 402,5$ nm. La mesure a une forme classique pour cette situation expérimentale : un faible pic initial suivi de la résonance de l'Al, puis des oscillations Brillouin de la couche transparente, ici de l'AlN, et enfin, à 191 ps les oscillations Brillouin du Si.

de la fréquence des oscillations Brillouin, on obtient les résultats suivants : $v = 10,8 \pm 0,3$ nm/ps, $n = 2,19 \pm 0,05$ et $d = 2,07 \pm 0,07$ μ m. Ici encore les mesures par ellipsométrie ont donné une valeur proche (2,16) pour l'indice.

2.6 Discussion

La technique décrite ici sert à déterminer l'indice et la vitesse du son de matériaux transparents sans aucune connaissance préalable sur leurs propriétés. Les résultats obtenus sont moins précis qu'en combinant plusieurs techniques de caractérisation mais ils ne subissent que les limitations de l'acoustique picoseconde, et ils sont déjà utiles en l'état. Pour des couches suffisamment épaisses – au moins 1 μ m – quelques pistes font espérer qu'une amélioration du dispositif est possible, et que l'incertitude pourrait diminuer.

Malgré cette incertitude, la technique a des qualités qui la rendent intéressante en pratique. Tout d'abord, c'est une mesure absolue qui repose uniquement sur la connaissance de l'angle d'incidence. Cela évite d'avoir à utiliser des données en provenance d'autres moyens de caractérisation, toujours susceptibles d'être discutées, et rend par conséquent l'acoustique picoseconde indépendante. Deuxièmement, les données expérimentales utilisées pour déterminer l'indice et la vitesse du son peuvent aussi être exploitées pour obtenir d'autres informations. Le chapitre 1 décrit comment déterminer l'épaisseur d'un film, nous avons vu que l'absorption optique peut aussi être mesurée, et le chapitre 3 montre que l'atténuation ultrasonore, la densité ou les interfaces peuvent aussi être étudiées. Troisièmement, l'analyse des mesures est assez simple même dans le cas d'un empilement de couches, d'autant plus que la réversibilité du modèle rend possible le calcul direct, sans recours à la simulation. Enfin, le mécanisme physique mis en jeu dans cette technique, le couplage élasto-optique, est différent des mécanismes utilisés d'ordinaire pour la

caractérisation des films minces. Ses limitations sont vraisemblablement elles-aussi différentes. Par exemple, les altérations de surface telles que de fines couches d'oxydes, des couches adsorbées ou la rugosité n'ont aucun effet sur ce mécanisme alors qu'elles complexifient les mesures ellipsométriques. Il y a là une alternative possible aux techniques usuelles de mesure d'indice et de vitesse du son pour les couches minces.

3

Approfondissement de l'exploitation des oscillations Brillouin

3.1 Pour aller plus loin

En plus de la période et de la phase des oscillations Brillouin, il est tentant de vouloir exploiter leur amplitude, ou de tirer de leurs accidents des informations sur les échantillons. Les mesures d'acoustique picoseconde sont en effet sensibles à de nombreux paramètres, mais de façon plus indirecte ou bien plus difficile à identifier que ceux qui ont été étudiés jusqu'ici. Ce chapitre montre sur quelques exemples que l'analyse proposée dans les deux premiers chapitres peut servir de point de départ pour approfondir l'exploitation des oscillations Brillouin.

Nous nous intéressons tout d'abord à des paramètres acoustiques, la masse volumique et l'atténuation ultrasonore, et nous nous appuyons sur des simulations. L'identification d'éléments simples dans les courbes de réflectivité (période Brillouin, temps caractéristiques) apportée par les chapitres précédents facilite la reproduction des courbes expérimentales par simulation malgré la dépendance multiple des courbes de réflectivité aux nombreux paramètres décrivant les échantillons. Dans certains cas ceux-ci ne suffisent pas. Nous envisageons alors l'hypothèse d'effets dus à la largeur spectrale de la sonde, non pris en compte dans les modèles usuels.

Nous abordons ensuite un sujet plus ouvert, la caractérisation des interfaces, car certains éléments des mesures présentant des oscillations Brillouin y semblent très sensibles. Enfin, nous illustrons le potentiel des oscillations Brillouin pour l'étude d'objets très petits sur l'exemple de sphères de Ge mesurant seulement quelques nanomètres de diamètre.

3.2 Atténuation ultrasonore et masse volumique

3.2.1 Un sujet bien balisé

En 1991 [85, 45] l'équipe de H. J. Maris publie des articles montrant comment l'acoustique picoseconde peut être employée pour mesurer l'atténuation ultrasonore de deux manières différentes.

Dans l'article de T.C. Zhu [85], qui approfondit une idée évoquée dès 1986 [77], des films de silice CVD (chemical vapor deposition) de dimensions comparables aux nôtres sont étudiés, et il est montré que l'atténuation à température ambiante est mesurable dans ce matériau. Les échantillons ont une structure de type Al(13nm)/SiO₂/W. La pompe et la sonde ont la même longueur d'onde (585 nm) et sont issues d'un laser à colorants. La pompe crée une impulsion

acoustique dans le film d'Al, celle-ci se propage dans la silice, est fortement réfléchi à l'interface avec le substrat, puis revient vers la surface pour s'y réfléchir à nouveau et provoquer un écho. En comparant la transformée de Fourier des différents échos, il est possible de déduire l'atténuation provoquée par la silice dans une gamme de fréquences allant de 80 à 400 GHz. Sans remettre en cause ces résultats on peut toutefois remarquer une difficulté liée à cette technique. Elle repose en effet sur l'excellent accord acoustique avec le transducteur, ici de l'Al. Or la palette des transducteurs efficaces est assez limitée. Un léger désaccord rend difficile la comparaison entre deux échos successifs car ceux-ci n'ont plus exactement la même forme, ce qui fait évoluer leur contenu fréquentiel. En effet, une impulsion qui retourne vers la surface est d'abord partiellement réfléchi à l'interface silice/Al puis totalement à l'interface Al/air, cette dernière impulsion subissant elle-même des réflexions multiples dans la couche d'Al. Il est bien sûr possible de quantifier ces effets mais l'analyse des mesures devient alors plus complexe, et la brièveté des échos (environ 15 ps) en renforce la difficulté lorsqu'il s'agit de réaliser une transformation de Fourier. Par ailleurs, le substrat de W est choisi pour son très fort contraste acoustique avec la silice, indispensable au retour d'un écho exploitable. C'est une contrainte forte sur le substrat supportant le film.

En 1996 E. Romatet [63] montre comment raffiner cette technique en exploitant la dépendance en fréquence de l'atténuation ultrasonore. En effet, le logarithme du rapport entre les transformées de Fourier de deux échos successifs suit une loi comportant un terme constant dû au coefficient de réflexion, et un terme quadratique dû à l'atténuation, qui évolue généralement selon le carré de la fréquence. Il est ainsi possible de mesurer ces deux grandeurs à partir d'une même expérience.

Dans l'article de H. -N. Lin [45], la situation expérimentale est semblable à celle de l'article de T.C. Zhu [85] et la gamme de longueurs d'onde est la même. Cette fois-ci ce ne sont pas des échos mais des oscillations Brillouin qui sont employées pour mesurer l'atténuation ultrasonore. Le principe de la mesure est beaucoup plus simple. Sur un échantillon de type Al(10nm)/transparent la pompe absorbée par un transducteur mince d'Al lance une impulsion acoustique dans un substrat transparent. La sonde est dirigée vers la face arrière et des oscillations Brillouin apparaissent. La décroissance des oscillations étant entièrement due à l'atténuation ultrasonore, il devient possible de la mesurer à la fréquence Brillouin, autour de 30 GHz dans la silice à cette longueur d'onde. Pour que ces mesures soient fiables, un grand soin est pris pour maîtriser les alignements optiques, et l'absence de diffraction acoustique est vérifiée. Ces mesures nécessitent par ailleurs que les impulsions lumineuses aient une longueur de cohérence relativement grande, ce qui leur impose typiquement une durée supérieure à 200 fs pour une durée d'acquisition de 2 ns si on souhaite qu'elle n'influence pas les mesures [45].

3.2.2 Atténuation ultrasonore dans les films minces transparents

Des approches spécifiques nécessaires pour films minces transparents

La mesure d'atténuation par les méthodes exposées ci-dessus est difficilement applicable à nos échantillons en films minces. Le désaccord acoustique avec le transducteur est souvent significatif, et les échantillons ne sont pas toujours déposés sur des substrats à fort contraste acoustique. Tout cela est pénalisant pour la mesure basée sur la transformée de Fourier des échos. Par ailleurs, leur épaisseur n'est pas suffisante pour mesurer la décroissance des oscillations Brillouin. A ces fréquences en effet, autour de 50 GHz dans la silice en sonde bleue, l'atténuation ultrasonore est peu sensible. On pourrait vouloir comparer l'amplitude des oscillations Brillouin du Si dans deux échantillons dont les films minces sont d'épaisseurs différentes pour en déduire l'atténuation dans le matériau des films, en supposant que le changement d'épaisseur n'affecte pas ses autres propriétés. Toutefois l'amplitude des oscillations ne dépend pas seulement de l'atténuation mais

aussi de l'épaisseur du transducteur et de l'épaisseur de la couche transparente et la comparaison n'est pas directe.

Effets sensibles

Certaines expériences semblaient indiquer que des effets d'atténuation ultrasonore sont très sensibles sur nos échantillons. Si l'on regarde la mesure sur FSG fig. 2.5 page 68, on peut remarquer que les oscillations Brillouin du Si, qui devraient avoir lieu à partir de 420 ps, sont quasiment indétectables. On pourrait penser que c'est dû à une interface très désaccordée mais dans ce cas les oscillations Brillouin incidentes et réfléchies du FSG devraient avoir une amplitude quasiment égale. Or c'est loin d'être le cas. La même mesure sur un échantillon moins épais, 500 nm au lieu de 2 μm , fig. 3.1, montre un comportement semblable : une fraction de l'impulsion née dans l'Al franchit l'interface FSG/Si et donne des oscillations Brillouin visibles dans le FSG et le Si vers 100 ps. La fraction réfléchie sur cette interface retourne ensuite vers la surface, s'y réfléchit, (écho vers 210 ps) puis traverse à nouveau la couche de FSG et franchit l'interface FSG/Si. Au cours de ce second passage, des oscillations Brillouin sont visibles dans le FSG mais pas dans le Si.

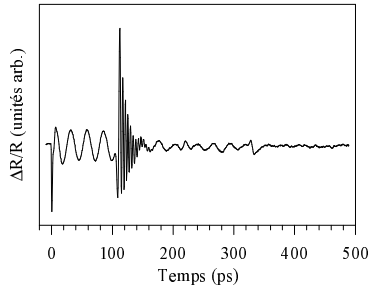


FIG. 3.1 – Mesure Al/FSG(500 nm)/Si. $\lambda_{\text{pompe}} = 804 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 402 \text{ nm}$. La première impulsion acoustique qui franchit l'interface FSG/Si vers 105 ps donne des oscillations Brillouin visibles dans le FSG et le Si. La seconde, qui franchit l'interface vers 315 ps, en donne dans le FSG mais plus dans le Si.

Les oscillations du Si sont un peu plus visibles mais leur amplitude est sans rapport avec celle habituellement mesurée (voir fig. 2.5 page 33). Deux arguments plaident en faveur d'une explication impliquant l'atténuation ultrasonore. Tout d'abord, ce sont les oscillations Brillouin du Si qui semblent affectées. Or celles-ci ont une période d'environ 4 ps, cinq fois plus petite que la période des oscillations Brillouin de la silice. La fréquence est en rapport inverse, et si l'atténuation dépend du carré de la fréquence [65], l'effet doit être vingt-cinq fois plus marqué dans le Si que dans la silice. On pourrait comprendre que l'atténuation ultrasonore des impulsions acoustiques ne soit visible qu'au travers des oscillations Brillouin du Si. Le second argument est que l'amplitude des oscillations Brillouin du Si semble d'autant plus petite que le trajet dans le FSG est long. Cela accrédite l'idée d'un phénomène lié à l'épaisseur du film et non à son interface ou aux propriétés du substrat. Pour déterminer l'atténuation ultrasonore ou la masse volumique de nos films minces il fallait donc employer une autre méthode.

Mesure de la masse volumique

La masse volumique d'un matériau s'obtient par acoustique picoseconde si l'on arrive à mesurer le coefficient de réflexion acoustique à l'interface avec un autre matériau connu : $R = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1}$, où $Z = \rho v$ désigne l'impédance acoustique, ρ la masse volumique et v la vitesse du son. Une première méthode consiste à exploiter l'amplitude des échos réfléchis, mais elle est très sensible à l'atténuation ultrasonore [77]. Dans les échantillons transparents il faut y ajouter l'influence du transducteur, ce qui impose de grandes précautions dans l'analyse des mesures. Cet écueil peut être partiellement évité en exploitant l'amplitude des oscillations Brillouin avant et après

réflexion. C'est typiquement le cas pour l'expérience sur Al(13 nm)/SiO₂(420 nm)/Si (fig. 2.8 page 34). Comme les oscillations de la silice sont modulées par celles du Si, l'outil de simulation facilite les comparaisons. Une fois fixées l'épaisseur et la vitesse du son, la masse volumique reste le seul paramètre influençant le rapport des deux amplitudes. Il en résulte pour la silice une masse volumique $\rho = 2,0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ (voir tab. 2.1 page 31). Cette valeur, bien que faible par rapport à la masse volumique du matériau massif ($\rho = 2,2 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ [43]), est plausible compte-tenu du mode de dépôt (PECVD). L'amplitude constante des oscillations Brillouin indique d'ailleurs que l'atténuation ultrasonore de la silice est négligeable devant l'effet du coefficient de réflexion pour ce type de mesures. Cependant, rien ne garantit que l'interface n'a pas elle aussi un effet atténuateur ou dispersif. Un autre échantillon où seule l'épaisseur de silice diffère pourrait lever ce doute.

