



HAL
open science

Acoustique Picoseconde dans les multicouches métalliques

Stephane Laborde

► **To cite this version:**

Stephane Laborde. Acoustique Picoseconde dans les multicouches métalliques. Acoustique [physics.class-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT : . tel-00412511

HAL Id: tel-00412511

<https://theses.hal.science/tel-00412511v1>

Submitted on 1 Sep 2009

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

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



Thèse présentée par **Stéphane LABORDE** pour obtenir le grade de **DOCTEUR** de
l'Université Pierre et Marie Curie

Spécialité : **Physique**
Mention : **Acoustique physique**

Acoustique picoseconde dans les multicouches métalliques

soutenue le **mercredi 22 février 2006**, devant un jury composé de :

M. Grégory ABADIAS	Univ. Poitiers	Examineur
M. Alain LHÉMERY	CEA, Saclay	Rapporteur
M. Adnen MLAYAH	Univ. Toulouse	Rapporteur
M. Bernard PERRIN	CNRS	Directeur de thèse
M. Daniel ROYER	Univ. Paris 7	Examineur
M. Abhay SHUKLA	Univ. Paris 6	Président

Thèse préparée à
l'Institut des NanoSciences de Paris
Université Pierre et Marie Curie.



À mes parents,
à Fanny Z. (mais bientôt L...).

Les années de tâtonnement dans l'obscurité en quête d'une vérité que l'on pressent, mais que l'on ne peut exprimer, le désir intense de trouver et les alternances d'enthousiasme et de découragement, jusqu'à ce que la clarté et la compréhension se fassent jour, ne peuvent être compris que par ceux qui les ont éprouvés.

— Albert EINSTEIN.

La nymphe Écho¹



FIG. 1 – "Écho et Narcisse", J.W. Waterhouse, 1903. Exposé à la Walker Art Gallery, Liverpool, England.

Dans la mythologie grecque, Écho est une nymphe des sources et des forêts du mont Hélicon et la personnification de l'écho acoustique.

Écho fut élevée par les nymphes et instruite par les Muses. Elle était très proluxe et inventait de nombreuses histoires : c'est ainsi qu'elle distrayait Héra pour favoriser les amours de Zeus. Mais la déesse finit par s'apercevoir de ce manège et pour punir Écho, elle lui ôta la parole, l'obligeant à répéter ce que disait son interlocuteur. Elle tomba amoureuse de Narcisse, mais fut méprisée par celui-ci. Le coeur brisé, elle s'enfuit dans une grotte solitaire et se laissa dépérir. La légende dit qu'elle s'est tellement amaigrie qu'elle a totalement disparu et que seule sa voix lui reste. Ainsi est né le phénomène de l'écho.

Sources

- Nonnos de Panopolis, Dionysiaques (IV, 327) ;
- Ovide, Métamorphoses (III, 356 et suiv.) ;
- Pausanias, Description de la Grèce [lire en ligne] (IX, 31).

¹Texte extrait de Wikipédia (<http://www.wikipedia.org>), plus précisément de la page suivante : http://fr.wikipedia.org/wiki/%C3%89cho_%28mythologie%29

Remerciements

Ce travail a été commencé au **L**aboratoire des **M**ilieus **D**ésordonnés et **H**étérogènes dirigé par Alain MAUGER, il a été achevé à l'**I**nstitut des **N**ano**S**ciences de **P**aris dirigé par Claudine NOGUERA. Je remercie vivement ces deux personnes qui m'ont fournis un cadre de travail de qualité et convivial.

Le sujet de cette thèse m'a été proposé par Bernard PERRIN, qui m'a accueilli dans son équipe et m'a fait bénéficier de son expérience. Il m'a beaucoup apporté tant sur le plan expérimental que théorique et je le remercie sincèrement pour m'avoir formé et conseillé tout au long de cette thèse.

Je remercie M. Abhay SHUKLA qui a présidé le jury lors de ma soutenance de thèse. Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance à MM. Alain LHÉMERY et Adnen MLAYAH qui ont accepté d'être rapporteurs pour cette thèse. Merci également à MM. Grégory ABADIAS et Daniel ROYER d'avoir accepté de faire partie de mon jury.

Je tiens également à remercier toute l'équipe du couloir 22-32 à jussieu puis du bâtiment 11 à Boucicaut pour la bonne humeur de tous les instants et l'aide que chacun a pu m'apporter à divers moments. Parmi tous les membres de l'équipe, je souhaite remercier particulièrement quelques personnes. Parmi eux, Roger GOHIER m'a aidé à comprendre les techniques de dépôt de films métalliques et s'est toujours montré disponible pour faire des échantillons ou m'expliquer le fonctionnement des machines de dépôt. Par ailleurs, ses talents culinaires ont contribué à la bonne humeur et à la bonne ambiance qui règne dans l'équipe.

Je remercie encore Laurent BÉLLIARD et Emmanuel PÉRONNE qui m'ont beaucoup aidé lors des expériences que j'ai eu à mener pour ce travail. Ils n'ont jamais été avares de leurs qualités d'expérimentateurs et m'ont souvent aidé à obtenir des réglages toujours plus fins, Merci.

Je remercie aussi Serge VINCENT qui a réalisé une partie de l'interfaçage du matériel pour une partie des expériences que j'ai mené. Il s'est montré attentif et à l'écoute de nos problème et a su les résoudre.

Que Bernard BONELLO, François GANOT et plus particulièrement Emmanuel PÉRONNE soient aussi remerciés pour avoir accepté la tâche ingrate de la relecture du manuscrit et qui m'on fait des remarques pertinentes et sont toujours restés patients face à mon orthographe ou des équations récalcitrantes.

Je tiens aussi à remercier Christiane JAOUEN et Grégory ABADIAS qui ont éla-

boré une grande partie des échantillons sur lesquels j'ai pu travailler tout au long de ma thèse. Ils se sont toujours tenus disponibles pour répondre à mes questions et me fournir toujours plus d'information sur leurs échantillons ou leurs méthodes d'élaboration.

Le "bureau thésards" a aussi été le repère d'intenses réflexions scientifiques et/ou philosophiques. Tatiana BIENVILLE, Christine CHARLES, Emmanuel PÉRONNE (encore lui...), Shuo ZHANG et Lili GANJEHI ont contribué à toujours maintenir cette ambiance propice au travail dans la bonne humeur. Je les en remercie chaleureusement.

Merci aussi à la toute nouvelle équipe "Acoustique, optique et thermique ultrarapide dans les nano-systèmes" de l'INSP pour leur aide et leur sympathie, il y a sans ordre particulier les deux Jean-Yves, Jean-Louis, Nicole, Bruno, Yannick, Majid, Agnès, Pierre et tous les autres que je ne nomme pas mais que je n'oublie pas.

Enfin, je voudrais remercier mes proches, mes amis, mes beaux parents pour leurs encouragements. Je remercie aussi spécialement mes parents pour leur soutien de tous les jours et plus particulièrement Fanny dont la patience et l'amour lui ont permis de supporter mes absences, mes doutes et mes sautes d'humeur et sans qui vous n'auriez peut-être pas pu lire ce rapport de thèse.

Merci à tous.

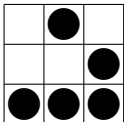


Table des matières

Table des matières	9
Table des figures	13
Liste des tableaux	19
Introduction	23
I Bases de l'acoustique picoseconde	29
1 Excitation et détection d'ultrasons par laser dans un film mince	31
1.1 Excitation d'ultrasons par laser dans un film mince	32
1.2 Détection des impulsions acoustiques	36
1.2.1 Influence du déplacement de surface	37
1.2.2 Influence de l'effet photo-élastique	37
1.2.3 Somme des deux contributions	40
1.3 Conclusion	41
2 Dispositifs expérimentaux	43
2.1 Principe général	44
2.2 Matériel utilisé	45
2.2.1 Le laser	45
2.2.2 La ligne à retard	46
2.2.3 La détection synchrone	46
2.2.4 Modulation acousto-optique	46
2.3 Réflectométrie	47
2.4 Détection interférométrique	49
2.4.1 L'interféromètre de Mach-Zehnder	50
2.4.2 L'interféromètre de Sagnac	53
2.5 Conclusion	54

II	Étude de systèmes multicouches	57
3	Vers les systèmes multicouches	59
3.1	Rappel sur le problème à une couche	62
3.1.1	Champ acoustique	62
3.1.2	Relation entre les champs acoustiques de part et d'autre d'un film	64
3.1.3	Passage au multicouches : Formalisme de matrice de transfert . .	66
3.2	Systèmes multicouches	67
3.2.1	Matrice de transfert acoustique	67
3.2.2	Matrice de transfert électromagnétique	69
3.3	Détection dans un système multicouches	71
3.3.1	Contribution de l'effet photoélastique	71
3.3.2	Contribution du déplacement des interfaces	72
3.3.3	Changement relatif de réflectivité : Somme des deux contributions	73
3.4	Conclusion	75
4	Systèmes multicouches périodiques alternés	77
4.1	Simplifications dues à la périodicité	79
4.1.1	Matrice de transfert optique	80
4.1.2	Matrice de transfert acoustique	81
4.2	Relation de dispersion - modes localisés	83
4.2.1	Relation de dispersion	83
4.2.2	Modes localisés	84
4.3	Propagation basse-fréquence - Milieux effectifs	88
4.3.1	Propriétés acoustiques	89
4.3.2	Propriétés optiques	90
4.4	Influence de couches d'interface	91
4.5	Transduction haute fréquence à l'aide de structures multicouches	92
4.5.1	Empilement périodique d'épaisseur finie	93
4.5.2	Transmission à travers un substrat	96
4.6	Conclusion	98
III	Résultats expérimentaux	99
5	Étude de solutions solides Mo_xNi_{1-x}	101
5.1	Préparation et caractérisation des échantillons	102
5.1.1	Dispositif expérimental	102
5.1.2	Transition cristal/amorphe et structure des alliages Mo_xNi_{1-x} . .	105
5.2	Acoustique picoseconde dans les alliages	109
5.2.1	Propriétés élastiques	109