Atténuation

Pour des matériaux transparents présentant une faible atténuation déposés sur Si, l'analyse des oscillations Brillouin du Si peut renseigner utilement. La figure 3.2 montre la mesure sur un échantillon de structure Al(13nm)/SiN(551nm)/Si en configuration rouge-bleu ($\lambda_{\text{pompe}} = 804 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 402 \text{ nm}$). Sur cette même figure sont représentées plusieurs simulations dont la seule différence est le paramètre d'atténuation indiqué au dessus des courbes. La comparaison avec les mesures est seulement qualitative mais elle permet de donner une limite maximale à l'atténuation : $\delta < 10^{-4} \text{ ps}^2/\text{nm}$.

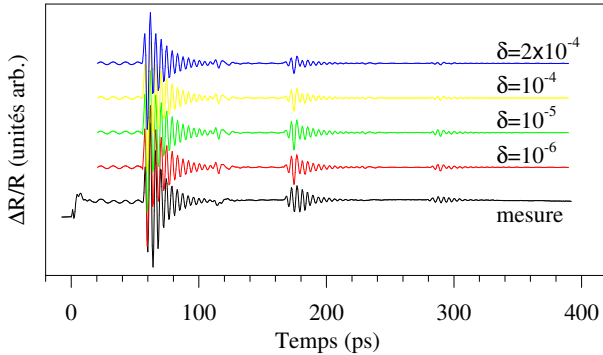


FIG. 3.2 – Mesure et simulations sur Al(13nm)/SiN(551nm)/Si. $\lambda_{\text{pompe}} = 804 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 402 \text{ nm}$. Seul le paramètre d'atténuation différencie les simulations.

Pour évaluer la sensibilité à l'atténuation ultrasonore nous avons réalisé des simulations avec le programme Couches en utilisant des données de la littérature pour les propriétés du SiN et du Si, et en faisant varier l'atténuation dans le SiN. Le résultat est présenté sur la figure 3.2. Pour chaque simulation la valeur du paramètre d'atténuation δ est indiquée au dessus de la courbe. Ce coefficient est introduit en supposant l'atténuation proportionnelle au carré de la fréquence, ce qui aboutit à un facteur sur l'amplitude en $\exp(-\delta\omega^2z)$ avec ω la pulsation de l'onde et z sa distance de propagation. Les simulations s'éloignent significativement de la mesure à partir de $\delta = 10^{-4} \text{ ps}^2/\text{nm}$. On peut se demander si un changement de masse volumique du SiN n'aurait pas des effets semblables, mais il faut alors avoir à l'esprit qu'une différence de masse volumique de 10%, valeur importante, aurait un effet du même ordre de grandeur sur le coefficient de réflexion acoustique SiN/Si. La différence d'amplitude entre la courbe verte et la jaune étant bien plus grande (resp. $\delta = 10^{-5}$ et $\delta = 10^{-4}$), une éventuelle imprécision sur la masse volumique est négligeable pour l'estimation de la limite supérieure de l'atténuation ultrasonore. En suivant le principe utilisé par E. Romatet, la distinction devient possible entre les effets du coefficient de réflexion et l'atténuation si l'on dispose de mesures où les oscillations Brillouin ont

des fréquences différentes. Il suffit pour cela de réaliser une autre mesure à une longueur d'onde de sonde différente.

Nous avons recherché des situations propices à l'évaluation de l'atténuation sur des échantillons trop dissipatifs pour analyser finement l'amplitude des oscillations Brillouin du Si. Sur les échantillons de type Al/SiO₂/Si, il arrive fréquemment lorsque la sonde est bleue que le signal acoustique du Si disparaisse, comme le montre la figure 3.1. Sur un substrat de Ge en revanche, les trains d'oscillations Brillouin sont plus nombreux. C'est compréhensible puisque la période Brillouin du Ge dans le rouge est de l'ordre de 11 ps, le triple de celle du Si, et donc on s'attend à une atténuation des oscillations neuf fois moindre. Le Ge possède en outre l'avantage d'être un matériau efficace pour la génération des ondes acoustiques, ce qui permet de se passer de transducteur. Nous avons alors réalisé une expérience de type "rouge-rouge" ($\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 710 \text{ nm}$) sur un échantillon de structure SiO₂(325nm)/Ge (fig. 3.3) à température ambiante.

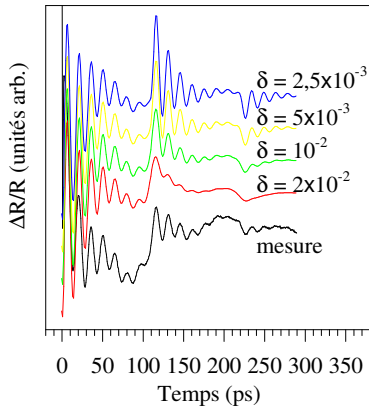


FIG. 3.3 – Mesure et simulations sur SiO₂(325 nm)/Ge. $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 710 \text{ nm}$. La seule différence entre les simulations est le paramètre d'atténuation ultrasonore, indiqué au dessus des courbes.

On reconnaît sur la mesure les oscillations Brillouin du Ge à leur période. Celles-ci décroissent à mesure que l'impulsion s'enfonce dans le substrat puisque le Ge absorbe la lumière. Ces oscillations sont structurées en trois trains successifs correspondant pour le premier à l'impulsion initialement générée dans le Ge, et ensuite à l'impulsion ayant effectué d'abord un, puis deux allers-retours dans la couche de silice avant d'entrer dans le Ge. Ces oscillations sont superposées à un fond lui-même oscillant dû à la fois aux oscillations Brillouin de la silice et aux effets de "saut" qui sont ici progressifs du fait de l'étendue importante de l'impulsion acoustique.

Différentes simulations sont présentées sur la figure 3.3. Seule l'atténuation dans la silice distingue les jeux de paramètres employés. La courbe la plus semblable à la mesure est celle où δ vaut $10^{-2} \text{ ps}^2/\text{nm}$. C'est celle où les amplitudes des oscillations Brillouin sont le mieux respectées. Ce type de mesure permet donc de déduire l'ordre de grandeur de l'atténuation ultrasonore de notre couche de silice.

A titre de comparaison, les valeurs d'atténuation mesurées par T. C. Zhu [85] sur des films minces de silice CVD par la technique d'analyse de l'amplitude des échos donne des valeurs de δ à 300 K comprises entre 4×10^{-3} et $10^{-2} \text{ ps}^2/\text{nm}$. Notre résultat concorde bien avec ces valeurs, qui sont légèrement plus élevées que celles mesurées par diffusion Brillouin [80] dans des substrats de silice ($\delta \sim 3 \times 10^{-3} \text{ ps}^2/\text{nm}$).

Ces deux exemples montrent l'intérêt des oscillations Brillouin pour la mesure d'atténuation. Comme elles peuvent être produites dans une grande variété de configurations, que leur analyse est relativement simple (en première approche il suffit de comparer des amplitudes), elles forment un moyen privilégié pour l'étude de l'atténuation. En outre, ses effets étant sensibles sur des matériaux usuels, il y a là un potentiel important d'approfondissement des analyses présentées dans ce manuscrit.

3.3 Caractérisation des interfaces

Parmi les intérêts des oscillations Brillouin pour l'étude des matériaux, nous avons mentionné qu'il s'agissait d'une sonde locale. C'est à dire qu'à un instant donné, la mesure est le reflet de phénomènes se déroulant là où une impulsion acoustique est présente. On peut alors visualiser grâce aux oscillations Brillouin le passage d'une interface par une impulsion acoustique. Nous avons par exemple réalisé des expériences sur des échantillons constitués d'un film de GaAs reporté sur un substrat de GaAs de même orientation, l'ensemble étant recouvert d'un transducteur d'Al. Les films sont réalisés par épitaxie avec des paramètres pouvant varier d'un échantillon à l'autre. Ils sont conçus pour générer et détecter des impulsion électriques dans des composants THz [12].

3.3.1 Détection d'une interface GaAs/GaAs

La mesure fig. 3.4 concerne une membrane de GaAs (100) épitaxié à basse température et non recuit (réf. BTNR 1-1), réalisée par l'équipe d'épitaxie de l'IEMN. Ce procédé, générateur de défauts, est réalisé pour diminuer le temps de vie des porteurs et augmenter en conséquence la rapidité des composants. La membrane est reportée sur un substrat de GaAs auquel elle adhère grâce aux forces de Van der Waals. On peut s'attendre à ce que les propriétés de la membrane diffèrent légèrement de celles d'un substrat. La forme de la mesure est classique, on remarque toutefois un accident dans les oscillations vers 350 ps. Il s'agit certainement du franchissement de l'interface membrane/substrat. En employant la vitesse du son du GaAs massif, nous obtenons une épaisseur de 1755 nm, conforme aux spécifications de l'échantillon. Comme la période Brillouin calculée avec la vitesse du son et l'indice du matériau massif concorde avec celle avant et celle après 350 ps, l'épaisseur mesurée est très plausible. A première vue, les oscillations avant la perturbation décroissent légèrement, et celles après la perturbation ont une amplitude constante plus élevée qu'avant. On peut donc raisonnablement penser que l'interface transmet une fraction importante de l'impulsion acoustique dans le substrat. Cette mesure démontre qu'il est possible de détecter une interface GaAs/GaAs bien qu'elle soit réalisée de façon à limiter la zone interfaciale à quelques plans atomiques.

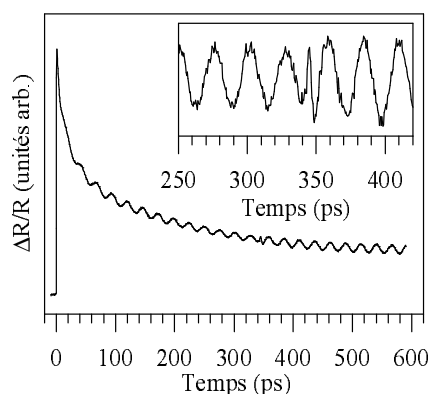


FIG. 3.4 – Mesure sur Al(13nm)/GaAs(1755nm)/GaAs. $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 920$ nm. On reconnaît le pic électronique suivi de la décroissance de thermalisation, sur laquelle se superposent des oscillations Brillouin. Vers 350 ps, celles-ci subissent une perturbation attestant du franchissement de l'interface GaAs/GaAs.

3.3.2 Evaluation des propriétés de l'interface

Lorsqu'on observe les oscillations de part et d'autre de la perturbation, on peut remarquer qu'elles sont en opposition de phase. L'origine de ce changement de phase reste incertaine, mais deux hypothèses ont été testées : présence d'une couche interfaciale plus ou moins désaccordée

acoustiquement et optiquement, ou bien différence de coefficients élasto-optiques dans les deux matériaux. La simulation donnant le meilleur résultat est celle où il n'y a pas de couche d'interface, en prenant des coefficients élasto-optiques différents pour la membrane et le substrat (voir fig. 3.5), ce qui semble confirmer que la nature des deux matériaux n'est pas la même.

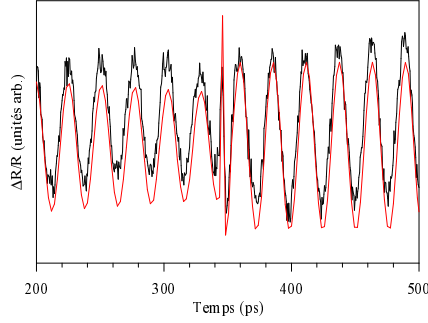


FIG. 3.5 – Mesure sur Al(13nm)/GaAs(1755nm)/GaAs autour de l'interface GaAs/GaAs et simulation. $\lambda_{\text{pompe}} = \lambda_{\text{sonde}} = 920 \text{ nm}$. La perturbation est bien reproduite en choisissant des coefficients élasto-optiques différents pour la membrane et le substrat.

En répétant cette analyse sur d'autres échantillons faits avec des membranes différentes (Al-GaAs, GaAs basse température recuit), des conclusions globalement similaires peuvent être tirées : la transmission acoustique est bonne, et la zone de transition entre les deux matériaux est certainement limitée à quelques plans atomiques.

Ces premiers résultats montrent qu'il est possible d'étudier les propriétés des interfaces même entre des matériaux très semblables. Il y a peut-être là une piste pour l'explication des différences parfois constatées entre les mesures et les simulations pour les échantillons Al/SiO₂/Si. Sur la figure 2.8, p.34, les traits principaux de la mesure sont reproduits fidèlement par le calcul, mais les premiers instants des oscillations Brillouin du Si sont mal décrits par le modèle. L'interface SiO₂/Si pourrait être à l'origine de cet effet. Par exemple, le calcul ne prend pas en compte un mauvais collage des films, alors qu'il peut être sensible [39, 74]. Il ne prend pas en compte non plus la variabilité de la réponse fréquentielle des interfaces à gradient de composition [61].

3.4 Largeur spectrale de la sonde

Chaque expérience analysée dans ce manuscrit suppose une longueur d'onde de sonde unique. Or, la brièveté des impulsions (150 fs) leur confère une certaine largeur spectrale, d'environ 8 nm à 900 nm en pratique. On pourrait penser que cette largeur est négligeable à nos échelles.

Examinons par exemple une expérience sur un substrat de GaAs, dans les conditions du paragraphe 2.3.2 p.65. On considère que les oscillations Brillouin sont identiques en amplitude et en phase à l'origine pour toutes les longueurs d'onde, et différent seulement par leur période. La mesure s'obtient en faisant la somme de mesures faites à chaque longueur d'onde, pondérées par l'intensité de la sonde à ces longueurs d'onde. Si la sonde a une répartition gaussienne en longueurs d'onde, la mesure est composée d'oscillations Brillouin dont la fréquence est donnée par la longueur d'onde centrale de la sonde. L'enveloppe de ces oscillations est la gaussienne issue de la transformation de Fourier de la répartition des longueurs d'onde (voir fig. 3.6).

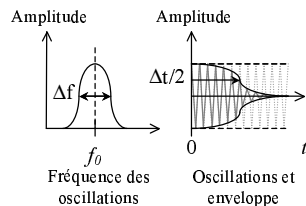


FIG. 3.6 – Effet de l'étalement spectral de la sonde. A gauche : répartition des fréquences des oscillations Brillouin. A droite : aspect temporel des mesures. En pointillés : effet d'une sonde monochromatique.

Pour le GaAs autour de 900 nm, avec une largeur spectrale de 8 nm on obtient une enveloppe gaussienne dont la demi-largeur est 650 ps. C'est à dire que l'amplitude des oscillations est divisée d'un facteur deux à 650 ps. Si l'on observe les mesures sur GaAs on peut en effet remarquer un comportement étonnant. La figure 3.7 représente une des courbes expérimentales utilisées pour la mesure de l'indice de ce matériau. La courbe rouge est une sinusoïde de même fréquence que la mesure, modulée par un cosinus s'annulant à 800 ps. Elle n'a pas de signification physique mais sert de support de comparaison. On peut remarquer que l'accord en fréquence avec la mesure est bon jusqu'à 800 ps environ, et qu'ensuite la mesure semble être en quadrature avec la courbe rouge. Cette observation est compatible avec l'ordre de grandeur calculé auparavant, mais au lieu de disparaître totalement comme cela se produirait si les oscillations avaient une enveloppe gaussienne, l'amplitude des oscillations augmente à nouveau. La dispersion des indices pourrait jouer un rôle, mais les quelques simulations réalisées jusqu'à présent ne rendent pas bien compte des mesures. Ces résultats suggèrent que l'analyse aux temps longs des oscillations Brillouin devra prendre en compte la dispersion en longueur d'onde de la sonde, mais il faut les considérer avec prudence tant que leur reproductibilité n'est pas vérifiée. On peut en effet imaginer qu'un changement de géométrie de l'impulsion sonde avec le retard optique ait des effets de même nature, et nous sommes presque dans le bon ordre de grandeur pour ressentir des effets de longueur de cohérence évoqués p. 74 [75]. Cet effet montre aussi que la tendance actuelle à l'emploi d'impulsions lumineuses de plus en plus courtes [30] est susceptible d'interdire ou au moins de complexifier les mesures d'oscillations Brillouin aux temps longs.

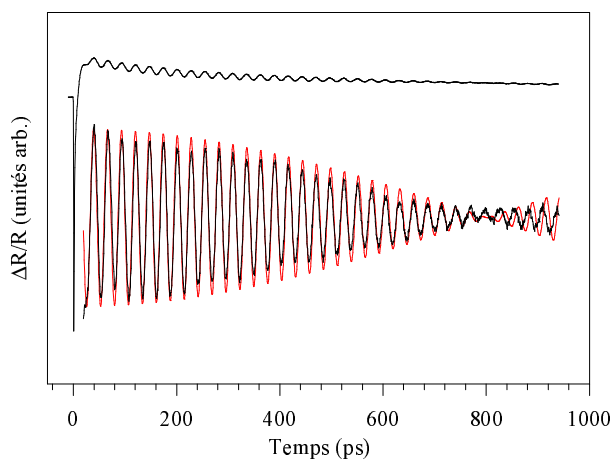
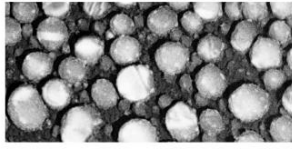


FIG. 3.7 – Mesure sur un substrat de GaAs. $\lambda_{\text{pompe}} = 540 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sonde}} = 900 \text{ nm}$, incidence de la sonde : $42,5^\circ$. En rouge, support de comparaison : sinusoïde modulée par un cosinus.

3.5 Etudes d'objets tridimensionnels

Ce dernier exemple relate une expérience exploratoire menée sur un échantillon composé de particules de Ge déposées sur un substrat de saphir (Al_2O_3). La figure 3.8 montre un échantillon de ce type. La dimension indiquée sur le cliché (10 nm) correspond à l'épaisseur d'un film continu qui serait réalisé avec la matière des particules. Celles-ci ont un diamètre variable centré autour d'une vingtaine de nanomètres et ont une forme approximativement sphérique (goutte solidifiée). Les échantillons sont réalisés au LPMC de l'Université de Nice-Sophia Antipolis [71].

L'objectif était de tester l'applicabilité de la technique d'acoustique picoseconde sur ce type d'objets. A ce titre, l'idée était de générer des ondes acoustiques dans les particules de Ge et de les détecter dans l'échantillon. Nous avons choisi une pompe bleue (450 nm) afin qu'elle soit fortement absorbée par le Ge ($\kappa = 2,3$), et une sonde rouge, plus facile à employer. La géométrie



Ge/Al2O3/650°C 9/3/2000

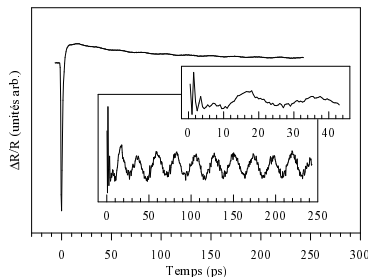
Ge 10nm

50nm

FIG. 3.8 – particules de Ge sur substrat de saphir. Cliché LPMC, Université de Nice - Sophia Antipolis.

de l'expérience est habituelle (pompe et sonde quasi-colinéaires, mesure de réflectivité) mais l'échantillon est placé de sorte que la face couverte de Ge soit du côté opposé aux faisceaux. Ainsi, on rend possible la détection d'une éventuelle onde acoustique dans les deux constituants de l'échantillon. De plus, le front incident de l'onde acoustique dans le saphir pourrait être plus uniforme, puisque quelque soit le diamètre des particules, leurs portions illuminées par la pompe sont dans le même plan, le plan de la surface du substrat.

La mesure, présentée figure 3.9, a une forme typique de la réponse du Ge en sonde rouge : un pic marqué vers le bas puis une décroissance lente. En soustrayant ce fond de la mesure, des structures deviennent identifiables (voir le plus grand insert) : des oscillations de période 22,8 ps, caractéristiques d'oscillations Brillouin dans le saphir. L'indice et la vitesse du son du saphir valant respectivement 1,76 et 11,2 nm/ps [48], avec $\lambda_{\text{sonde}} = 900$ nm on calcule une période $T = \lambda/2nv = 22,8$ ps identique à celle mesurée. On détecte donc bien une onde acoustique, générée très probablement dans le Ge puisque le saphir est transparent. Il semble en outre que le Ge ne transmette des ondes acoustiques que dans les tous premiers instants de l'expérience car les oscillations ont une amplitude et une phase constantes. Celles-ci seraient probablement perturbées si une résonance des particules se maintenait car la transmission de l'onde acoustique dans le substrat serait longue. Or, si les oscillations Brillouin sont stables c'est qu'elles sont en régime établi, *i.e.* lorsque la forme de l'impulsion dans le substrat ne varie pas dans le temps. Si l'on regarde maintenant les premiers instants de la mesure, on peut y voir des oscillations de très courte période (environ 2 ps) rapidement amorties, correspondant approximativement à la période du premier mode de vibration des particules [40]. Néanmoins, elles résultent plus certainement du traitement de retrait du fond qui consiste à soustraire des contributions exponentielles. On ne s'attend pas à des oscillations marquées car la distribution des tailles des particules est large, source d'interférences destructives.

FIG. 3.9 – Mesure sur des particules de Ge déposées sur saphir. $\lambda_{\text{pompe}} = 450$ nm, $\lambda_{\text{sonde}} = 900$ nm. Les deux inserts sont des agrandissements de la mesure à laquelle est soustraite une contribution exponentielle.

Cette mesure montre que les oscillations Brillouin peuvent participer à l'étude d'objets nanométriques : elles permettent ici de s'assurer de l'existence de phénomènes acoustiques dans l'échantillon et de donner une première idée du comportement vibratoire des particules.

3.6 Discussion

Que l'on veuille mesurer davantage de paramètres, mieux comprendre les mesures ou étendre le domaine des objets étudiés, cela nécessite d'approfondir le niveau d'analyse des oscillations Brillouin. Les quelques cas traités dans ce chapitre montrent que la mesure de la masse volumique ou de l'atténuation ultrasonore sont possibles, que des effets d'interfaces et peut-être de largeur spectrale jouent un rôle visible dans les mesures, et que des échantillons tridimensionnels peuvent aussi donner lieu à des oscillations Brillouin exploitables.

Il se dégage de ces études que les effets mentionnés ici sont liés. La mesure de la masse volumique ne sera vraiment fiable que si l'atténuation dans les films, les effets d'interface, voire de largeur spectrale sont pris en compte, et réciproquement.

Approfondir l'exploitation des oscillations Brillouin nécessite donc de repenser les expériences. Plusieurs directions peuvent être proposées. La plus simple pour la lisibilité des mesures est de trouver une situation expérimentale où les paramètres significatifs sont peu nombreux. C'est par exemple le cas pour la mesure de l'atténuation dans la silice. Une autre direction est d'enrichir le modèle, intégrant une meilleure description de l'expérience, peut-être pertinente pour l'étude des interfaces. Enfin, le dispositif expérimental lui-même peut évoluer vers une plus grande maîtrise de la géométrie des faisceaux et de la forme des impulsions.

Synthèse de l'étude des matériaux transparents grâce aux oscillations Brillouin

Les oscillations Brillouin donnent des informations qui facilitent ou enrichissent l'analyse des mesures d'acoustique picoseconde. A partir de paramètres très simples à extraire tels que la période ou la durée des oscillations, il est possible de mesurer l'épaisseur, la vitesse du son et l'indice d'un matériau en imposant peu de contraintes aux échantillons : il suffit d'employer des longueurs d'ondes qui favorisent respectivement la transparence et le couplage élasto-optique pour la sonde, et la génération d'une onde acoustique pour la pompe. En multipliant les angles d'incidence il devient même possible de se passer de toute donnée d'entrée sur les matériaux étudiés, ce qui n'est pas si courant pour les techniques de caractérisation des films minces. La richesse des oscillations Brillouin permet d'envisager d'étudier d'autres paramètres, comme la masse volumique, l'atténuation ultrasonore ou la qualité des interfaces, dans des conditions plus larges et plus directes que celles imposées pour l'analyse des échos.

La sensibilité des mesures à un nombre important de paramètres et l'existence d'un modèle efficace font que la simulation d'expériences d'acoustique picoseconde même complexes est de plus en plus répandue. La simulation est un outil puissant, mais son utilisation risque de poser les mêmes difficultés que pour les mesures ellipsométriques. La non-réversibilité du modèle impose à cette technique des calculs itératifs très gourmands en temps. L'un des grands intérêts des oscillations Brillouin est qu'elles se caractérisent par des grandeurs mesurables plus nombreuses encore que dans le cas d'échos, telle leur période ou leurs limites temporelles, et qui ne dépendent que d'un petit nombre de paramètres. Leur forte dépendance à la longueur d'onde fait même de ce paramètre particulier le pivot des analyses. Les oscillations Brillouin permettent ainsi d'extraire de façon fiable et précise certaines mesures sans simulations, et lorsque le recours à celles-ci est nécessaire cette première analyse réduit fortement les itérations de calcul.

Conclusion

Oscillations Brillouin et Couleur : d'importants apports pour l'acoustique picoseconde.

Les oscillations Brillouin, bien que connues dès les débuts de l'acoustique picoseconde, s'avèrent être riches d'informations sur les expériences et les échantillons. Relativement peu exploitées jusqu'à présent, c'est l'introduction du paramètre longueur d'onde qui leur donne toute leur importance. Il s'est en effet avéré au cours de cette étude que les oscillations Brillouin peuvent être suscitées dans un grand nombre d'échantillons pourvu que la longueur d'onde de sonde soit bien choisie. Ainsi, un même échantillon qui ne donne que des échos à certaines longueurs d'onde peut donner des oscillations Brillouin d'amplitude importante à d'autres longueurs d'onde. De plus, l'effet des variations de λ_{sonde} est lui aussi très intéressant.