5.2.2	Variation de la forme des échos	111
5.2.3	Adhésion entre film et substrat	115
5.3	Conclusion	117
6	Étude de multicouches périodiques alternées	119
6.1	Propagation basse-fréquence et milieu effectif	120
6.1.1	Empilements multicouches et milieu effectif	120
6.1.2	Étude d'échantillons multicouches Mo[110]/Ni[111], influence de couches d'interfaces	122
6.2	Propagation haute-fréquence et modes localisés	125
6.2.1	Existence des modes localisés	126
6.2.2	Évolution de la fréquence des modes localisés	129
6.2.3	Amplitude relative des modes localisés - règle de sélection	133
6.3	Étude préliminaire d'échantillons multicouches en transmission	138
6.4	Conclusion	142
	Conclusion et perspectives	145
A	Expression du changement relatif de réflectivité	151
A.1	Expression de l'intégrale photoélastique	151
A.2	Expression de la variation de déplacements	152
A.3	Somme des 2 contributions	153
	Annexes	151
B	Données utiles sur les métaux en acoustique picoseconde	155
	Références Bibliographiques	157
	Index	165

Table des figures

1	”Écho et Narcisse”, J.W. Waterhouse, 1903. Exposé à la Walker Art Gallery, Liverpool, England.	4
1.1	Absorption de l’impulsion laser par l’échantillon.	33
1.2	Profils de déformation suivant la profondeur dans le film mince à 3 instants successifs.	35
1.3	Déplacement $u(z = 0, t)$ de la surface du film mince dû à l’écho acoustique.	36
1.4	Diffusion d’un champ électromagnétique par une perturbation acoustique localisée en z	38
1.5	Passage d’une interface par un champ électromagnétique. Les indices ”g” et ”d” correspondent aux champs électriques à gauche et à droite de l’interface.	38
1.6	Parties réelles et imaginaires de $\Delta r(t)/r_0$ pour un film d’aluminium de 250 nm d’épaisseur sur un substrat de silicium.	40
2.1	Dispositif expérimental pour l’acoustique picoseconde.	44
2.2	Principe d’une expérience d’acoustique picoseconde.	45
2.3	Modulation du train d’impulsion à 1 MHz.	47
2.4	Mesure en réflectométrie.	48
2.5	Mesure en réflectométrie dans un alliage de Mo/Ni.	49
2.6	Dispositif expérimental de l’interféromètre de Mach-Zehnder.	50
2.7	Principe de l’interféromètre de Mach-Zehnder simplifié.	51
2.8	Interféromètre de Sagnac. Les trajets des bras de l’interféromètre ont été décalés pour plus de clarté, mais en réalité, ils sont confondus.	53
2.9	Mesures des parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0(t)$ avec un interféromètre de Mach-Zehnder sur un film d’alliage $Mo_{0.84}Ni_{0.16}$ de 184 nm d’épaisseur.	54
3.1	Variation de réflectivité pour une couche de tungstène de 86 nm d’épaisseur sur un substrat de silicium.	60
3.2	Variation de réflectivité pour un système multicouches $W_{6nm}/Mg_{190nm}/W_{6nm}$ déposé sur un substrat de silicium.	61
3.3	Schéma pour un échantillon multicouches.	62

3.4	Notation des champs acoustiques dans un empilement.	67
3.5	Champs électromagnétiques $E_m(z) = (a_m, b_m)$ dans un empilement multicouches.	69
3.6	Evolution du spectre du déplacement acoustique en fonction de la profondeur pour un échantillon multicouche Cu/W ($d_{Cu} = 4$ nm et $d_W = 8$ nm).	75
4.1	Les différents modes de propagation dans un empilement multicouches périodique alterné.	80
4.2	Schéma d'un système multicouches périodique alterné.	80
4.3	Courbe de dispersion calculée pour un système multicouches périodique alterné : Cu/W. Les couches ont des épaisseurs de 4 nm (cuivre) et 8 nm (tungstène). Les modes localisés en surface sont représentés dans les bandes interdites par des points rouges.	85
4.4	Evolution des fréquences des modes localisés (traits pleins), des modes de bords de bandes interdites (traits pointillés) et des valeurs propres associées aux modes localisés en fonction de l'épaisseur de la période ($d = d_1 + d_2$). Les courbes ont été calculées pour une période Cu/W avec $d_W = 8$ nm et d_{Cu} variant de 1 à 15 nm.	87
4.5	Relation de dispersion et spectre simulé de $\Delta r/r_0$ avec $d_{Cu} = 2$ nm et $d_W = 8$ nm soit $\Lambda = 10$ nm.	89
4.6	Parties réelles et imaginaires simulées du changement relatif de réflectivité pour un multicouche (courbes foncées) et pour le milieu effectif correspondant (courbes claires).	91
4.7	Parties réelles du spectre du changement relatif de réflectivité pour un multicouche et pour le milieu effectif correspondant.	92
4.8	Présence de couches d'interface dans un empilement.	92
4.9	Transmission à travers un échantillon. On excite (pompe) du côté de l'empilement et on tente de détecter sur l'autre face avec une couche d'aluminium jouant le rôle de transducteur.	93
4.10	Raies spectrales (en puissance) autour du premier mode localisé pour un empilement Cu/W de 12 nm de période avec un rapport d'épaisseur de 1/2. On compte deux raies, la plus large correspond à un empilement de 3 périodes et la plus fine à un empilement de 6 périodes. (a) - Grossissement de la raie la plus large. (b) - Raies spectrales normalisées.	95
4.11	Densités spectrales de puissances à $\omega = \omega_L$ en fonction du nombre de périodes.	96
4.12	Excitation et détection par des multicouches (éventuellement différents) déposés de chaque côté d'un substrat.	97

5.1	Variation de la constante élastique effective C_{44} pour des échantillons multicouches Mo/Ni . Elle est déterminée par des expériences de Diffusion Brillouin (BLS : Brillouin Light scattering). La valeur attendue (moyenne de Hill) est de 80 GPa.	103
5.2	Chambre de dépôt NORDIKO-3000.	104
5.3	(A) - Scans XRD pour les films codéposés Mo_xNi_{1-x} en fonction de la composition x . (B) - Scan XRR d'un alliage $Ni_{0.5}Mo_{0.5}$ déposé sur Silicium. Les données sont ajustées avec un modèle à trois couches : une couche de surface oxydée ($\rho = 3.5 \text{ g/cm}^3$, $h = 1.2 \text{ nm}$), une couche de $Mo_{0.5}Ni_{0.5}$ ($\rho = 5.7 \text{ g/cm}^3$, $h = 54 \text{ nm}$) et une couche interfaciale ($\rho = 3.3 \text{ g/cm}^3$, $h = 2.1 \text{ nm}$).	105
5.4	Densité des films minces d'alliages Mo_xNi_{1-x} en fonction de la fraction atomique x de Mo	107
5.5	Images AFM de la topographie de surface de trois échantillons de Mo_xNi_{1-x} : a) $Ni_{0.87}Mo_{0.13}$ (Solution solide <i>fcc</i>), b) $Ni_{0.64}Mo_{0.36}$ (région amorphe) et c) $Ni_{0.17}Mo_{0.83}$ (solution solide <i>cc</i>).	108
5.6	Evolution de la rugosité moyenne de surface (RMS) des alliages Mo_xNi_{1-x} en fonction de la composition x	108
5.7	Mesures de réflectivité pour le film $Mo_{0.835}Ni_{0.165}$ (Éch. SE-03). Le graphique supérieur montre les courbes expérimentales. En dessous, on a extrait les échos acoustiques des parties réelle (à gauche) et imaginaire (à droite).	109
5.8	(a) - Vitesse longitudinale dans les films de Mo_xNi_{1-x} en fonction de la fraction x de molybdène. (b) - Constantes élastiques C_{33} mesurées par acoustique picoseconde.	110
5.9	Ajustement des parties réelles et imaginaires du changement relatif de réflectivité $\Delta r/r_0$	112
5.10	Formes d'échos pour deux fractions x de molybdène : les courbes expérimentales sont données en trait plein, leur meilleur ajustement est en ligne pointillée, ils ont été décalés pour une meilleure visualisation.	113
5.11	Parties réelles (disques) et imaginaires (triangles) de l'indice optique et du coefficient photoélastique pour toute la plage de concentration x	114
5.12	Evolution de la forme des échos en fonction de la composition (pour $5.7 \leq x \leq 61.6\%$).	114
5.13	Partie réelle de $\Delta r/r_0$ pour l'échantillon SE03 ($Mo_{0.84}Ni_{0.16}$)	115
5.14	Modélisation de l'interface non-rigide entre le film et le substrat par une force de rappel.	116
5.15	Influence du paramètre d'adhésion δ sur la partie réelle du changement de réflectivité, pour un substrat plus mou (a) et pour un substrat plus dur (b).	117

5.16	forme des échos pour le film $Mo_{0.835}Ni_{0.165}$. Les courbes expérimentales sont représentées en trait plein. (a) - La ligne pointillée est un ajustement pour une interface rigide ($\delta = 0$). (b) la ligne pointillée est un ajustement pour une interface non-rigide ($\delta = 0.33$).	117
6.1	Schéma d'un système multicouche périodique alterné.	120
6.2	Partie imaginaire de $\Delta r(t)/r_0$ pour un empilement multicouche $(Mo_{1.8}/Ni_3)_{\times 63}$. On a représenté le signal mesuré expérimentalement en interférométrie (ligne pleine). Les deux autres courbes représentent la simulation numérique du même empilement et celle d'une couche unique ayant les caractéristiques du milieu effectif.	121
6.3	Évolution de C_{33} (mesurées en acoustique picoseconde) en fonction de la période Λ des multicouches.	123
6.4	Évolution de $\frac{\Lambda}{C_{33}}$ en fonction de la période Λ des multicouches (les barres d'erreur n'excèdent pas la taille des points représentés ici).	124
6.5	Variation de $1/C_{33}$ en fonction de Λ^{-1} . Les valeurs de $1/C_{33}^{eff}$ et de $1/h_{int}$ sont également reportée.	125
6.6	Relation de dispersion et spectre simulé de $\Delta r/r_0$ avec $d_{Cu} = 4$ nm et $d_W = 8$ nm soit $\Lambda = 12$ nm. Le spectre expérimental est la courbe supérieure et le spectre calculé la courbe inférieure.	126
6.7	Signaux expérimentaux mesurés sur "Cu/W13" et "Cu/W14".	128
6.8	courbe de dispersion et spectres expérimentaux mesurés pour "Cu/W13" et "Cu/W14".	129
6.9	Fréquences des modes localisés en fonction de la période Λ . Les points théoriques sont représentés par des carrés et les mesures par des points (pleins).	131
6.10	Spectres expérimentaux et simulés pour deux échantillons Cu/W de différentes compositions. Afin d'améliorer la lisibilité, les courbes de dispersions retournées ont été reportées au dessus des spectres et les bandes de fréquences interdites ont été ombrées sur les deux courbes. Sur les courbes de dispersions, les modes localisés ont été matérialisés par des points. (A) - Multicouche "Cu/W 6", le rapport d'épaisseur $r = d_1/d_2$ vaut 1 et la période est 12 nm. (B) - Multicouche "Cu/W 9", le rapport d'épaisseur $r = d_1/d_2$ vaut 1/2 et la période est 12 nm.	132
6.11	Fréquence des modes localisés en fonction du rapport d'épaisseur $r = \frac{d_1}{d_2}$	133
6.12	a. - Valeurs propres des deux premiers modes localisés calculées pour des multicouches Cu/W de période $\Lambda = 12$ nm. b. - Valeur absolue de ces valeurs propres.	134
6.13	Décroissance de l'amplitude spectrale du premier mode localisé mesuré en acoustique picoseconde pour des multicouches Cu/W de période $\Lambda = 12$ nm.	135

6.14 Spectres expérimentaux pour les échantillons de 12 nm de période.	137
6.15 Spectres du changement relatif de réflectivité pour trois multicouches Cu/W de rapport d'épaisseur unité.	138
6.16 Transmission à travers un échantillon. On excite (pompe) du côté de l'empilement et on tente de détecter sur l'autre face avec une couche d'aluminium jouant le rôle de transducteur	139
6.17 Signaux mesurés en transmission avec un interféromètre de Sagnac. Les ondes effectuent des aller/retour à travers un échantillon constitué d'un multicouche Cu_4/W_8 déposé sur un substrat de silicium. L'autre face du substrat est couverte d'une couche d'aluminium. Les signaux représentés sont donnés par les deux voies de la détection synchrone. chaque écho acoustique apparaît deux fois à cause des deux bras de l'interféromètre. L'écho qui a achevé une traversée est détecté par la troisième impulsion sonde et l'écho qui a effectué 3 traversées est détecté par la huitième.	140
6.18 Echo acoustique ayant traversé le substrat de silicium. L'échantillon est constitué d'un multicouche Cu_4/W_8 déposé sur un substrat de silicium. L'autre face du substrat est couverte d'une couche d'aluminium.	141
6.19 Transformée de Fourier de l'écho de la figure 6.18.	141

Liste des tableaux

4.1	Relations fréquentielles pour les modes localisés et les modes de bord de bande interdites.	87
4.2	Fréquences (en GHz) correspondant aux différents modes remarquables pour un échantillon multicouche Cu/W de période de 10 nm avec un rapport d'épaisseur $r = 1/4$	88
5.1	Paramètres utilisés pour l'ajustement des parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0$	112
5.2	Résultats de l'ajustement des parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0$ pour l'échantillon "SE03".	112
6.1	Fréquences (en GHz) correspondant aux différents modes remarquables pour un échantillon multicouche Cu/W de période de 12 nm avec un rapport d'épaisseur $r = 1/2$	127
6.2	Fréquences des modes localisés en fonction des caractéristiques des échantillons "Cu/W 13" et "Cu/W 14". F_1 et F_2 sont respectivement les fréquences attendues pour les modes localisés dans les bandes interdites d'ordre 1 et 2. Les valeurs données pour les épaisseurs sont nominales.	127
6.3	Paramètres pour les échantillons multicouches Cu/W avec un rapport $r = d_1/d_2$ constant.	130
6.4	Paramètres pour les échantillons multicouches Cu/W à période constante.	130
B.1	Données optiques et thermodynamiques pour les métaux.	155
B.2	Données mécaniques et acoustiques pour les métaux.	156

Introduction

Introduction

Dès l'avènement du laser dans les années 1960, l'idée de l'utiliser pour engendrer des ondes acoustiques dans les matériaux a très rapidement intéressé la communauté scientifique. En effet jusque là, la méthode la plus utilisée pour exciter des ultrasons dans un matériau reposait sur l'utilisation d'un transducteur ultrasonore déposé ou couplé via un gel de couplage au système à étudier. Les transducteurs piézoélectriques permettent d'exciter ou de détecter des ultrasons, néanmoins, ils nécessitent un contact avec le système à étudier, ce qui n'est pas toujours aisé si les matériaux sont fragiles ou dans des conditions de pression, de température ou d'irradiations inhabituelles. L'idée d'engendrer des ultrasons sans contact avec le matériau en déposant de l'énergie à sa surface est donc apparue très rapidement ; en 1963 R.M. White [1] fut le premier à montrer que l'échauffement transitoire de la surface d'un échantillon provoquait l'apparition d'une onde ultrasonore. Puis l'emploi de lasers [2–4] pour échauffer la surface a permis d'approfondir les mécanismes de création des ultrasons. Ces techniques basées sur les lasers sont alors apparues comme des alternatives sérieuses pour la production d'ondes ultrasonores. Les progrès dans la technologie des lasers ont notamment conduit à des impulsions de plus en plus courtes et ont permis d'exciter et de détecter des ondes élastiques de fréquence plus élevée, mais jusque dans les années 1980, l'utilisation des techniques optiques n'entraînait pas de gain significatif de bande passante par rapport aux méthodes utilisant des capteurs piézoélectriques. Ces techniques, toujours utilisées de nos jours, ont une bande passante limitée à quelques gigahertz. Ce dernier point exclut la possibilité d'étudier des films minces d'épaisseur micronique ou submicronique qui impliquent d'utiliser des impulsions (ou des longueurs d'onde) acoustiques très courtes.

En 1984, Humphrey J. Maris pose les bases de l'acoustique picoseconde en démontrant expérimentalement qu'il est possible de détecter les ondes élastiques excitées par une impulsion laser à l'aide d'une autre impulsion laser [5, 6]. L'expérience de type pompe/sonde consiste à utiliser un laser impulsif pour engendrer les ondes élastiques à l'aide de l'impulsion pompe et les détecter après un délai fixé par l'expérimentateur grâce à une impulsion sonde. La résolution temporelle de ce type d'expérience est très fine ; de plus l'emploi d'impulsions lasers ultrabrèves pour la détection permet de détecter des fréquences acoustiques supérieures à un TéraHertz et donc de s'affranchir des limitations de bande passante liées à l'usage de capteurs piézoélectriques en gagnant

jusqu'à trois ordres de grandeurs. La longueur de pénétration optique (quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres) et la vitesse des ondes ultrasonores (quelques nm/ps) impliquent une durée de quelques picosecondes pour les impulsions acoustiques, leur spectre pouvant donc atteindre 200 GHz.

D'un point de vue technique, on mesure la variation relative de réflectivité due à la présence de l'impulsion acoustique en fonction du retard entre les impulsions pompe et sonde [6]. En 1996, Bernard Perrin *et al.* ont proposé l'emploi d'un interféromètre pour mesurer la variation relative de réflectivité [8,9]. Cette méthode permet aussi bien de mesurer les effets relatifs à l'effet photoélastique (amplitude) que les effets dûs aux mouvements des interfaces (phase). Les travaux présentés dans ce manuscrit sont issus de l'emploi de plusieurs interféromètres : le Mach-Zehnder ou Michelson [8,9], mais aussi l'interféromètre de Sagnac, qui offre une stabilité mécanique remarquable [10]. Dans ce cas, l'utilisation conjuguée d'une détection synchrone amplificatrice permet de détecter des déplacements aussi faibles que 10 femtomètres. Ainsi, il est possible de mener des expériences de type SONAR dans des films métalliques de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur ! Ceci a par exemple permis l'étude et la caractérisation de films minces cristallins de différentes natures dont les films métalliques [13–17]. L'acoustique picoseconde a aussi permis l'étude de solutions solides métastables [20], de films amorphes [21] ou encore de polymères [22]. Il s'agit d'une technique très polyvalente qui est utilisée aujourd'hui pour l'étude et la caractérisation de différents systèmes ainsi que d'une grande variété de phénomènes. De façon non exhaustive, je citerai par exemple l'étude de l'influence des aspects thermiques [36–38], l'atténuation des ondes acoustiques en fonction de la fréquence dans des systèmes complexes comme les quasi-cristaux *AlPdMn* [23] ou l'atténuation dans les amorphes [21]. Il est aussi possible de s'intéresser à la diffusion électronique [39–42] ou à la propagation non-linéaire des ultrasons et l'excitation de solitons acoustiques [45–47]. En particulier, la dispersion acoustique a été mise en évidence grâce à l'acoustique picoseconde [55].

L'utilisation de films minces pour engendrer des ondes acoustiques présente des restrictions : la bande passante des impulsions acoustiques reste limitée à environ 200 GHz. Pour étudier les vibrations dans la matière condensée, il existe des techniques comme la diffusion inélastique de neutrons ou la diffusion de rayons X, mais elles ne sont efficaces qu'au-dessus d'un TéraHertz. Pourtant d'un point de vue fondamental, il serait très intéressant d'être capable d'engendrer et de détecter des ondes élastiques hautes fréquences notamment pour étudier le comportement de matériaux désordonnés comme les verres ou les amorphes sur une gamme de fréquence comprise entre 0,2 et 1 THz. Pour cela, il existe deux voies. D'une part, on peut chercher à créer des impulsions plus courtes avec un spectre large et élevé. Réduire l'épaisseur des films transducteurs peut sembler une voie efficace mais plus le film est mince et moins on y dépose d'énergie.