Les semiconducteurs, à commencer par le Si, forment le premier sujet d'étude de ce mémoire. Comme cela avait été montré auparavant sur l'analyse d'échos dans les métaux, les mesures sont très sensibles à la longueur d'onde de la sonde. Ici ce sont les oscillations Brillouin du Si qui montrent une amplitude remarquable et des changements de phase rapides lorsque λ_{sonde} se situe à proximité de la transition E'_0-E_1 . La richesse des oscillations Brillouin donne de nombreux arguments qui confortent cette analyse. D'autres semiconducteurs sont ensuite testés : le Ge, le GaP et le GaAs. La réponse de tous ces matériaux s'avère intense elle aussi lorsque λ_{sonde} est bien choisie. On peut alors remarquer que, si des similitudes existent, chaque matériau voire chaque transition sondée semble appartenir à une catégorie propre de réponse aux expériences d'acoustique picoseconde à λ_{sonde} variable.

Les matériaux transparents en films minces forment le second sujet d'étude. Initiés par l'étude des semiconducteurs, les raffinements successifs de l'exploitation des oscillations Brillouin permettent ainsi de déduire la vitesse du son, l'épaisseur voire l'indice de ces films sans aucune connaissance préalable sur les échantillons ; puis d'étudier leur masse volumique, leur atténuation ultrasonore et leurs interfaces. Il s'avère ici aussi qu'un choix adapté de λ_{sonde} permet de susciter des oscillations Brillouin d'amplitude importante dans les matériaux diélectriques. Qui plus est, ce choix est mis à profit pour assouplir significativement les conditions nécessaires à l'étude des films minces et pour enrichir et fiabiliser les analyses.

L'étude des diélectriques contribue à valider en retour les analyses faites sur les semiconducteurs. Les hypothèses qui subsistaient sur l'analyse des mesures (effets d'atténuation et d'interfaces) se trouvent ainsi confortées. Il s'avère aussi que l'analyse des mesures présentant des oscillations Brillouin, si elle est relativement aisée dans un premier temps (leur période et leur durée sont très faciles à mesurer), doit prendre en compte une pluralité de paramètres pour être raffinée. La possibilité de tester la dépendance des mesures à la longueur d'onde et la simulation, guidées par une première analyse, deviennent alors des appuis précieux.

Un vaste champ d'applications

La grande variété des matériaux testés permet de penser que les effets forts rencontrés tant dans les semiconducteurs que dans les diélectriques sont très répandus. Cette généralité suggère de rechercher systématiquement les conditions de longueur d'onde adaptées aux oscillations Brillouin. Les résultats présentés dans ce mémoire montrent tout l'intérêt de cette démarche, et les situations où elle pourrait être appliquée sont très nombreuses. Les micro et nanotechnologies sont en effet basées sur des techniques de réalisations de films minces, et bien que l'acoustique picoseconde connaisse déjà une réussite industrielle [69], elle est encore circonscrite à des applications limitées.

Des perspectives très ouvertes

Ces résultats donnent envie d'améliorer encore la description physique des expériences, tant pour l'étude des diélectriques que des semiconducteurs. La précision des mesures de coefficients élasto-optiques en dépend.

Ces résultats rendent aussi encore plus désirable l'obtention d'un moyen pour générer directement et efficacement dans les substrats de Si. Il y a là un très grand potentiel d'applications.

Les effets de structure électronique démontrés dans les semiconducteurs suggèrent que l'acoustique picoseconde est une technique alternative pour l'étude de ces matériaux. Les atouts de cette technique la rendent adaptée à l'étude des matériaux nouveaux qui tirent leurs propriétés de leurs dimensions nanométriques, et il semble possible d'envisager la confrontation des mesures par acoustique picoseconde avec les calculs de structure électronique pourvu que ceux-ci incluent la dépendance aux déformations. La connaissance de cette dépendance est d'ailleurs de plus en plus nécessaire à mesure que les dimensions des composants se réduisent et qu'ils subissent de plus en plus fortement les contraintes de leur environnement.

D'ores et déjà, les effets de longueur d'onde sur les oscillations Brillouin constatés dans les matériaux, qu'ils soient métalliques, semiconducteurs ou transparents, font de cet élément le paramètre clef de leur étude. L'importance de ce paramètre permet de penser que, tout comme pour l'ellipsométrie, des mesures spectroscopiques apporteront une nouvelle dimension à l'acoustique picoseconde.

Annexes

A

Réfectivité d'un échantillon transparent en présence d'une impulsion acoustique

Cette annexe développe le calcul de la réfectivité d'un échantillon selon une approche qui, bien que moins rapide, nous a semblé plus intuitive que celle utilisée dans la littérature. Les interprétations présentées ici concernent d'abord les échantillons transparents, mais les résultats sont tout autant valables pour des échantillons opaques. Pour commencer c'est l'effet réfléchissant d'une impulsion acoustique qui est évalué, en la considérant d'épaisseur élémentaire d'abord, puis d'extension finie. Ensuite sont détaillés les réflexions multiples et l'effet de résonance optique dans les couches minces transparentes, avant d'aboutir à l'expression finale de variation de réfectivité. Seules les variations d'indice sont étudiées car elles sont à l'origine des oscillations Brillouin. L'effet des variations d'épaisseur (impulsions déformantes) n'est pas traité.

A.1 Objet du calcul

La modélisation d'une expérience d'acoustique picoseconde comporte trois grandes étapes : la création, la propagation et la détection d'un champ acoustique. Les deux premiers points sont traités dans la première partie de ce mémoire, paragraphe 1.2 p. 12. Nous nous intéressons ici uniquement aux mécanismes de détection qui nécessitent une description plus détaillée. Dans cette annexe nous supposons donc connue la déformation acoustique présente dans l'échantillon. Elle est notée $\eta(z,t)$ où z est la variable spatiale et t la variable temporelle. La géométrie de l'échantillon considéré est limitée au cas d'une couche finie déposée sur un substrat. Pour un empilement de couches le calcul est très similaire mais une notation matricielle devient plus adaptée [63, 49].

L'effet de la déformation est sensible sur l'expérience à travers deux mécanismes :

- le changement d'indice optique dû au couplage elasto-optique,
- le changement d'épaisseur dans les échantillons comportant au moins deux interfaces optiques.

Nous nous intéressons uniquement aux effets dus au changement d'indice. Les effets dus au changement d'épaisseur peuvent être déterminés très simplement en considérant qu'une variation d'épaisseur est causée par la présence d'une impulsion acoustique. Comme ces derniers n'ont pas de conséquences importantes pour les résultats de ce mémoire, le calcul n'est pas détaillé.

On pourra se rapporter aux références [31, 65, 49, 8] pour un formalisme plus complet et aux références [66, 8] pour des exemples d'application.

A.2 Principe du calcul de variation de réflectivité par couplage élasto-optique

Le calcul comporte deux étapes principales. La première consiste à modéliser la variation d'indice provoquée par une impulsion acoustique en l'assimilant à un ensemble d'interfaces optiques élémentaires. La seconde étape consiste à déterminer l'effet de ces interfaces optiques sur la réflectivité globale de l'échantillon. Cela passe par la description des trajets optiques dans l'échantillon. Finalement, nous obtenons une expression dégageant les différentes contributions à la réflectivité : les oscillations Brillouin et un terme constant.

A.3 Effet d'une impulsion acoustique sur le champ électromagnétique

Effet local

La présence d'une impulsion acoustique provoque localement une modification de l'indice optique \tilde{n} notée $\Delta\tilde{n}$, que l'on peut relier à la déformation du milieu η via le coefficient de couplage élasto-optique noté $\partial\tilde{n}/\partial\eta$. Ainsi, $\Delta\tilde{n} = \left(\frac{\partial\tilde{n}}{\partial\eta}\right)\eta$. Nous étudions ici l'effet de cette modification d'indice sur le passage de la lumière. Les calculs sont limités au premier ordre. Nous déterminons tout d'abord l'effet local de la déformation, ce qui revient à définir un coefficient élémentaire de réflexion $\delta r'$. Il est à l'origine d'une variation élémentaire de la réflectivité globale de l'échantillon notée $\Delta r'$.

Considérons le cas d'une petite variation d'indice $\Delta\tilde{n}$ dans un matériau d'indice \tilde{n} , limitée à une zone élémentaire comprise entre z et $z + dz$ (voir Fig. A.1).

Pour clarifier les expressions nous notons les différentes zones du matériau de 1 à 3 dans l'ordre de pénétration par le faisceau incident. Nous notons r_{mn} et t_{mn} respectivement les coefficients de réflexion et de transmission entre les milieux m et n . Pour mémoire, les propriétés de continuité du champ électromagnétique [60] donnent les relations $r_{mn} = -r_{nm}$ et $t_{mn} = 1 + r_{mn}$. Le coefficient de réflexion de cette cavité de type Fabry-Perot s'écrit :

$$\delta r' = \frac{r_{12} + r_{23}e^{2ik_2dz}}{1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2dz}}, \quad (\text{A.1})$$

où k_2 , le vecteur d'onde de la lumière vaut $k_0(\tilde{n} + \Delta\tilde{n})$ avec k_0 le vecteur d'onde dans le vide, que l'on peut exprimer en fonction de la longueur d'onde λ : $k_0 = 2\pi/\lambda$. Dans notre cas, il s'avère que $r_{23} = -r_{12}$. Nous pouvons donc écrire :

$$\delta r' = \frac{r_{12}(1 - e^{2ik_2dz})}{1 - r_{12}^2e^{2ik_2dz}}. \quad (\text{A.2})$$

Le développement au premier ordre en dz de l'expression ci-dessus donne :

$$\delta r' = -\frac{r_{12}2ik_2dz}{1 - r_{12}^2}. \quad (\text{A.3})$$

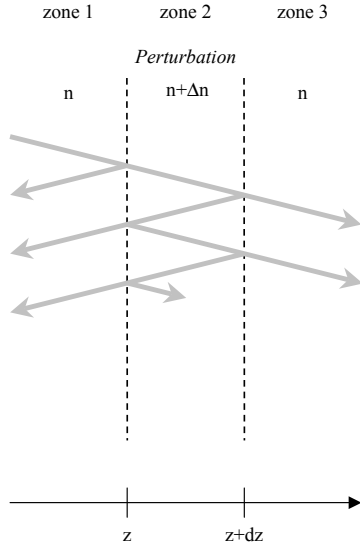


FIG. A.1 – Modélisation de la variation d'indice n induite par une impulsion acoustique. Dans chaque zone l'indice est considéré constant. Il présente des discontinuités en z et $z+dz$ car une contrainte dans la zone 2 provoque une modification d'indice Δn , petite devant n .

Comme $\Delta\tilde{n}$ est petit devant 1 nous pouvons écrire, au premier ordre en $\Delta\tilde{n}$:

$$r_{12} = \frac{\tilde{n} - (\tilde{n} + \Delta\tilde{n})}{\tilde{n} + (\tilde{n} + \Delta\tilde{n})} = \frac{-\Delta\tilde{n}}{2\tilde{n}} \quad (\text{A.4})$$

puis l'expression A.3 devient :

$$\delta r' = ik_0 \left(\frac{\partial\tilde{n}}{\partial\eta} \right) \eta dz. \quad (\text{A.5})$$

C'est exactement l'expression établie par C. Thomsen [77] mais sous une forme différente.

Perturbation étendue

Dans le cas d'une impulsion étendue dans l'espace on peut se demander si cette représentation est toujours valable. Pour s'en convaincre, il suffit de considérer le cas d'une déformation constante entre z et $z + 2dz$, et nulle ailleurs telle que décrite figure A.2 (a). On obtient selon la démarche précédente un coefficient de réflexion : $\delta r'_{(a)} = 2ik_0 \left(\frac{\partial n}{\partial \eta} \right) \eta dz$. Si l'on calcule maintenant le coefficient de réflexion équivalent à la réflexion sur les deux impulsions décrites sur la figure A.2 (b) et (c) nous obtenons à la profondeur z

$$\delta r'_{(bc)} = \frac{\delta r'_{(b)} + \delta r'_{(c)} e^{2ik_2 dz}}{1 + \delta r'_{(b)} \delta r'_{(c)} e^{2ik_2 dz}}, \quad (\text{A.6})$$

avec $\delta r'_{(b)} = \delta r'_{(c)} = ik_0 \left(\frac{\partial n}{\partial \eta} \right) \eta dz$. Au premier ordre en dz cela donne : $r'_{(bc)} = 2ik_0 \left(\frac{\partial n}{\partial \eta} \right) \eta dz = \delta r'_{(a)}$.

Ce résultat, dû au fait que toutes nos expressions sont linéarisées, illustre le fait qu'il est possible de modéliser l'effet d'une impulsion étendue dans l'espace par un ensemble d'interfaces optiques distantes de dz . Cette propriété sera utile pour la suite du calcul.

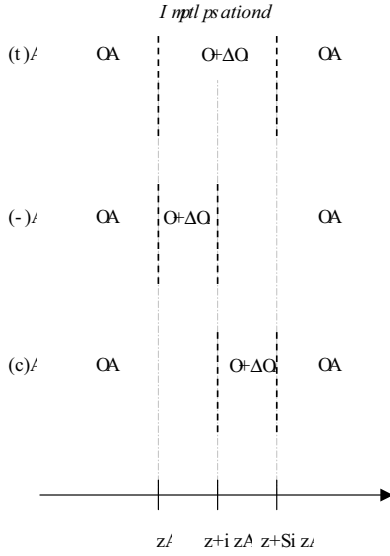


FIG. A.2 – Illustration du passage du local au global. L'effet de l'interface équivalente à la variation d'indice sur l'épaisseur $2dz$ (a) est le même que la somme des effets des interfaces équivalentes aux variations d'indice sur l'épaisseur dz en z (b) et en $z + dz$ (c).