Une autre façon plus intéressante et plus récente pour engendrer des impulsions de très courtes durées peut être d'explorer les possibilités offertes par l'acoustique non linéaire et d'exciter des solitons acoustiques dont la répartition spatiale est très fine et permettra d'étudier des nanostructures. D'autre part, pour produire des fréquences élevées, une solution apparaît très prometteuse et consiste à utiliser les possibilités actuelles de nanostructuration notamment des multicouches métalliques ou des superréseaux semiconducteurs de période nanométrique. L'acoustique picoseconde permet d'étudier les phonons dans ces structures multicouches [18, 19] ; une large palette d'empilements métalliques [24–28] ou de superréseaux [29–35] ont ainsi été étudiés sous ce prisme. Il y a deux avantages dans l'utilisation de la nanostructuration. D'une part, on imprime une modulation spatiale de courte période à la contrainte élastique ; on peut donc exciter des fréquences élevées. D'autre part, ces structures périodiques permettent de confiner des modes vibrationnels qu'il est donc possible d'exciter de façon résonante. Contrairement à l'optique où il est difficile d'obtenir un miroir parfait, une interface entre un solide et l'air ou le vide présente un coefficient de réflexion égal à un pour le déplacement ; de cette façon il est possible de confiner de l'énergie acoustique entre la surface et les couches sous-jacentes de l'empilement. On obtient ainsi des semi-cavités avec des modes résonants très confinés et ceux-ci ont été étudiés à différentes reprises [27, 38, 42]. Dans le système *Cu/Co*, Rossignol *et al.* ont observé des modes localisés atteignant 2,25 THz [42].

Objectifs

L'objet de cette thèse est l'étude de l'excitation d'ondes acoustiques de hautes fréquences pour atteindre le domaine du TéraHertz. Pour exciter des ondes élastiques de telles fréquences, nous utiliserons des empilements multicouches métalliques. L'équipe dans laquelle j'ai travaillé durant ma thèse bénéficie d'une expérience dans ce domaine [27, 42], de plus les systèmes métalliques ont déjà montré leur potentiel dans ce domaine et permettent d'accéder à une large gamme de paramètres acoustiques notamment en terme d'impédance acoustique. Enfin notre source laser permet l'étude de ces systèmes malgré sa faible accordabilité.

Avec des empilements périodiques nanométriques, on peut exciter des modes quasi-monochromatiques et confinés à la surface de l'échantillon. Nous étudierons ces modes afin de les utiliser pour émettre ces ultrasons dans le matériau sous-jacent, transformant ainsi un empilement en émetteur. Notre travail nous conduira à étudier les systèmes multicouches théoriquement, numériquement puis expérimentalement. D'une part, nous étudierons les modes localisés confinés à la surface de l'échantillon. Nous dégagerons leurs conditions d'existence ainsi que les paramètres qui agissent sur leur fréquence de vibration. Nous montrerons également qu'il existe un nombre de périodes optimal pour

l'utilisation de l'empilement en tant qu'émetteur. D'autre part, à l'heure actuelle l'élaboration de bons empilements métalliques se heurte à plusieurs difficultés dues aux désaccords de maille ainsi qu'au désordre et à l'interdiffusion aux interfaces. Pour analyser les problèmes qui apparaissent aux interfaces, nous étudierons des solutions solides Mo_xNi_{1-x} pour voir s'il y a une corrélation entre l'anomalie des constantes élastiques effectives (C_{33} et C_{44}) très généralement observée dans les multicouches de faible période et la formation d'alliages interfaciaux. Enfin, nous mènerons une expérience visant à émettre des ultrasons à la fréquence des modes localisés dans un substrat épais et de les détecter sur l'autre face de l'échantillon.

Ce travail fait suite aux thèses d'Eric Romatet : "Réalisation et applications d'un dispositif d'acoustique picoseconde", soutenue en 1996 [50] et de Clément Rossignol : "Étude théorique et numérique d'expériences d'acoustique picoseconde", soutenue en 2000 [42].

Guide de lecture

Le présent rapport se divise en trois parties distinctes et des annexes. Chacune des parties est composée de deux chapitres.

1. La première partie présente les bases de l'acoustique picoseconde en deux chapitres :
 - (a) Au début de ce chapitre, les bases théoriques sont jetées en détaillant le modèle simple à une dimension permettant de comprendre les tenants et les aboutissants des principes d'excitation et de détection d'ultrasons au moyen d'impulsions lasers ultrabrèves. Les approximations sont détaillées dans le cadre d'un modèle simple pour déterminer le déplacement et la déformation dans un film mince métallique et optiquement opaque. Ce chapitre met également en lumière les deux principaux effets qui entrent en jeu pour calculer le changement relatif de réflectivité à la surface du film mince.
 - (b) Les principes expérimentaux d'acoustique picoseconde sont détaillés dans le second chapitre. En premier lieu, le principe général basé sur la méthode dite "pompe/sonde" est expliqué, puis le matériel nécessaire à la mise en place des expériences est passé en revue en précisant le rôle de chaque instrument, en détaillant plus particulièrement les méthodes de détection interférométriques et leurs apports.
2. La deuxième partie s'intéresse aux propriétés optiques et acoustiques des systèmes multicouches d'un point de vue théorique.
 - (a) Le chapitre 3 traite du passage d'un film mince à un empilement multicouche quelconque. Pour cela, on utilise un formalisme de matrice de transfert per-

mettant d'exprimer les champs acoustiques en tout point de l'empilement en fonction des conditions aux limites. En opérant la même démarche du point de vue électromagnétique pour les impulsions laser qui pénètrent (partiellement) dans l'empilement lors de l'excitation et la détection, on pourra donner une formule pour la détection des variations relatives de réflectivité dans de telles structures. Les calculs sont formulés de façon à faciliter l'écriture de programmes de calcul pour la simulation numérique de la réponse acoustique et optique d'empilements multicouches.

- (b) Dans ce chapitre, le formalisme est restreint à l'étude des structures périodiques alternées. La périodicité permettra de dégager des propriétés intéressantes liées notamment aux modes localisés en surface. En effet, les courbes de dispersion dans de telles structures montrent l'ouverture de bandes de fréquence interdites dans lesquelles aucune onde ne peut se propager. Les aspects concernant l'influence de couches interfaciales et la transduction à travers un substrat sont également abordés.
3. La troisième et dernière partie détaille les résultats expérimentaux obtenus au cours de cette thèse à la lumière des modèles théoriques vus dans les parties précédentes.
- (a) Le premier chapitre traite de l'étude expérimentale de solutions solides Mo_xNi_{1-x} . Il s'agit d'alliages codéposés. Le but de cette étude est de comprendre le comportement et l'influence des couches d'alliage interfaciales dans les empilements. En effet, lorsque l'épaisseur de la période dans les multicouches diminue, l'influence de ces couches n'est pas négligeable. Il est donc intéressant de caractériser ces interfaces. Pour cela, nous étudierons des alliages Mo_xNi_{1-x} . Cette étude nous permettra d'avancer des hypothèses pour expliquer l'adoucissement élastique observé dans des multicouches Mo/Ni . Lors de cette étude, nous discuterons également la variation de la forme des échos en fonction des paramètres optiques des films, ainsi que l'adhésion du film sur son substrat.
 - (b) Le second chapitre traite des résultats expérimentaux pour les empilements multicouches périodiques. Nous étudierons les différents aspects de la propagation des ondes dans ces structures. Nous aborderons le cas des modes propagatifs basse-fréquence en considérant un milieu effectif, puis nous examinerons les propriétés dues à la périodicité comme les modes localisés qui peuvent être excités dans des bandes de fréquences interdites et pour lesquels l'amplitude décroît avec la profondeur dans l'empilement. Enfin, nous évoquerons une expérience de transmission de modes résonnants de haute fréquence à travers un substrat épais.

Pour finir, nous présenterons les conclusions sur les travaux théoriques et expérimentaux avant de présenter quelques perspectives.

Note de l'auteur

L'ensemble de ce rapport a été réalisé avec \LaTeX , ce qui permet d'obtenir un résultat qui respecte scrupuleusement les règles de typographie française et de césure des mots ². Il a notamment été compilé avec le paquetage *hyperref* ³, qui permet d'obtenir un document électronique (au format *PDF*) dans lequel il est facile de naviguer grâce à des liens hypertextes créés automatiquement dans les différentes tables (table des matières, des figures, des tableaux) et pour toutes les références (bibliographiques ou non). Dans la mesure du possible, les logiciels utilisés pour la rédaction de ce rapport sont des logiciels libres ⁴⁵, notamment l'éditeur *TeXnicCenter* ⁶ et la distribution MiKTeX ⁷.

²Voir les livres de Y. Perrousseau : "Mise en page et impression : Notions élémentaires", édité aux Atelier Perrousseau, 159 pages, 01-01-1998. ISBN 2911220013 et "Manuel de typographie française élémentaire", 5ème édition aux Atelier Perrousseau, 127 pages, 31-01-2000. ISBN 2911220005.

³Page officielle du paquetage *hyperref* sur le TeX users group (tug), <http://www.tug.org/applications/hyperref/>. Informations sur le paquetage *hyperref* sur le Comprehensive TeX Archive Network (ctan), <http://www.ctan.org/info?id=hyperref>

⁴Une définition par l'AFUL (Association Francophone des Utilisateurs de Linux et des Logiciels Libres), <http://www.iful.org/presentations/libre.html>. Définition originale du copyleft sur gnu.org, <http://www.gnu.org/copyleft/copyleft.fr.html>.

⁵Site web de la Free Software Foundation (FSF) : <http://www.fsf.org/>, d'un annuaire de logiciels libres, Framasoft : <http://www.framasoft.net/>.

⁶Site officiel de *TeXnicCenter*, <http://www.toolscenter.org/>

⁷Site officiel de la distribution MiKTeX pour \LaTeX , <http://www.miktex.org/>

Première partie

Bases de l'acoustique picoseconde

Chapitre 1

Excitation et détection d'ultrasons par laser dans un film mince

Sommaire

1.1	Excitation d'ultrasons par laser dans un film mince	32
1.2	Détection des impulsions acoustiques	36
1.2.1	Influence du déplacement de surface	37
1.2.2	Influence de l'effet photo-élastique	37
1.2.3	Somme des deux contributions	40
1.3	Conclusion	41

Dans ce premier chapitre, nous allons détailler un modèle simple décrivant l'excitation d'impulsions acoustiques dans un matériau par l'absorption photothermique d'une impulsion laser. En acoustique picoseconde, les échantillons d'épaisseur submicrométrique sur lesquels on travaille sont en général déposés sur des substrats. Nous verrons comment exciter un champ acoustique au sein d'un film mince déposé sur un substrat donné. Dans ce modèle de base, nous ferons un certain nombre d'hypothèses visant à disposer d'un modèle analytique permettant de décrire les phénomènes à l'origine de la production des ondes ultrasonores dans un film mince. Nous détaillerons ensuite les mécanismes permettant de détecter ces ondes élastiques en mesurant la variation de réflectivité.

1.1 Excitation d'ultrasons par laser dans un film mince

Pour engendrer des ultrasons par laser, on éclaire la surface du film avec une impulsion ultra brève. Son absorption par le matériau entraîne l'apparition d'un champ acoustique, qui se propage dans le film mince. Afin d'obtenir une solution analytique, il est nécessaire de faire différentes hypothèses :

- le matériau est isotrope élastiquement ;
- la durée des impulsions lasers est beaucoup plus courte que le temps nécessaire à l'apparition de phénomènes acoustiques transitoires ;
- la tache laser est beaucoup plus grande que les distances de propagation des ondes acoustiques. On peut donc considérer un problème à une dimension suivant la direction normale à la surface du film (mode piston) ;
- l'influence des diffusions thermiques et électroniques est négligée.

Lorsque l'impulsion laser arrive à la surface de l'échantillon, la lumière pénètre dans le matériau sur une épaisseur très faible : la longueur d'absorption α^{-1} (cf. figure 1.1). Dans les métaux, sa valeur se situe entre 10 et 30 nm pour une longueur d'onde de 750 nm. Le tableau B.1 en annexe donne les valeurs pour une longueur d'onde de 750 nm dans la plupart des métaux utilisés en acoustique picoseconde. L'impulsion laser se réfléchit sur la surface (avec un coefficient de réflexion $0,71 \leq R \leq 0,99$), son absorption provoque alors une dilatation thermique due à l'échauffement.

Lorsque l'impulsion lumineuse frappe la surface du film, la densité d'énergie déposée à la surface de l'échantillon dépend naturellement de l'énergie de l'impulsion Q et de la surface S de la tache laser, la loi de Beer-Lambert donne alors :

$$W(z,t) = \frac{\alpha(1-R)Q}{S} e^{-\alpha z} H(t)$$

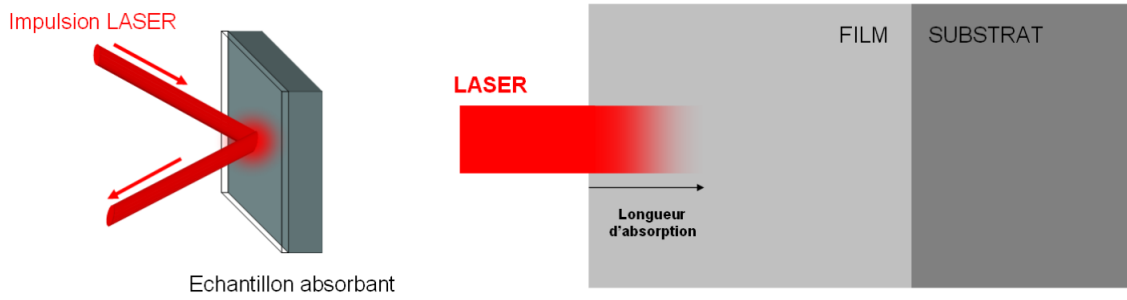


FIG. 1.1 – Absorption de l'impulsion laser par l'échantillon.

où $H(t)$ représente la fonction saut de Heaviside, α la longueur de pénétration optique et R est le coefficient de réflexion optique du film. L'absorption de l'impulsion laser par la couche entraîne une élévation de la température qui est donnée par le rapport de l'énergie déposée sur le film et de la chaleur spécifique

$$\Delta T(z, t) = \frac{W(z, t)}{C_v},$$

avec C_v la chaleur spécifique à volume constant ($J.K^{-1}$). L'élévation de température entraîne l'existence d'une contrainte thermique suivant la formule :

$$\sigma_{ij}^{th} = - \sum_{kl} C_{ijkl} \beta_{kl} \Delta T = -\beta \Delta T \sum_{kl} C_{ijkl} \delta_{kl}, \quad (1.1)$$

où C_{ijkl} et β_{kl} sont respectivement les composantes des tenseurs d'élasticité et de dilatation thermique. Dans le cas de matériaux isotropes, β_{kl} peut s'écrire $\beta \delta_{kl}$. Comme on néglige les effets latéraux et que l'on considère uniquement la direction normale à la surface (axe z), seul le gradient de température suivant cette direction contribue à la contrainte; on ne calcule donc que la composante σ_{33}^{th} du tenseur de contrainte thermique :

$$\sigma_{33}^{th} = -\beta \Delta T (C_{11} + 2C_{12}). \quad (1.2)$$

Dans un milieu isotrope, le module de compressibilité B est donné par $B = \frac{C_{11} + 2C_{12}}{3}$; la contrainte thermique dans le film s'écrit donc

$$\sigma_{th}(z, t) = -\frac{3\alpha\beta B(1-R)Q}{C_v S} e^{-\alpha z} H(t). \quad (1.3)$$

La présence de la fonction de Heaviside $H(t)$ traduit le fait l'énergie est déposée instantanément. La contrainte (selon z) dans le film est la somme de la contrainte élastique et de la contrainte thermique :

$$\sigma(z, t) = \sigma_{elas} + \sigma_{th} = \rho v^2 \frac{\partial u}{\partial z} - \rho v^2 \eta_0 e^{-\alpha z} H(t). \quad (1.4)$$

où u est le déplacement acoustique et dans laquelle on introduit le paramètre sans dimension $\eta_0 = \frac{3\alpha\beta B(1-R)Q}{\rho v^2 C_v S}$, qui détermine l'amplitude de la déformation induite. Les quantités ρ et v représentent respectivement la densité ($g.cm^{-3}$) et la vitesse des ondes élastiques longitudinales (nm/ps). Par ailleurs, la relation fondamentale de la dynamique donne une relation entre la dérivée seconde temporelle du déplacement et la dérivée spatiale de la contrainte

$$\rho \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = \nabla \cdot \sigma = \frac{\partial \sigma(z, t)}{\partial z}. \quad (1.5)$$

En reportant l'expression (1.4) de $\sigma(z, t)$ dans cette relation fondamentale de la dynamique (1.5), on obtient une équation de propagation pour le déplacement

$$\frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial z^2} - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = -\alpha \eta_0 e^{-\alpha z} H(t). \quad (1.6)$$

Pour résoudre cette équation, on utilise la transformée de Fourier, qui nous donne une équation de propagation en fréquence :

$$\frac{\partial^2 u(\omega, z)}{\partial z^2} + \left(\frac{\omega}{v}\right)^2 u(\omega, z) = -\alpha \eta_0 e^{-\alpha z} H(\omega), \quad (1.7)$$

où $H(\omega) = \frac{1}{2} (\delta(\omega) + \frac{i}{\pi\omega})$ est la transformée de Fourier de $H(t)$. La déformation est la dérivée du déplacement par rapport à la direction de propagation $\eta(z, q) = \frac{\partial u}{\partial z}$. L'équation de propagation pour la déformation s'écrit donc

$$\frac{\partial^2 \eta}{\partial z^2} + q^2 \eta = \eta_0 \alpha^2 e^{-\alpha z} H(q), \quad (1.8)$$

où $q = \omega/v$ est le vecteur d'onde acoustique dans le film. La solution de cette équation est la somme de la solution de l'équation homogène $Ae^{iqz} + Be^{-iqz}$ et d'une solution particulière $\frac{\alpha^2 \eta_0}{\alpha^2 + q^2} e^{-\alpha z} H(q)$ soit

$$\eta(z, q) = Ae^{iqz} + Be^{-iqz} + \frac{\alpha^2 \eta_0}{\alpha^2 + q^2} e^{-\alpha z} H(q) \quad (1.9)$$

Pour déterminer la valeur des constantes A et B , on utilise les conditions aux limites. On admet que l'épaisseur de l'échantillon est suffisamment grande pour que le terme contra-propagatif Be^{-iqz} puisse être négligé ($B = 0$). Pour déterminer la valeur de la constante A , on utilise l'autre condition aux limites : la contrainte est nulle à la surface, $\sigma(z = 0, q) = 0$. On obtient ainsi $A = \eta_0 \frac{q^2 H(q)}{q^2 + \alpha^2}$. Soit pour la déformation :

$$\eta(z, q) = \eta_0 \left(\frac{q^2}{q^2 + \alpha^2} e^{iqz} + \frac{\alpha^2}{q^2 + \alpha^2} e^{-\alpha z} \right) H(q).$$

La déformation dans l'espace réel s'obtient par transformée de Fourier inverse de cette expression.

$$\eta(z,t) = \eta_0 v \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{q^2}{q^2 + \alpha^2} e^{iqz} + \frac{\alpha^2}{q^2 + \alpha^2} e^{-\alpha z} \right) H(q) e^{-iqvt} dq \quad (1.10)$$

Pour calculer cette transformée de Fourier, on utilise le théorème des résidus en prenant un contour d'intégration dépendant du signe de $z - vt$, on obtient ainsi

$$\eta(z,t) = \frac{\eta_0}{2} \left[(2 - e^{-\alpha vt}) e^{-\alpha z} - \text{sgn}(z - vt) e^{-\alpha|z - vt|} \right] \quad (1.11)$$

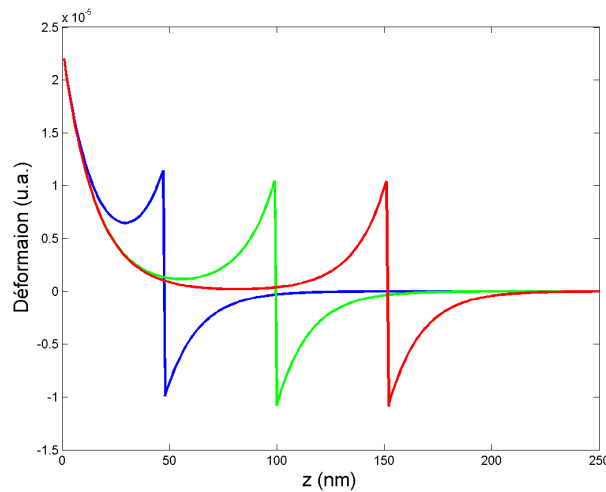


FIG. 1.2 – Profils de déformation suivant la profondeur dans le film mince à 3 instants successifs.