A.4 Description des différentes contributions à la réflectivité

Le coefficient de réflexion de l'échantillon est noté $r' = r_0 + \Delta r'$ dans le cas d'une perturbation élémentaire (d'extension spatiale dz), et $r = r_0 + \Delta r$ dans le cas d'une perturbation étendue.

Si l'on considère une source monochromatique éclairant un échantillon dans lequel la constante diélectrique est perturbée localement, on peut distinguer différentes contributions selon que le faisceau est réfléchi à gauche ou à droite de l'interface modélisant la perturbation, ou encore la traverse sans jamais s'y réfléchir. La figure A.3 donne un exemple pour chacune de ces trois premières contributions, à laquelle s'ajoute la réflexion initiale. Le calcul est limité au premier ordre en $\delta r'$. Il suffit donc d'identifier les contributions ne contenant qu'une seule réflexion sur l'impulsion, celle-ci pouvant se produire entre de nombreux allers-retours dans la couche qui contient l'impulsion acoustique.

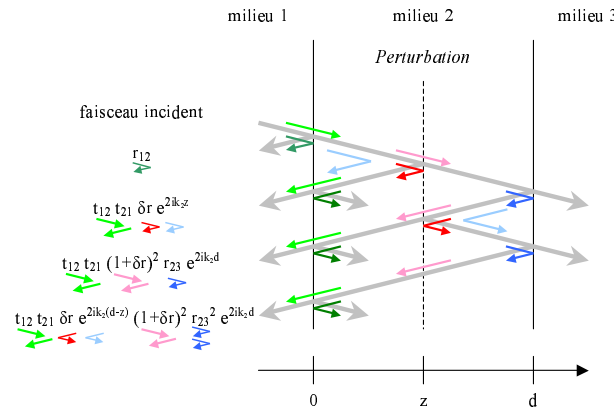


FIG. A.3 – La réflexion sur la première interface et les trois premières contributions du faisceau réfléchi résultant de l'interaction d'un faisceau incident avec une impulsion acoustique élémentaire. La première de ces contributions correspond à une réflexion à gauche de la perturbation. La seconde correspond à la traversée de la perturbation sans réflexion, et la troisième correspond à une réflexion à droite de la perturbation.

Le faisceau incident qui traverse le milieu 1 (par exemple le vide) est d'abord réfléchi sur l'interface 12, d'où la contribution r_{12} . Ensuite, la partie transmise du faisceau pénètre dans

l'échantillon jusqu'à une distance z où elle est réfléchiée par la perturbation (nous la nommons réflexion à gauche). Cela donne la contribution $t_{12}t_{21}\delta r'e^{2ik_2z}$. La partie qui traverse la perturbation se réfléchit à l'interface 23, traverse à nouveau la couche 2 ainsi que la perturbation pour donner la contribution $t_{12}t_{21}r_{23}e^{2ik_2d}(1 + \delta r')^2$, soit $t_{12}t_{21}r_{23}e^{2ik_2d}$ au premier ordre en $\delta r'$. On peut suivre de même la partie réfléchiée à la seconde rencontre de la perturbation (ce que nous nommons une réflexion à droite) qui donne la contribution $\delta r'e^{2ik_2(d-z)}t_{12}t_{21}r_{23}^2e^{2ik_2d}(1 + \delta r')^2$ soit $\delta r'e^{2ik_2(d-z)}t_{12}t_{21}r_{23}^2e^{2ik_2d}$ au premier ordre.

Réflexions à gauche

Il s'agit maintenant de recenser toutes les contributions ayant subi une réflexion à gauche sur la perturbation. On ne s'intéresse qu'aux termes d'ordre 1 en $\delta r'$. La figure A.4 montre les deux premières contributions suivant la première réflexion sur la perturbation. Ces contributions sont les deux premiers termes d'une suite géométrique de raison $r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}(1 + \delta r')$ multipliée par le terme $t_{12}t_{21}\delta r'e^{2ik_2z}$. La somme de ces contributions vaut :

$$\frac{t_{12}t_{21}\delta r'e^{2ik_2z}}{1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}}. \quad (\text{A.7})$$

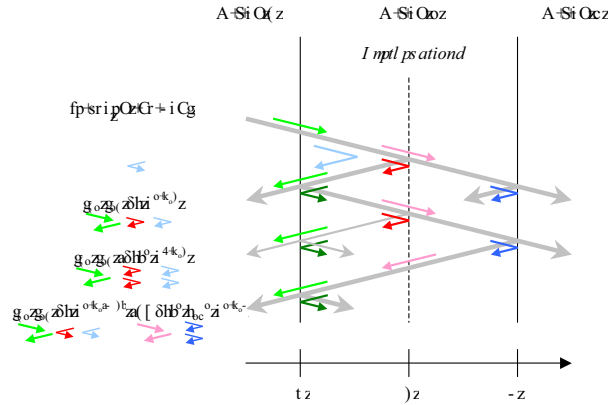


FIG. A.4 – Après une première réflexion à gauche sur l'impulsion, nous retenons uniquement les contributions qui ne se sont pas réfléchies à nouveau sur l'impulsion. Le terme en $\delta r'^2$ (trait fin) est négligeable.

La figure A.5 montre les deux premières contributions après la réflexion sur la perturbation qui suit un premier aller-retour dans la couche 2. On aboutit de même à la somme de ces contributions :

$$r_{21}r_{23}e^{2ik_2d} \frac{t_{12}t_{21}\delta r'e^{2ik_2z}}{1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}}. \quad (\text{A.8})$$

En continuant cette analyse, nous pouvons remarquer que les deux sommes de contributions A.4 et A.5 sont elles-mêmes les premiers termes d'une suite géométrique de raison $r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}$ multipliée par le facteur $t_{12}t_{21}\delta r'e^{2ik_2z}/(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})$.

Finalement, la somme de toutes les contributions s'étant réfléchies une fois à gauche sur la perturbation vaut, au premier ordre en $\delta r'$:

$$\frac{t_{12}t_{21}\delta r'e^{2ik_2z}}{(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})^2}. \quad (\text{A.9})$$

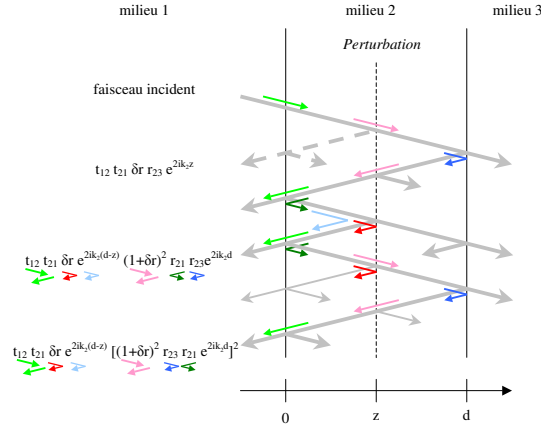


FIG. A.5 – Premières contributions du premier ordre en $\delta r'$ après réflexion à gauche sur l'impulsion suivant le premier aller-retour dans la couche 2.

Réflexions à droite

De la même manière nous pouvons recenser les contributions s'étant réfléchies une fois à droite sur la perturbation. La figure A.6 décrit le trajet des rayons lorsque la réflexion sur la perturbation se produit dès le premier passage dans la couche 2, la figure A.7 décrit le trajet des rayons s'étant réfléchis une fois à droite de la perturbation après un premier aller-retour dans la couche 2. En faisant la somme au premier ordre de toutes les contributions réfléchies une fois à droite nous obtenons :

$$\frac{t_{12} t_{21} \delta r' e^{2ik_2(d-z)} e^{2ik_2 d} r_{23}^2}{(1 - r_{21} r_{23} e^{2ik_2 d})^2}. \quad (\text{A.10})$$

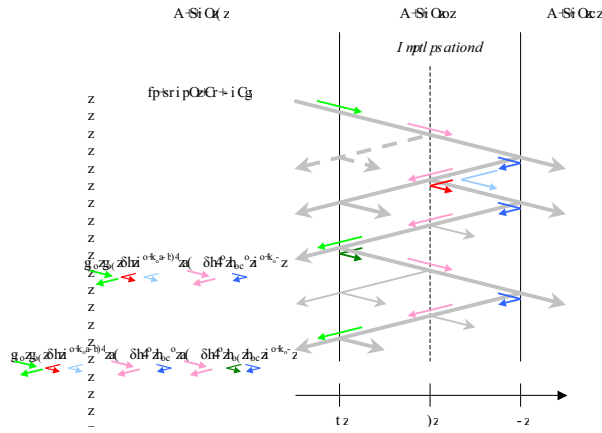


FIG. A.6 – Premières contributions du premier ordre en $\delta r'$ après réflexion à droite sur l'impulsion.

Transmission

Nous recensons maintenant toutes les contributions ignorées jusqu'à présent, celles qui ne sont jamais réfléchies sur la perturbation. La figure A.8 montre les deux premières. On reconnaît là une situation analogue à une cavité de type Fabry-Perot.

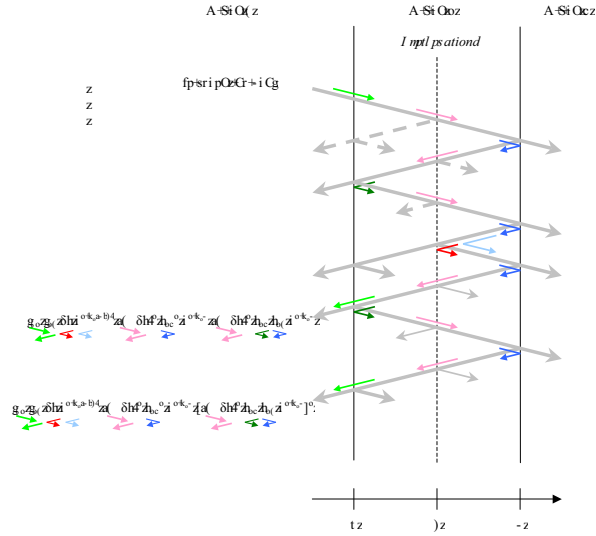


FIG. A.7 – Premières contributions du premier ordre en $\delta r'$ après réflexion à droite sur l'impulsion suivant le premier aller-retour dans la couche 2.

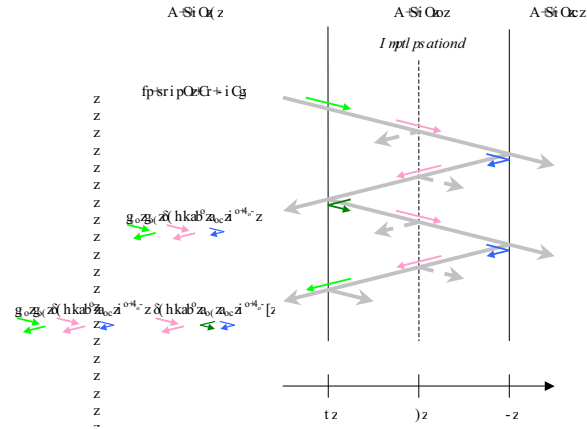


FIG. A.8 – Premières contributions des rayons traversant l'impulsion sans s'y réfléchir.

Ces contributions valent donc, avant linéarisation :

$$\frac{t_{12}t_{21}e^{2ik_2d}r_{23}(1 + \delta r')^2}{(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}(1 + \delta r')^2)^2}. \quad (\text{A.11})$$

Ce qui donne après linéarisation :

$$\frac{t_{12}t_{21}e^{2ik_2d}r_{23}}{1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}} + \frac{t_{12}t_{21}2\delta r'e^{2ik_2d}r_{23}}{(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})^2}, \quad (\text{A.12})$$

soit un terme ne dépendant pas de la perturbation, et un terme en $\delta r'$.

Nous pouvons maintenant exprimer le coefficient de réflexion total de l'échantillon en présence d'une perturbation en sommant les contributions A.9, A.10 et A.12 :

$$r' = r_0 + \Delta r' = r_{12} + \frac{t_{12}t_{21}e^{2ik_2d}r_{23}}{1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d}} + \frac{t_{12}t_{21}\delta r'}{(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})^2} (e^{2ik_2z} + e^{2ik_2(d-z)} e^{2ik_2d} r_{23}^2 + 2e^{2ik_2d} r_{23}). \quad (\text{A.13})$$

Cette expression comporte trois types de contributions. Une constante r_0 correspondant au coefficient de réflexion en l'absence de perturbation ; une contribution en $\delta r' f(z)$ qui est à l'origine des oscillations Brillouin ; une contribution en $\delta r'$ qui contribue aux sauts de réflectivité observables dans certaines conditions. Cette interprétation est justifiée dans le paragraphe A.5.

On trouve dans la littérature [63, 49] cette même expression rédigée de façon plus compacte, ce qui ne permet pas toujours de distinguer les différentes contributions. En effet, on peut écrire :

$$\frac{\Delta r'}{r_0} = \frac{(1 - r_{12}^2)}{(r_{12}e^{-2ik_2d} + r_{23})(1 - r_{21}r_{23}e^{2ik_2d})} \delta r' (e^{ik_2z} + e^{-ik_2z} r_{23} e^{ik_2d})^2. \quad (\text{A.14})$$

Cette expression se retrouve dans la littérature à quelques constantes multiplicatives près dans des expressions du type $(a_m e^{ik_m z} + b_m e^{-ik_m z})^2$ avec a_m et b_m des constantes dépendant de la couche m .