Si $\alpha vt \gg 1$, alors le premier terme de la déformation ne dépend plus que de z . Il s'agit de la dilatation statique induite par l'élévation de température, qui reste constante dans le temps puisque nous négligeons la diffusion thermique dans ce modèle. Le deuxième terme représente l'impulsion acoustique, qui se propage dans le film mince. Dans la pratique, un film mince est toujours déposé sur un substrat, l'impulsion est donc réfléchie à la surface de celui-ci avec un coefficient de réflexion acoustique $r_{ac} = \frac{Z_s - Z}{Z_s + Z}$ où Z et Z_s sont respectivement les impédances acoustiques du film et du substrat. Après un nouveau trajet à travers la couche mince, l'impulsion rejoint la surface où on peut observer un écho, qui est réfléchi avec un coefficient de réflexion de -1 et repart vers le substrat.

La déformation produite par l'écho acoustique doit donc refléter tout ceci. Ainsi, si on décale l'origine temporelle pour que $t = 0$ corresponde à l'arrivée du centre de l'écho sur la surface, elle s'écrit :

$$\eta(z,t) = \frac{\eta_0 r_{ac}}{2} \left[e^{-\alpha|z-vt|} \text{sgn}(z-vt) + e^{-\alpha|z+vt|} \text{sgn}(z+vt) \right]. \quad (1.12)$$

La déformation étant égale à la dérivée du déplacement par rapport à z , le déplacement à la surface de l'échantillon s'écrit

$$u(z=0,t) = \int_{-\infty}^0 \eta(z,t) dz = -\frac{\eta_0 r_{ac}}{\alpha} e^{-\alpha v|t|}. \quad (1.13)$$

La largeur à mi-hauteur est donnée par $t = \frac{2 \ln(2)}{\alpha v}$. Dans les métaux et les alliages, ce modèle prédit des largeurs d'impulsions de quelques picosecondes.

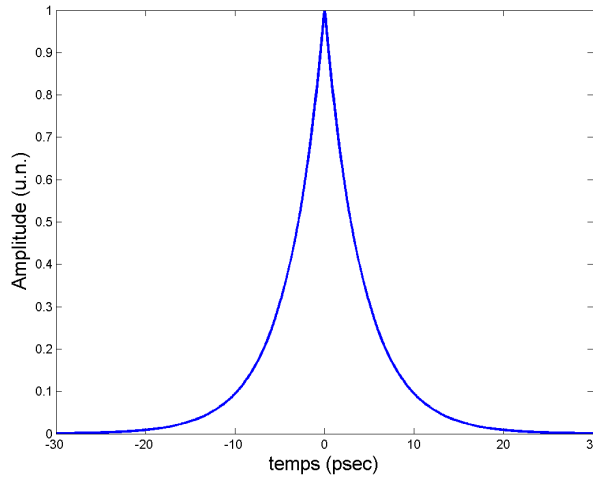


FIG. 1.3 – Déplacement $u(z=0,t)$ de la surface du film mince dû à l'écho acoustique.

1.2 Détection des impulsions acoustiques

Nous venons de voir comment engendrer des ultrasons dans une couche mince grâce à une impulsion laser. Nous allons maintenant étudier comment une impulsion laser peut également permettre de détecter des champs acoustiques à la surface d'un échantillon. Plusieurs facteurs interviennent dans la détection. En premier lieu, le déplacement de la surface induit une légère variation du trajet de l'impulsion laser. D'autre part, la présence d'un champ de déformation au sein du film modifie les coefficients diélectriques via l'effet photo-élastique. L'indice optique (ie la réflectivité) de l'échantillon est donc affecté.

1.2.1 Influence du déplacement de surface

Lorsque la surface n'est pas perturbée, si on a un champ électromagnétique incident E_i , le champ réfléchi est simplement donné par $E_{r_0} = r_0 E_i$. r_0 est le coefficient de réflexion optique entre l'air et le film, $r_0 = \frac{1-n}{1+n}$ avec n l'indice optique du film. Si la surface du film se déplace, alors le champ électromagnétique réfléchi subit un déphasage $\varphi = 2k_0 u(z=0, t)$, où k_0 est le vecteur d'onde électromagnétique dans le vide. Le coefficient de réflectivité de la couche mince, dont la surface est déplacée, est alors $r = r_0 e^{i\varphi}$. On peut développer ce coefficient au voisinage de zéro car les déplacements sont très faibles (de l'ordre du picomètre) par rapport à la longueur d'onde optique ($\varphi \ll 1$). On peut donc écrire $e^{i\varphi} = 1 + i\varphi$ et $r = r_0(1 + i\varphi)$. On en déduit que seule la partie imaginaire du changement relatif de réflectivité est affectée par le déplacement de la surface

$$\Im m \left(\frac{\Delta r}{r_0} \Big|_{depl} \right) = \varphi = 2k_0 u(z=0, t) = -\frac{\eta_0 r_{ac}}{n''} e^{-\alpha v |t|}. \quad (1.14)$$

1.2.2 Influence de l'effet photo-élastique

L'effet photo-élastique se traduit par la modification des coefficients diélectriques par le champ de déformation présent dans le matériau. Pour une déformation $\eta(z, t)$, les coefficients diélectriques sont modifiés d'une quantité faisant intervenir le tenseur photo-élastique (dit tenseur de Pockels)

$$\Delta \epsilon_{il} = -\epsilon_{ij} p_{jkmn} \epsilon_{kl} \eta_{mn}. \quad (1.15)$$

Seule la composante η_{33} est pertinente, puisqu'on considère un problème à une dimension selon la direction normale à la surface. De plus dans un matériau isotrope ou cubique de symétrie $m\bar{3}m$, le tenseur diélectrique est diagonal et on peut condenser la notation du tenseur de Pockels p_{ijkl} comme pour le tenseur d'élasticité, on a donc :

$$\Delta \epsilon_{11}(z, t) = \Delta \epsilon_{22}(z, t) = -\epsilon^2 p_{12} \eta(z, t) \quad (1.16)$$

où p_{12} est une composante du tenseur de photo-élasticité. En présence d'une perturbation $\Delta \epsilon(z, t)$, l'équation de propagation du champ électromagnétique à résoudre devient :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = (\epsilon + \Delta \epsilon(z, t)) \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} \quad (1.17)$$

Si le film n'est parcouru par aucune perturbation acoustique, alors la solution de l'équation (1.17) est donnée par $E_t(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_i(\Omega) e^{i(\Omega t - nk_0 z)} d\Omega$, où Ω est la pulsation du champ électromagnétique et $t = \frac{2}{1+n}$ est le coefficient de transmission à l'interface film/air. Etant donné l'écart de fréquence entre les ondes électromagnétiques et acoustiques, on peut se placer dans l'approximation quasi-statique. On considère donc une

tranche de film d'épaisseur dz avec un indice optique n modifié de Δn . Celle-ci est située à une profondeur z . On a exprimé le coefficient de réflectivité du film mince en sommant z sur l'épaisseur de la couche.

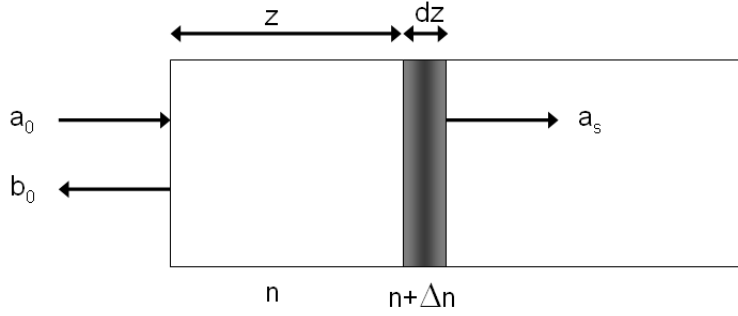


FIG. 1.4 – Diffusion d'un champ électromagnétique par une perturbation acoustique localisée en z .

Un champ électromagnétique traversant une interface est modifié du fait de la différence d'indice entre les milieux de chaque côté de l'interface. Les coefficients de réflexion et de transmission à l'interface sont donnés par

$$\begin{aligned} r_{01} &= \frac{n_g - n_d}{n_g + n_d} \\ t_{01} &= \frac{2n_g}{n_g + n_d}. \end{aligned} \quad (1.18)$$

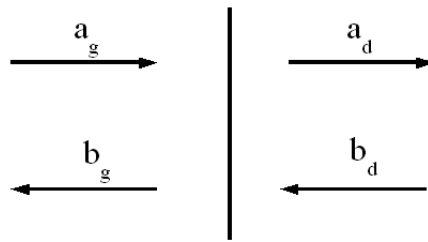


FIG. 1.5 – Passage d'une interface par un champ électromagnétique. Les indices "g" et "d" correspondent aux champs électriques à gauche et à droite de l'interface.