Cette expression est compatible avec la description de l'effet Raman (interaction photon-électron-phonon) qui est proportionnel à l'intensité lumineuse et qui impose la conservation du vecteur d'onde. On peut en effet identifier ici l'amplitude du faisceau rétrodiffusé dans le terme en $e^{\pm ik_2 z}$, proportionnel au carré du champ électrique et donc à l'intensité présente dans l'échantillon, dont l'amplitude s'apparente à l'intensité lumineuse et l'argument assure la conservation de phase entre le photon incident, réémis, et le phonon en interaction.

A.5 Calcul final des variations de réflectivité dues au couplage élasto-optique

Dans le cas d'une perturbation étendue due à une déformation $\eta(z,t)$ quelconque, l'expression ci dessus doit être intégrée sur l'extension de la couche. Cela donne $r = r_0 + \Delta r$. Notre montage expérimental mesure l'intensité réfléchi par les échantillons. Nous accédons au coefficient de réflexion : $R = R_0 + \Delta R = r^* r = r_0^* r_0 + 2Re[r_0^* \Delta r]$ au premier ordre en Δr .

Δr s'obtient en calculant $\int_0^d \Delta r' dz$. Dans la géométrie simple que nous avons choisie (voir Fig. A.9) cette intégrale s'écrit à partir des relations A.13 et A.5 :

$$\Delta r = ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{t_{12} t_{21}}{(1 - r_{21} r_{23} e^{2ik_2 d})^2} \left(\int_0^d \eta(z,t) (e^{2ik_2 z} + e^{2ik_2(d-z)} e^{2ik_2 d} r_{23}^2) dz + 2e^{2ik_2 d} r_{23} \int_0^d \eta(z,t) dz \right). \quad (\text{A.15})$$

Le terme en $\int_0^d \eta f(z) dz$ est du même type que celui calculé dans une géométrie plus simple (substrat seul) dans la première partie de ce mémoire (relation 1.10). Il aboutit à des facteurs en $e^{2ik_2 vt}$ et en $e^{-2ik_2 vt}$ responsables des oscillations Brillouin. Dans le cas d'une impulsion monopolaire (cas de la figure A.9) le terme en $\int_0^d \eta dz$ est une constante non nulle. Elle change de signe lorsque l'impulsion se réfléchit sur la surface libre ce qui provoque une variation brutale de réflectivité. Ce saut de réflectivité est d'une nature différente des sauts dus au changement d'épaisseur mentionnés p. 89 bien que leurs effets sur les mesures soient semblables. Cela se produit typiquement lorsqu'une couche absorbante est placée entre la couche transparente et le substrat. Le terme en $1/(1 - r_{21} r_{23} e^{2ik_2 d})^2$ traduit la résonance optique dans le film. Ses effets sont étudiés dans la troisième partie de ce mémoire, p. 59.

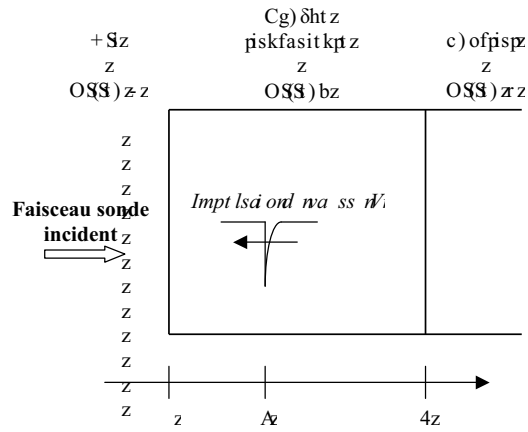


FIG. A.9 – Géométrie pour le calcul de réflectivité d'un échantillon composé d'un milieu transparent sur un substrat en présence d'une impulsion acoustique. Le faisceau sonde incident arrive par la gauche de la figure.

B

Coefficient élasto-optique

B.1 Un paramètre capital

Le mécanisme de détection principal de nos expériences repose sur le coefficient élasto-optique. Grâce à sa valeur élevée dans les diélectriques il y permet l'observation des oscillations Brillouin. Dans les métaux ou les semi-conducteurs ses variations en longueur d'onde dépendent de la structure électronique.

La littérature exprime rarement ce coefficient directement. Les paragraphes qui suivent décrivent la relation entre ce coefficient et des notions plus couramment utilisées. L'explication de l'origine physique de ce couplage passe par la description de la constante diélectrique et de sa variabilité avec la déformation en fonction de la longueur d'onde.

B.2 Définitions et dénominations

Le coefficient élasto-optique $\left(\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}\right)$, dans les géométries unidimensionnelles de ce document, traduit la variation de l'indice du matériau soumis à une déformation uniaxiale. Ce paramètre étant en réalité tensoriel, sa valeur évolue lorsque l'angle entre le vecteur polarisation de la sonde et l'axe de la déformation change.

La plupart des expériences présentées dans ce mémoire sont faites en incidence normale. En incidence oblique la sonde est polarisée verticalement et les rotations se font dans un plan horizontal. En conséquence le coefficient élasto-optique est le même dans tous les cas. Si la polarisation était différente, la biréfringence induite par l'impulsion acoustique devrait être prise en compte [68].

P_{ij} : un coefficient piézo-optique

La littérature emploie plus souvent d'autres grandeurs que le coefficient $\left(\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}\right)$. $(P_{klmn}) = \frac{\partial \tilde{\epsilon}_{kl}}{\partial \sigma_{mn}}$, est appelé tenseur piézo-optique car il traduit la variation de la constante diélectrique $\tilde{\epsilon}$ (propriétés optiques) par rapport à une contrainte σ . Avec la contraction usuelle des indices [68] ce tenseur se réduit à trois coefficients dans les matériaux cubiques (P_{11} , P_{12} et P_{44}), et deux dans le cas isotrope (car $2P_{44} = P_{11} - P_{12}$). Il est possible de trouver des valeurs mesurées ou calculées pour ces coefficients dans les semiconducteurs classiques [22, 23, 24, 42, 76] mais les plages de longueurs d'onde ou de température sont limitées, et comme ces résultats ne sont pas exploités pour eux-mêmes, des précautions s'imposent dans la manipulation des résultats.

En notant c le tenseur des constantes élastiques du matériau on obtient la relation suivante :

$$\Delta\tilde{\epsilon}_{ij} = P_{ijkl}c_{klmn}\eta_{mn} \quad (\text{B.1})$$

L'indice se déduit de $\tilde{\epsilon}_{22} = \tilde{n}^2$. On obtient donc dans notre géométrie, pour de faibles perturbations et en employant les contractions d'indices permises pour les matériaux isotropes :

$$\left(\frac{\partial\tilde{n}}{\partial\eta}\right) = \frac{P_{12}c_{11} + 2P_{11}c_{12}}{2\tilde{n}} \quad (\text{B.2})$$

p_{ij} , π_{ij} : d'autres noms pour une même notion

On appelle aussi tenseur élasto-optique la grandeur définie par $\Delta B = p\eta$ où $B = 1/\tilde{\epsilon}$ est l'impermittivité diélectrique. Le tenseur piezo-optique est parfois défini par la relation $\Delta B = \pi\sigma$. Toutes ces définitions sont bien sûr équivalentes : $p = -\tilde{\epsilon}^2 P c$, d'où la relation : $\left(\frac{\partial\tilde{n}}{\partial\eta}\right) = -\frac{\tilde{n}^3}{2} p_{12}$, et $\pi = -\tilde{\epsilon}^2 P$, mais le fait d'employer le même nom pour des tenseurs différents crée un risque de confusion.

B.3 Coefficient élasto-optique des diélectriques

Relation empirique de Gladstone-Dale [28]

Pour les matériaux transparents, en particulier les minéraux, l'indice dépend directement de la masse volumique des matériaux selon la relation

$$\frac{n-1}{\rho} = \text{constante}. \quad (\text{B.3})$$

Il est facile de dériver le coefficient élasto-optique de cette relation. En effet, une déformation uniaxiale η correspond à une variation relative de volume $\frac{\Delta V}{V}$ et provoque une variation relative de masse volumique $-\frac{\Delta\rho}{\rho}$ opposée. Il s'en déduit :

$$\frac{\partial n}{\partial\eta} = 1 - n. \quad (\text{B.4})$$

Pour la silice, avec $n = 1,46$ à 486 nm, on obtient $\frac{\partial n}{\partial\eta} = -0,46$. La valeur tirée des données de la littérature [4] est $\frac{\partial n}{\partial\eta} = -0,44$. L'approximation est ainsi proche des mesures sur cet exemple.

La relation de Gladstone-Dale est en fait approchée et il est nécessaire de considérer les phénomènes microscopiques voire quantiques pour se rapprocher de la réalité.

Origine physique du couplage

L'étude du couplage élasto-optique revient à considérer l'expression de la constante diélectrique et à rechercher ses dépendances aux contraintes. La permittivité diélectrique ϵ , ou plus particulièrement la susceptibilité diélectrique χ traduisent la polarisabilité des matériaux. Celle-ci est essentiellement d'origine électronique aux fréquences optiques car l'inertie des autres composants (ionique et rotationnelle) est trop importante. La plupart des résultats présentés ici sont détaillés en référence [60].

Modèle de Mossoti : des dipôles induits isolés

En considérant qu'un champ électrique déplace relativement le nuage électronique et noyau d'un atome, Mossoti décrit le principe de la polarisation induite. Dans les milieux dilués l'influence des dipôles voisins est négligeable. Dans ces conditions la polarisabilité totale d'un matériau est additive, elle dépend du nombre de dipôles induits qu'il contient. En changeant faiblement le volume du matériau la densité de dipôles évolue mais pas leur nature. On comprend donc que la polarisabilité induite augmente en proportion inverse de la masse volumique :

$$P = \frac{N_A}{M} \rho \alpha \epsilon_0 E = \chi_r \epsilon_0 E = (\epsilon_r - 1) \epsilon_0 E, \quad (\text{B.5})$$

avec P le vecteur polarisation, N_A le nombre d'Avogadro, M la masse molaire, ρ la masse volumique. α désigne ici la polarisabilité, χ_r et ϵ_r respectivement la susceptibilité et la permittivité diélectrique relatives du matériau. Dans ce document l'indice r est omis lorsqu'il n'y a pas de risque de confusion. Pour les valeurs d'indice proches de l'unité on retrouve la relation de Gladstone-Dale.

Modèle de Lorentz : les voisins se font remarquer

Dans les gaz denses ou les liquides l'effet des voisins sur le champ électrique doit être intégré. Cela conduit à la relation suivante :

$$\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} = \frac{N_A}{3M} \rho \alpha. \quad (\text{B.6})$$

Pour les valeurs d'indice proches de l'unité on retrouve encore la relation de Gladstone-Dale.

En raffinant cette description, P. Benassi [4] établit en 1993 un modèle pour la détermination du coefficient élasto-optique des diélectriques. Celui-ci ne dépend que de leur indice et reproduit les résultats expérimentaux sur différents types de verres avec une bonne approximation. Ce modèle donne :

$$\begin{aligned} p_{12} &= \frac{\epsilon-1}{\epsilon^2} \left[1 + \frac{\epsilon-1}{5} \right], \quad p_{44} = \frac{\epsilon-1}{\epsilon^2} \left[\frac{\epsilon-1}{5} \right], \quad \text{avec} \\ p_{11} - p_{12} &= 2p_{44} \quad \text{pour les matériaux isotropes, et} \\ p_{11} - p_{12} - 2p_{44} &= -5s \left[\frac{\epsilon-1}{5} \right] \quad \text{pour les cristaux cubiques.} \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

s est un paramètre dépendant du type de cristal (ex : $s = 0,102$ pour les cristaux CFC [51]) et ϵ est le carré de l'indice.

Ces descriptions, adaptées aux matériaux amorphes transparents et dans une certaine mesure aux cristaux transparents, donnent une argumentation théorique à nos observations dans les milieux transparents. Nous avons en effet remarqué qu'un choix adapté de λ_{sonde} favorise les oscillations Brillouin dans tous les échantillons que nous avons testés à ce jour. Dans la mesure où le mécanisme de couplage élasto-optique repose sur les variations de densité induites par une déformation, des oscillations Brillouin apparaissent dès l'arrivée d'une impulsion acoustique. On peut ainsi comprendre la généralité du phénomène, même si le modèle ne prend pas en compte la dépendance en longueur d'onde.

B.4 Effets de longueur d'onde sur le coefficient élasto-optique

Modèle de Drude-Lorentz [60]

Le modèle de Drude-Lorentz décrit les effets dynamiques en considérant un oscillateur harmonique éventuellement amorti, dont la fréquence de résonance est reliée à la raideur de l'oscillateur

et à la masse effective des charges électriques. La description quantique relie cette fréquence à l'énergie E d'une transition électronique par la relation :

$$\omega_0 = \frac{E}{\hbar}. \quad (\text{B.8})$$

Ce modèle aboutit à l'expression de la susceptibilité en fonction de la pulsation des photons incidents :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) - 1 = [\tilde{\epsilon}(0) - 1] \frac{\omega_0^2}{(\omega_0^2 - \omega^2) - \frac{i\omega}{\tau}}. \quad (\text{B.9})$$

Pour les durées d'amortissement τ grandes devant la période caractéristique $\frac{2\pi}{\omega_0}$ et pour des fréquences suffisamment basses (première transition d'énergie très supérieure à celles des photons) on retrouve $\epsilon(0)$ dont l'expression correspond aux cas précédents. Cette approximation est valable dans le cas des matériaux transparents comme la silice pure dont la première transition est vers 10 eV (120 nm). En réalité les impuretés réduisent cette valeur aux alentours de 6 eV (200 nm) ce qui reste élevé mais se rapproche des limites de notre dispositif expérimental. Les mesures ellipsométriques de l'indice de la silice donnent ainsi des variations inférieures à 3% sur la plage de longueurs d'onde accessible par notre montage. Lorsque ω est proche de ω_0 l'effet de résonance est sensible et provoque des variations importantes de l'indice optique. C'est le cas des semiconducteurs.