Le champ électrique s'écrit $\vec{E}(z) = (ae^{inkz} + be^{-inkz})\vec{e}_z$. Les champs électromagnétiques de part et d'autre de l'interface sont reliés par une matrice de passage d'interface.

$$\begin{pmatrix} a_g \\ b_g \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{gd}} \begin{pmatrix} 1 & r_{gd} \\ r_{gd} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_d \\ b_d \end{pmatrix} \quad (1.19)$$

La matrice de transfert pour un film d'épaisseur z et d'indice n s'écrit :

$$\begin{pmatrix} e^{-ink_0z} & 0 \\ 0 & e^{ink_0z} \end{pmatrix} \quad (1.20)$$

On peut voir sur la figure 1.4, que le champ électromagnétique traverse successivement une interface air/film, une couche d'épaisseur z et d'indice n , une interface entre une couche d'indice n et une autre d'indice $n + \Delta n$, une couche d'indice $n + \Delta n$, une interface entre une couche d'indice $n + \Delta n$ et le substrat supposé semi-infini, dont aucune onde électromagnétique ne revient. On peut décrire cette situation grâce à un produit de matrices en reliant le champ électromagnétique en surface et celui à l'interface film/substrat,

$$\begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{01}t_{12}t_{21}} \begin{pmatrix} 1 & r_{01} \\ r_{01} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-ink_0z} & 0 \\ 0 & e^{ink_0z} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & r_{12} \\ r_{12} & 1 \end{pmatrix} \\ \times \begin{pmatrix} e^{-i(n+\Delta n)k_0dz} & 0 \\ 0 & e^{i(n+\Delta n)k_0dz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & r_{21} \\ r_{21} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.21)$$

avec $r_{21} = \frac{\Delta n}{2n+\Delta n}$ et $\Delta n = \frac{\Delta \epsilon}{2n}$. La réflectivité $r(z)$ du film mince est donnée par b_0/a_0 , on en déduit :

$$r(z) = \frac{(r_{01}e^{-ink_0z} - e^{ink_0z}r_{21})e^{-i(n+\Delta n)k_0dz} + (e^{ink_0z} - r_{01}e^{-ink_0z}r_{21})e^{i(n+\Delta n)k_0dz}r_{21}}{(e^{-ink_0z} - r_{01}e^{ink_0z}r_{21})e^{-i(n+\Delta n)k_0dz} + (r_{01}e^{ink_0z} - e^{-ink_0z}r_{21})e^{i(n+\Delta n)k_0dz}r_{21}} \quad (1.22)$$

Un développement limité au premier ordre suivant Δn et dz conduit à l'expression de $r(z)$, et on obtient :

$$r(z, t) = r_{01} + ik_0(1 + r_{01}^2)e^{2ik_0nz}\Delta n(z, t)dz \quad (1.23)$$

La variation relative de réflectivité $\Delta r/r$ est donc donnée par

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{r(z, t) - r_{01}}{r_{01}} = ik_0 \frac{(1 + r_{01}^2)}{r_{01}} e^{2ik_0nz} \Delta n(z, t) dz$$

Pour connaître l'influence de l'effet photo-élastique sur le changement relatif de réflectivité, il faut intégrer la déformation sur la totalité de l'épaisseur de l'échantillon. La contribution de l'effet photo-élastique s'écrit donc à l'instant t :

$$\left. \frac{\Delta r(t)}{r_0} \right|_{phot.} = ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1 - n^2} \int_0^{+\infty} dz \eta(z, t) e^{2ik_0nz}. \quad (1.24)$$

1.2.3 Somme des deux contributions

Le changement de réflectivité induit par un champ acoustique $\eta(z,t)$ en tenant compte de l'effet photo-élastique et du déplacement de la surface a donc pour expression la somme des contributions que nous venons de calculer :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = 2ik_0 u(0,t) + ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1-n^2} \int_0^{+\infty} \eta(z,t) e^{2ik_0 n z} dz. \quad (1.25)$$

Dans la pratique, on mesure une grandeur complexe $\Delta r(t)/r_0$ dont l'amplitude est de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-7} . On note respectivement les parties réelles et imaginaires ρ et ϕ

$$\frac{\Delta r(t)}{r} = \rho + i\phi. \quad (1.26)$$

Cette équation permet de réaliser des simulations numériques de propagation de la déformation acoustique dans un film mince. La figure 1.6 représente les variations relatives de réflectivité pour un film d'aluminium de 250 nm d'épaisseur déposé sur un substrat de silicium. Les caractéristiques physiques de l'aluminium et du silicium peuvent être consultées dans l'annexe B.

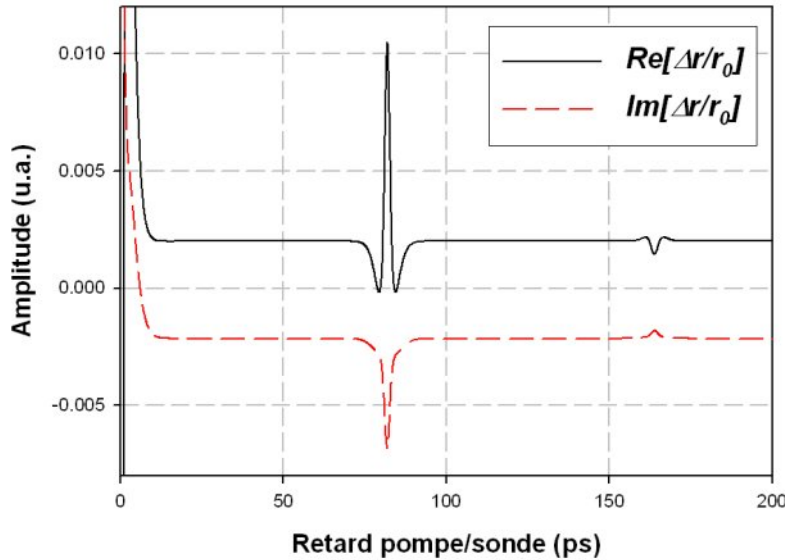


FIG. 1.6 – Parties réelles et imaginaires de $\Delta r(t)/r_0$ pour un film d'aluminium de 250 nm d'épaisseur sur un substrat de silicium.

Ici, les échos acoustiques observés changent de signe car le coefficient de réflexion acoustique entre l'air et l'aluminium est égal à -1 et comme l'aluminium a une impédance acoustique plus faible que le silicium, l'écho ne rechange pas de signe à la réflexion sur

l'interface film/substrat. De plus, les impédances acoustiques de ces matériaux sont très proches, la plus grande partie de l'énergie est donc transmise dans le substrat, c'est pourquoi l'amplitude du second écho est bien moindre que celle du premier.

1.3 Conclusion

Nous venons de présenter un modèle de base très simple permettant d'appréhender les mécanismes qui entrent en jeu lors de l'excitation et la détection d'ondes élastiques dans les métaux. Ainsi, il est possible de déterminer le changement relatif de réflectivité en fonction du temps pour un film d'épaisseur donnée. Il faut cependant garder à l'esprit les limitations du modèle ; en effet le modèle ne prend pas en compte les contributions des diffusions thermiques et électroniques. Nonobstant la simplicité du modèle, il permet de mettre en évidence les contributions en amplitude ET en phase de l'impulsion acoustique à la variation relative de réflectivité du film métallique.

Chapitre 2

Dispositifs expérimentaux

Sommaire

2.1 Principe général	44
2.2 Matériel utilisé	45
2.2.1 Le laser	45
2.2.2 La ligne à retard	46
2.2.3 La détection synchrone	46
2.2.4 Modulation acousto-optique	46
2.3 Réflectométrie	47
2.4 Détection interférométrique	49
2.4.1 L'interféromètre de Mach-Zehnder	50
2.4.2 L'interféromètre de Sagnac	53
2.5 Conclusion	54

Nous allons détailler ici les différents montages expérimentaux comme la modulation, la ligne à retard et les montages optiques que nous avons utilisés au cours de ce travail. En particulier, nous expliciterons le fonctionnement et l'apport des interféromètres que nous avons utilisés.

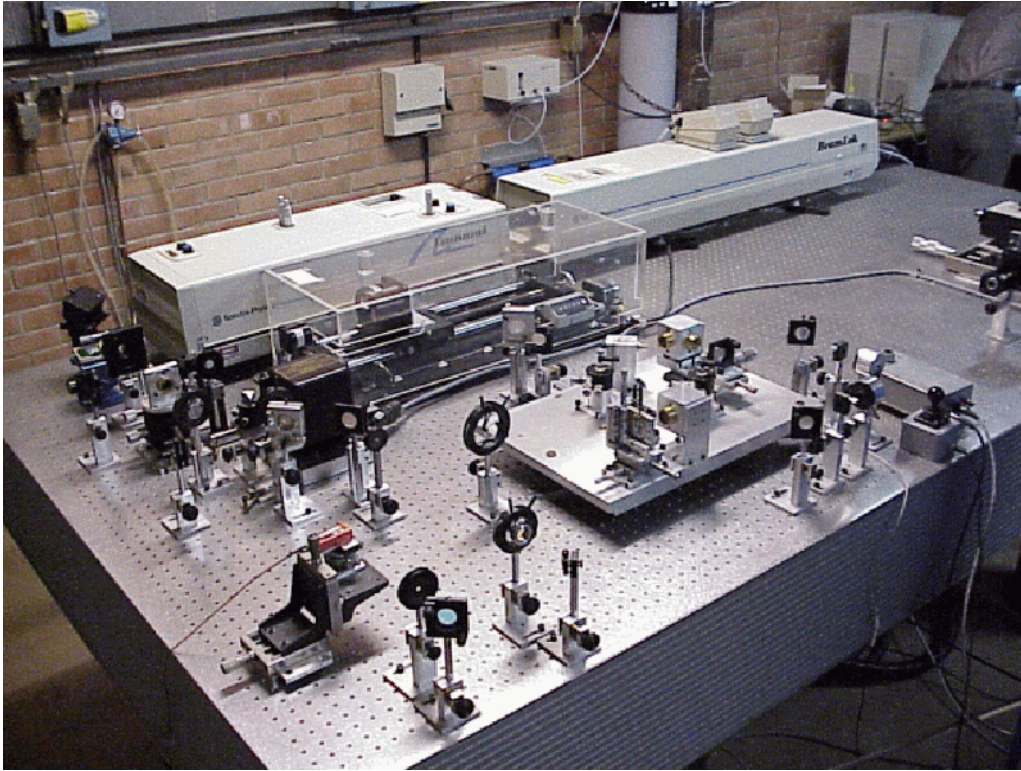


FIG. 2.1 – Dispositif expérimental pour l'acoustique picoseconde.