Potentiels de déformation

Dans les cristaux semiconducteurs, bien qu'approximatif le modèle de Drude-Lorentz est assez complexe car dans ces matériaux les transitions sont multiples et leur effet est tensoriel, il dépend de l'orientation relative du cristal et de la polarisation de la sonde. Les raffinements consistent alors à introduire autant de termes résonants que de transitions concernées, avec des formes analytiques dépendant des types de transitions considérées [36]. Aux paramètres d'énergie et de relaxation s'ajoutent donc des paramètres dépendant des modèles.

Une fois la constante diélectrique décrite, il faut encore évaluer l'effet d'une déformation sur cette constante. À proximité des énergies de résonance l'effet le plus marqué provient de l'évolution des transitions électroniques avec la déformation, caractérisée au premier ordre par le tenseur des *potentiels de déformation* : $\left(\frac{\partial E}{\partial \eta}\right)$.

Mais tout n'est pas si simple ! En effet, une contrainte uniaxiale peut réduire le degré de symétrie. C'est typiquement le cas pour les matériaux cubiques comme le Si et le Ge. Cela signifie que la dégénérescence de certaines transitions est levée, chacune des transitions ainsi induite possédant son propre potentiel de déformation. Pour aller plus loin il faut étudier chaque matériau spécifiquement, ce qui dépasse le cadre de cette étude. Cette description montre toutefois comment relier le coefficient élasto-optique, une grandeur expérimentale donnée par acoustique picoseconde, à des grandeurs usuelles pour la description des propriétés électronique des matériaux, les potentiels de déformation.

Compléments : génération d'ondes acoustiques par potentiel de déformation

Les potentiels de déformation peuvent aussi jouer un rôle au cours de la génération des ondes acoustiques. Dans ce cas, la situation est un peu moins complexe quand on peut considérer que la déformation initiale induite par la pompe est isotrope. Certains auteurs introduisent des potentiels de déformation isotropes dans la relation : $\sigma_{ij}^e = \frac{\partial E_g}{\partial \eta_{ij}} \delta n_e$ [77] où δn_e est le nombre d'électrons excités par la pompe et σ_{ij}^e la contribution électronique à la contrainte. On peut

remarquer que cette notation suppose que seule la première transition directe (E_g) joue un rôle. Cet effet, indépendant de la dilatation, y est parfois supérieur ou de signe opposé. Dans le Si en particulier c'est le cas, ce qui explique la difficulté d'y générer des ondes acoustiques. Peut-être que la génération deviendrait plus aisée en choisissant d'autres conditions expérimentales (longueur d'onde de pompe, intensité, polarisation...). On peut en effet constater que selon la réf. [22], le potentiel de déformation hydrostatique associé à la transition E_1 (365 nm) est fortement négatif ($D_1^1(E_1) \sim -10$ eV) alors que celui associé à la transition E_2 (290 nm) est positif ($D_1^1(E_2) \sim 3$ eV), et donc de même signe que la dilatation. Toutefois sa valeur est moins importante et rien n'indique *a priori* que ses effets puissent être décisifs.

C

Quelques notations et unités

C.1 Equivalence longueur d'onde - énergie

Il est souvent fait référence dans ce document à l'énergie des photons associés aux faisceaux lumineux. La relation entre ces grandeurs est la suivante : $E = h\nu = hc/\lambda$, avec E l'énergie des photons, h la constante de Planck, ν la fréquence de l'onde lumineuse, c la vitesse de la lumière dans le vide, et λ la longueur d'onde de la lumière dans le vide. Dans les unités usuelles hc vaut $1240 \text{ eV}\times\text{nm}$.

C.2 Paramètres optiques des oscillations Brillouin

Période des oscillations Brillouin	$T = 2nV \cos \theta / \lambda$
Temps caractéristique d'amortissement des oscillations Brillouin	$\tau = \alpha V$
Paramètre d'absorption optique	$\alpha = 4\pi\kappa / \lambda$
Longueur d'absorption	$\zeta = \frac{\lambda}{4\pi\kappa}$
Lien entre la période et l'amortissement	$2\pi T + i\tau = 2\tilde{n}V \cos \theta / \lambda$
Permittivité diélectrique relative	$\tilde{\epsilon} = \tilde{n}^2 = (n + i\kappa)^2$

Lorsqu'il n'y a aucun risque de confusion, $\tilde{\epsilon}$ ou \tilde{n} sont notés ϵ ou n sans le tilde.

C.3 Couleurs

Ce document fait souvent référence à la couleur en termes de longueur d'onde dans le vide. Le tableau ci-contre donne les correspondances usuelles.

couleur	longueur d'onde (nm)
rouge	625 – 740
orange	590 – 625
jaune	565 – 590
vert	520 – 565
cyan	500 – 520
bleu	450 – 500
indigo	430 – 450
violet	380 – 430

D

Liste de publications et communications

D.1 Publications avec comité de lecture

1. A. DEVOS et R.CÔTE, « Strong oscillations detected by picosecond ultrasonics in silicon : an evidence for an electronic structure effect », *Physical Review B* **70**, 12, 125208 (2004)
2. R.CÔTE et A. DEVOS « Refractive index, sound velocity and thickness of thin transparent films from multiple angles picosecond ultrasonics », *Review of Scientific Instruments* **76**, 5, 053906 (2005)
3. A. DEVOS, R.CÔTE, G. CARUYER et A. LEFEBVRE, « A Different way of performing picosecond ultrasonic measurements in thin transparent films based on laser-wavelength effects », *Applied Physics Letters* **86**, 21, 211903 (2005)

D.2 Conférences internationales avec actes

1. R.CÔTE et A. DEVOS, I. ROCH et L. BUCHAILLOT, « Caractérisation de films minces d'alliages à mémoire de forme par Acoustique Picoseconde », 6^e congrès Français d'Acoustique, Lille, 304 (2002)
2. A. DEVOS, R.CÔTE et A. LELOUARN, « Giant oscillations in the picosecond ultrasonics response of crystalline silicon : connection with electronic structure », World Congress on Ultrasonics, Paris, 1197 (2003)
3. R.CÔTE et A. DEVOS « Strong picosecond ultrasonic responses of semiconductors probed close to interband transitions », 11th Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, St Petersburg (2004), *physica status solidi (c)* **1**, 11, 2741-2744 (2004)
4. A. DEVOS et R.CÔTE, « Metrology of thin dielectric films using picosecond ultrasonics », World Congress on Ultrasonics - Ultrasonics International, Pékin (2005), ID 65429

D.3 Autres séminaires

1. R.CÔTE, A. DEVOS et A. LELOUARN, « Oscillations géantes détectées par acoustique picoseconde dans le silicium », séminaire de physique à l'IEMN, Lille, (13 mai 2004)
2. R.CÔTE et A. DEVOS, « Importance du choix de la longueur d'onde pour la métrologie des matériaux transparents par acoustique picoseconde », Journées Ultrasons-laser, Leuven, Belgique (16-17 mars 2005) http://perswww.kuleuven.ac.be/~u0005780/Journees_Ultrasons2005.htm

3. R.CÔTE, « Brillouin oscillations in coloured picosecond ultrasonics », séminaire invité à l'ATF, Leuven, Belgique (14 septembre 2005)

Bibliographie

- [1] G. A. ANTONELLI, H. J. MARISA, S. G. MALHOTRAB et J. M. E. HARPER. « Generation and Detection of Shear Acoustic Waves in Metal Submicrometric Films with Ultrashort Laser Pulses ». *Physica B*, **316-317**, 434, 2002.
- [2] D. E. ASPNES. *Properties of Crystalline Silicon*. Robert HULL, éditeur, *EMIS datareviews series*, volume 20, page 679. INSPEC Publication, 1999.
- [3] B. A. AULD. *Acoustic Fields and Waves in Solids Vol. I*. Krieger Publishing Company, Malabar, Florida, 1973.
- [4] P. BENASSI, V. MAZZACURATI, G. RUOCCO et G. SIGNORELLI. « Elasto-optic constants in silicate glasses : Experiment and theory ». *Physical Review B*, **48**, 5987, 1993.
- [5] T. BIENVILLE, J. F. ROBILLARD, L. BÉLLIARD et B. PERRIN. « Individual and collective vibrational modes of nanostructures studied by picosecond ultrasonics ». *World Congress on Ultrasonics - Ultrasonics International*, Pékin, 2005. ID 65832.
- [6] C. A. C. BOSCO, A. AZVEDO et L. H. ACIOLI. « Laser-wavelength dependance of the picosecond ultrasonic response of a NiFe/NiO/Si structure ». *Physical Review B*, **66**, 125406, 2002.
- [7] M. CARDONA. *Modulation Spectroscopy*. Academic Press, New York, 1969.
- [8] G. CARUYER. « *Modélisation, conception et caractérisation de résonateurs à onde acoustique de volume* ». Thèse de doctorat, Université des Sciences et Techniques de Lille, 2005.
- [9] N. CHIGAREV. « Optimization of parameters of the optoacoustic transducer in Brillouin scattering spectroscopy ». [http ://perswww.kuleuven.ac.be/~7eu0005780/JourneesUltrasons2005abstracts.pdf](http://perswww.kuleuven.ac.be/~7eu0005780/JourneesUltrasons2005abstracts.pdf). page consultée le 08 Août 2005.
- [10] COHERENT, INC. 5100 Patrick Henry Drive, Santa Clara, California 95054, Etats-Unis.
- [11] R. CÔTE et A. DEVOS. « Strong picosecond ultrasonic responses of semiconductors probed close to interband transitions ». *physica status solidi (c)*, **1**, 2741, 2004.
- [12] L. DESPLANQUE, J.-F.LAMPIN et F.MOLLOT. « Generation and detection of terahertz pulses using post-process bonding of low-temperature-grown GaAs and AlGaAs ». *Applied Physics Letters*, **84**, 2049, 2004.
- [13] A. DEVOS. « Acoustique picoseconde : une acoustique riche en couleurs ». Thèse d'habilitation à diriger des recherches, Université des sciences et Techniques de Lille, 2005.
- [14] A. DEVOS et R. CÔTE. « Strong oscillations detected by picosecond ultrasonics in silicon : an evidence for an electronic structure effect ». *Physical Review B*, **70**, 125208, 2004.
- [15] A. DEVOS, R. CÔTE et A. LE LOUARN. « Giant oscillations in the picosecond ultrasonics response of crystalline silicon : connection with electronic structure ». *Proceedings of the World Congress of Ultrasonics*, Paris, France, page 1197, 2003.

- [16] A. DEVOS et C. LEROUGE. « Evidence of Laser-Wavelength Effect in Picosecond Ultrasonics : Possible Connection With Interband Transitions ». *Physical Review Letters*, **86**, 2669, 2001.
- [17] A. DEVOS et A. LE LOUARN. « Strong effect of interband transitions in the picosecond ultrasonics response of metallic thin films ». *Physical Review B*, **68**, 045405, 2003.
- [18] A. DEVOS, B. PERRIN, B. BONELLO et J. C. JANNET. « Generation and Detection of Shear Acoustic Waves in Metal Submicrometric Films with Ultrashort Laser Pulses ». *AIP Conference Proceedings*, **463**, 445, 1999. Photoacoustics and Photothermal phenomena : 10th international conference, Rome, Italie (1998).
- [19] A. DEVOS, R. CÔTE, G. CARUYER et A. LEFEBVRE. « A Different way of performing picosecond ultrasonic measurements in thin transparent films based on laser-wavelength effects ». *Applied Physics Letters*, **86**, 211903, 2005.
- [20] A. DEVOS et J. F. ROBILLARD. Résultat non publié.
- [21] H. EHRENREICH, H.R. PHILIPP et B. SEGALL. « Optical Properties of Aluminum ». *Physical Review*, **132**, 1918, 1963.
- [22] P. ETCHEGOIN, J. KIRCHER et M. CARDONA. « Elasto-optical constants of Si ». *Physical Review B*, **47**, 10292, 1993.
- [23] P. ETCHEGOIN, J. KIRCHER, M. CARDONA et C. GREIN. « Piezo-optical response of Ge in the visible-uv range ». *Physical Review B*, **45**, 11721, 1992.
- [24] P. ETCHEGOIN, J. KIRCHER, M. CARDONA, C. GREIN et E. BUSTARET. « Piezo-optics of GaAs ». *Physical Review B*, **46**, 15139, 1992.
- [25] J. M. FRIGERIO. « *Caractérisations des propriétés optiques des films minces et des cristaux massifs* ». EDP Sciences, 2005. Ecole thématique SFO - CNRS.
- [26] M. GARFINKEL, J.J. TIEMANN et W.E. ENGELER. « Piezoreflectivity of the Noble Metals ». *Physical Review*, **148**, 695, 1966.
- [27] W.B. GAUSTER et D.H. HABING. « Electronic volume effect in Silicon ». *Physical Review Letters*, **18**, 1058, 1967.
- [28] J. H. GLADSTONE et T. P. DALE. « Researches on the Refraction, Dispersion, and Sensitiveness of Liquids ». *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, **153**, 317, 1863.
- [29] H. T. GRAHN, D. A. YOUNG, H. J. MARIS, J. TAUC, J. M. HONG et T. P. SMITH, III. « Sound velocity and index of refraction of AlAs measured by picosecond ultrasonics ». *Applied Physics Letters*, **53**, 2023, 1988.
- [30] C. GUILLON, J. BURGIN, P. LANGOT, F. VALLÉE et B. HEHLEN. « Femtosecond spectroscopy of defect modes in silica glasses ». *Applied Physics Letters*, **86**, 81909, 2005.
- [31] V. GUSEV. « Laser hypersonics in fundamental and applied research ». *ACUSTICA - acta acustica, suppl. 1*, **82**, S38, 1996.
- [32] H.-Y. HAO et H. J. MARIS. « Dispersion of The Long-wavelength Phonons in Ge, Si, GaAs, Quartz, and Sapphire ». *Physical Review B*, **63**, 224301, 2001.
- [33] W.A. HARRISON. « Band Structure of Aluminum ». *Physical Review*, **118**, 1182, 1960.
- [34] M. HASE, M. KITAJIMA¹, A. M. CONSTANTINESCU et H. PETEK. « The birth of a quasi-particle in silicon observed in time-frequency space ». *Nature*, **426**, 51, 2003.

-
- [35] G. E. JELLISON, JR. « Optical functions of GaAs, GaP, and Ge determined by two-channel polarization modulation ellipsometry ». *Optical Materials*, **1**, 151, 1992.
- [36] E. O. KANE. « Strain Effects on Optical Critical-Point Structure in Diamond-Type Crystals ». *Physical Review*, **178**, 1368, 1969.
- [37] G. S. KANNER, S. FROLOV et Z. V. VARDENY. « Detection of Electronic Excited States in conjugated Polymers by Picosecond Transient Strain Spectroscopy ». *Physical Review Letters*, **74**, 1685, 1995.
- [38] C. KUO, S. ANAND, R. DROOPAD, K. CHOI et G. MARACAS. « Measurement of GaAs temperature-dependent optical constants by spectroscopic ellipsometry ». *Journal of Vacuum Science and Technology B*, **12**, 1214, 1994.
- [39] S. LABORDE, B. PERRIN, G. ABADIAS et C. JAOUEN. « Picosecond ultrasonics study of $\text{Mo}_x\text{Ni}_{1-x}$ solid solutions ». *Proceedings of the World Congress of Ultrasonics*, page 817, 2003.
- [40] H. LAMB. « On the vibrations of an elastic sphere ». *Proceedings of the London Mathematical Society*, **13**, 189, 1881.
- [41] P. LAUTENSCHLAGER, M. GARRIGA, L. VINA et M. CARDONA. « Temperature dependence of the dielectric function and interband critical points in silicon ». *Physical Review B*, **36**, 4821, 1987.
- [42] Z. H. LEVINE, H. ZONG, S. WEI, D. C. ALLAN et J. W. WILKINS. « Strained silicon : A dielectric-response calculation ». *Physical Review B*, **45**, 4131, 1992.
- [43] D. R. LIDE, éditeur. *Handbook of chemistry and physics*. CRC, Cleveland, 1998.
- [44] D. LIM, R. D. AVERITT, J. DEMSAR, A. J. TAYLOR, N. HUR et S. W. CHEONG. « Coherent acoustic phonons in hexagonal manganite LuMnO_3 ». *Applied Physics Letters*, **83**, 4800, 2003.
- [45] H. N. LIN, R. J. STONER, H. J. MARIS et J. TAUC. « Phonon attenuation and velocity measurements in transparent materials by picosecond acoustic interferometry ». *Journal of Applied Physics*, **69**, 3816, 1991.
- [46] K.-H. LIN, C.-T. YU et C.-K. SUN. « Generation of picosecond acoustic pulses using a p - n junction with piezoelectric effects ». *Applied Physics Letters*, **86**, 93110, 2005.
- [47] O. MADELUNG. *Semiconductors Groupe IV Elements and III-V compounds*. Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- [48] MARKETECH INTERNATIONAL. <http://www.mkt-intl.com/sapphires>. page consultée le 08 Août 2005.
- [49] O. MATSUDA et O. B. WRIGHT. « Reflection and transmission of light in multilayers perturbed by picosecond strain pulse propagation ». *Journal of the Optical Society of America B*, **19**, 3028, 2002.
- [50] O. MATSUDA, O. B. WRIGHT, D. H. HURLEY, V. E. GUSEV et K. SHIMIZU. « Coherent Shear Phonon Generation and Detection with Ultrashort Optical Pulses ». *Physical Review Letters*, **93**, 095905, 1999.
- [51] V. MAZZACURATI et G. RUOCCO. *Molecular Physics*, **61**, 1391, 1987.
- [52] K. A. NELSON et M. D. FAYER. « Laser induced phonons : A probe of intermolecular interactions in molecular solids ». *Journal of Chemical Physics*, **72**, 5202, 1980.

- [53] K. A. NELSON, D. R. LUTZ, M. D. FAYER et L. MADISON. « Laser-induced phonon spectroscopy. Optical generation of ultrasonic waves and investigation of electronic excited-state interactions in solids ». *Physical Review B*, **24**, 3261, 1981.
- [54] P. O. NILSSON. Solid State Physics. volume 29. Academic, New York, 1974.
- [55] OCEANOPTICS, INC. 830 Douglas Ave. Dunedin, FL 34698 USA.
- [56] E. D. PALIK, éditeur. *Handbook of Optical Constants of Solids*, volume I. Academic, Boston, 1985.
- [57] E. D. PALIK, éditeur. *Handbook of Optical Constants of Solids*, volume II. Academic, Boston, 1991.
- [58] B. PERRIN, B. BONELLO, J.-C. JEANNET et E. ROMATET. « Interferometric detection of hypersound waves in modulated structures ». *Progress in Natural Science*, **6**, S-444, 1996.
- [59] PHILIPS ADVANCED METROLOGY SYSTEMS, INC. 12 Michigan Drive, Natick, MA 01760, USA, <http://www.ams.philips.com>.
- [60] J.-P. PÉREZ, R. CARLES et R. FLECKINGER. *Électromagnétisme : fondements et applications*. Collection Masson Sciences. Dunod - 3e édition, Paris, 1990.
- [61] C. J. K. RICHARDSON, M. J. EHRLICH et J. W. WAGNERA. « Measurements of nanometer scale interface diffusion between tungsten and niobium thin films using high frequency laser based ultrasound ». *Journal of the Acoustical Society of America*, **107**, 1987, 2000.
- [62] A. RICHARDT et A-M. DURAND. *Le vide - Les couches minces - Les couches dures*. In Fine, Paris, 1994.
- [63] E. ROMATET. « Réalisation et applications d'un dispositif d'acoustique picoseconde ». Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Laboratoire des Milieux Désordonnés et Hétérogènes, Paris, 1996.
- [64] R. ROSEI et D.W. LYNCH. « Thermomodulation Spectra of Al, Au, and Cu ». *Physical Review B*, **5**, 3883, 1972.
- [65] C. ROSSIGNOL. « Etude théorique et numérique d'expériences d'acoustique picoseconde ». Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris, Laboratoire des Milieux Désordonnés et Hétérogènes, 2000.
- [66] C. ROSSIGNOL, B. PERRIN, S. LABORDE, L. VANDENBULCKE, M. I. De BARROS et P. DJEMIA. « Nondestructive evaluation of micrometric diamond films with an interferometric picosecond ultrasonics technique ». *Journal of Applied Physics*, **95**, 4157, 2004.
- [67] C. ROSSIGNOL, J. M. RAMPNOUX, M. PERTON, B. AUDOIN, et S. DILHAIRE. « Generation and Detection of Shear Acoustic Waves in Metal Submicrometric Films with Ultrashort Laser Pulses ». *Physical Review Letters*, **94**, 166106, 2005.
- [68] D. ROYER et E. DIEULESAINT. *Ondes élastiques dans les solides*. Masson, Paris, 1999.
- [69] RUDOLPH TECHNOLOGIES, INC. One Rudolph Road, Flanders, NJ 07836, USA, <http://www.rudolphtech.com>.
- [70] P. SIRY, L. BELLARD et B. PERRIN. « Picosecond Acoustics with Very High Lateral Resolution ». *ACUSTICA - acta acustica*, **89**, 925, 2003.
- [71] E. SONDERGARD, R. KOFMAN, P. CHEYSSAC et A. STELLA. « Production of nanostructures by self-organization of liquid Volmer-Weber films ». *Surface Science*, **364**, 467, 1996.
- [72] J. A. STRATTON. *Electromagnetic Theory*. McGraw-Hill, New York, 1941. chap. 5.14 et suivants.

-
- [73] voir par exemple en France le projet RMNT Stressnet (2002).
- [74] G. TAS, J.J. LOOMIS, H.J. MARIS, A.A. BAILES et L.E. SEIBERLING. « Picosecond Ultrasonics Study of the Modification of Interfacial Bonding by Ion Implantation ». *Applied Physics Letters*, **72**, 2235, 1998.
- [75] G. TAS, R. J. STONER, H. J. MARIS, W. RUBLOFF, G. S. OEHRLEIN et J. M. HALBOUT. « Noninvasive picosecond ultrasonic detection of ultrathin interfacial layers : CF_x at the Al/Si interface ». *Applied Physics Letters*, **61**, 1787, 1992.
- [76] G. THEODOROU et G. TSEGAS. « Piezo-optical properties of Ge ». *Physical Review B*, **56**, 9512, 9519, 1997.
- [77] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, H. J. MARIS et J. TAUC. « Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses ». *Physical Review B*, **34**, 4129, 1986.
- [78] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, J. TAUC et H. J. MARIS. « Picosecond interferometric technique for study of phonons in the Brillouin frequency range ». *Optics Communications*, **60**, 55, 1986.
- [79] C. THOMSEN, J. STRAIT, Z. VARDENY, H. J. MARIS, J. TAUC et J. J. HAUSER. « Coherent Phonon generation and detection by picosecond light pulses ». *Physical Review Letters*, **53**, 989, 1984.
- [80] R. VACHER et J. PELOUS. « Behavior of thermal phonons in amorphous media from 4 to 300 K ». *Physical Review B*, **14**, 823, 1976.
- [81] A. VAREILLE. <http://www.perso.wanadoo.fr/aime.vareille/pages/ellipsometrie/introduction.html>. page consultée le 08 Août 2005.
- [82] O. B. WRIGHT et V. E. GUSEV. « Acoustic generation in crystalline silicon with femtosecond optical pulses ». *Applied Physics Letters*, **66**, 1190, 1995.
- [83] O. B. WRIGHT et K. KAWASHIMA. « Coherent Phonon Detection from Ultrafast Surface Vibration ». *Physical Review Letters*, **69**, 1668, 1992.
- [84] O. B. WRIGHT, U. ZAMMIT, M. MARINELLI et V. E. GUSEV. « Picosecond relaxation and thermal diffusion in amorphous silicon ». *Applied Physics Letters*, **69**, 553, 1996.
- [85] T. C. ZHU, H. J. MARIS et J. TAUC. « Attenuation of longitudinal-acoustic phonons in SiO_2 at frequencies up to 440 GHz ». *Physical Review B*, **44**, 4281, 1991.

Résumé

Oscillations Brillouin en acoustique picoseconde colorée

L'acoustique picoseconde est une technique pompe-sonde résolue en temps à l'échelle de la picoseconde, adaptée aux objets nanométriques. Elle consiste à générer et détecter optiquement des ondes acoustiques allant du GHz au THz.

Ce travail est consacré aux oscillations Brillouin, un phénomène interférentiel visible sur les mesures dans les matériaux transparents. Il est montré qu'un choix opportun de la longueur d'onde des faisceaux lumineux favorise l'apparition de ces oscillations. Leur très forte dépendance à la longueur d'onde et aux propriétés de l'endroit précis où se trouve l'impulsion acoustique est employée pour démontrer l'influence de la structure électronique des semiconducteurs sur les mesures, et pour enrichir l'étude acoustique et optique des films minces transparents.

Ces effets permettent d'envisager de nouvelles applications de l'acoustique picoseconde grâce aux oscillations Brillouin, et montrent l'intérêt d'y intégrer la dimension spectroscopique.

Mots-clés : Acousto-optique, Analyse spectrale, Diélectriques, Brillouin, Spectroscopie résolue dans le temps, Impulsions laser ultra-brèves, Structure électronique, Couches minces, Méthode ultrasonore picoseconde, Semiconducteurs.

Abstract

Brillouin oscillations in coloured picosecond ultrasonics

Picosecond ultrasonics is a picosecond-resolved pump-probe technique suitable for nanoscaled objects in which GHz to THz acoustic waves are launched and detected optically.

This thesis focuses on Brillouin oscillations, which appear on measurements on transparent samples due to interference effects. It is shown that a careful choice of the light beams wavelengths favours the apparition of these oscillations. Their very strong sensitivity to the wavelength and to the local properties of the sample where the acoustic pulse actually is, are used to show the influence of the electronic structure of semiconductors on the measurements, and to enrich the acoustical and optical study of thin transparent films.

These effects open the way for new applications of picosecond ultrasonics thanks to Brillouin oscillations, and show how interesting would be the integration of the spectroscopic dimension.

Keywords: Acousto-optics, Spectrum analysis, Dielectrics, Brillouin scattering, Time-resolved spectroscopy, Ultrashort laser pulses, Electronic structure, Thin films, Picosecond ultrasonics, Semiconductors.