2.1 Principe général

Le principe général des expériences d'acoustique picoseconde repose sur la méthode dite "pompe-sonde". Il s'agit de focaliser deux impulsions sur un échantillon, l'une d'entre elles étant retardée par rapport à l'autre. La première impulsion est appelée "impulsion pompe" ou "pompe" et sert à engendrer les phénomènes que nous voulons étudier ; la seconde est appelée "impulsion sonde" ou "sonde", elle sert à observer les effets créés par la pompe, à les sonder.

La pompe et la sonde sont issues de la même impulsion laser. Celle-ci est séparée en deux dès la sortie du laser grâce à un cube séparateur. On peut contrôler la répartition de l'énergie entre la pompe et la sonde avec une lame demi-onde ($\lambda/2$) placée juste avant le cube séparateur. En général, on répartit l'énergie de façon à ce que l'impulsion sonde soit beaucoup moins puissante que la pompe, de façon à perturber le moins possible

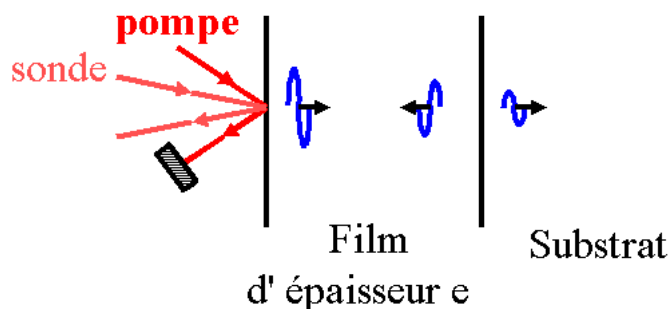


FIG. 2.2 – Principe d’une expérience d’acoustique picoseconde.

les phénomènes que l’on veut détecter. Pour observer les phénomènes acoustiques, on observe les variations de réflectivité de l’échantillon. Ces variations sont très faibles, inférieure à 10^{-3} . L’emploi d’une détection synchrone amplificatrice permet d’extraire le signal autour de la fréquence de modulation et d’atteindre la sensibilité nécessaire à nos expériences. La modulation du faisceau pompe est assurée par un modulateur acousto-optique. La figure 2.1 présente une photographie du montage expérimental, où l’on peut voir tous les instruments nécessaires, à l’exception de la détection synchrone.

Nous allons maintenant détailler le fonctionnement et le principe de chacun des instruments. Les premières expériences d’acoustique picoseconde ont été menées par Humphrey J. Maris à Brown University en 1984 [5]. Il a montré que l’on pouvait engendrer et détecter des phonons grâce à un laser impulsif [6]. Cette méthode est maintenant appelée méthode pompe-sonde en réflectométrie, car avec de telles expériences, on peut mesurer la variation de réflectivité d’un échantillon parcouru par une onde acoustique. Ces variations étant extrêmement faibles, il arrive qu’on ne soit pas capable de détecter une onde qui est pourtant bien présente. En 1996, Bernard Perrin a proposé une méthode de détection interférométrique [8,9], qui permet d’être sensible aux déplacements de la surface de l’échantillon étudié. On peut ainsi déterminer la partie imaginaire de la variation relative de réflectivité, qui — comme nous l’avons vu — est proportionnelle au déplacement de la surface.

2.2 Matériel utilisé

2.2.1 Le laser

Le Laser utilisé pour nos expériences est composé de deux parties. Un laser Argon ionisé de 10 Watts pompe un oscillateur Titane-saphir (modèle Tsunami de Spectra Physics [61]) délivrant des impulsions d’une durée de 130 fs avec un taux de répétition

de 82 MHz. Il fonctionne en modes bloqués entre 720 et 850 nm de longueur d'onde (ou entre 1,46 eV et 1,72 eV), soit dans le proche infrarouge. Pour la majorité de nos expériences, nous avons utilisé une longueur d'onde de 750 nm. Le diamètre de la tâche laser est de 2 mm en sortie avec une divergence inférieure à 0,6 mrad. La puissance mesurée au niveau de l'échantillon est d'environ 8 nJ par impulsion [37]. Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon avec des taches de 30 μm dans toutes les expériences.

2.2.2 La ligne à retard

Pour faire une expérience pompe/sonde, nous avons besoin de retarder l'une des impulsions par rapport à l'autre ; ceci se fait simplement en allongeant le trajet de l'impulsion que l'on veut retarder. On dispose de deux lignes à retards distinctes suivant le type d'expérience que l'on veut mener. Chacune est constituée d'un coin de cube qu'il est possible de translater et qui permet d'allonger le trajet de l'impulsion laser.

La première ligne à retard est à 4 passages (fabriquée par la société SOPRA [62]) et dispose d'une course de 35 cm permettant de retarder l'impulsion de 4,5 nanosecondes, mais sa vitesse de déplacement est faible ($< 100\text{ps/s}$). La seconde ligne à retard (fabriquée par la société ODL [63]) est un déplacement galvanométrique avec une course de 2.5 cm et permet, sur un aller retour, de faire des retards jusqu'à 150 ps. Sa fréquence de balayage de 30 Hz permet des vitesses de déplacement atteignant 4500ps/s . Compte tenu du spectre de bruit dans notre expérience, l'utilisation du déplacement galvanométrique est préférable si la plage temporelle à explorer n'excède pas 150 ps.

2.2.3 La détection synchrone

Comme cela a été mentionné plus haut, les variations de réflectivité, que l'on cherche à détecter sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-7} . Elles sont donc noyées dans le bruit. La détection synchrone permet d'éliminer le bruit autour de la fréquence de modulation en filtrant le signal reçu de façon à ne garder que la composante à la fréquence qui nous intéresse (la fréquence de modulation). Notre système de détection synchrone est à double étage : un translateur Palo Alto PAR 100 permet de travailler entre 100 kHz et 12,5 MHz et donne en sortie un signal de quelques dizaines de kHz traité par la détection synchrone (Stanford SR 830 de 1993) dont la bande passante est limitée à 100 kHz.

2.2.4 Modulation acousto-optique

Le modulateur acousto-optique utilisé sur le faisceau pompe est composé d'un cristal de paratellurite (TeO_2) dans lequel une onde ultrasonore de 200 MHz se propage .

Celle-ci est modulée par un signal carré issu de la détection synchrone. La modulation ainsi créée sert à séparer des trains d'impulsions. La fréquence de modulation utilisée

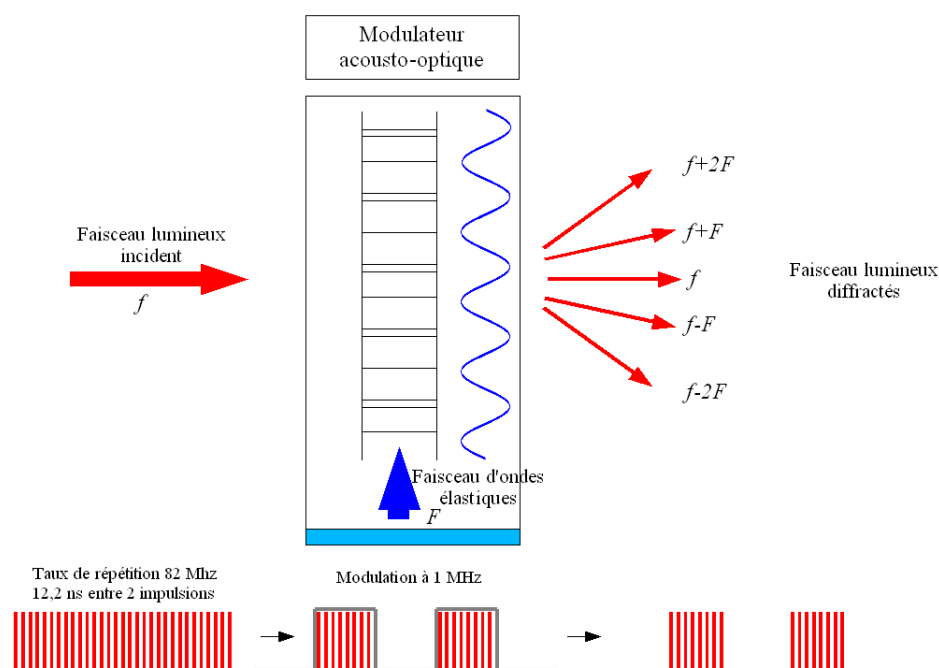


FIG. 2.3 – Modulation du train d'impulsion à 1 MHz.

est issue de l'équilibre entre deux contraintes expérimentales et on peut être amené à la modifier en fonction des besoins particuliers d'une expérience donnée. En effet, il faut composer entre le bruit induit par la modulation et le rendement acousto-optique. La figure 2.3 montre le principe de la modulation des impulsions pompe dont le taux de répétition à la sortie du laser est de 82 MHz ; les impulsions sont donc séparées de 12,2 ns. À la sortie du modulateur acousto-optique, un diaphragme ne laisse passer que l'ordre 1 du signal diffracté. Le faisceau derrière celui-ci est donc modulé à 100%.

2.3 Réflectométrie

Le faisceau pompe modulé avec le modulateur acousto-optique est envoyé directement sur l'échantillon et sa réflexion est stoppée par un masque. Quant à la sonde, elle est retardée grâce à une ligne à retard et arrive ainsi sur l'échantillon après un délai que l'on peut contrôler. Le signal réfléchi est envoyé sur une photodiode reliée à la détection synchrone, qui va extraire le signal modulé du bruit et un ordinateur enregistre le signal final. Pour procéder à une mesure en réflectométrie, on doit superposer le mieux possible les taches laser issues de chacune des impulsions. Pour ce faire, on s'efforce d'obtenir des trajets parfaitement parallèles et on focalise grâce à une seule lentille afin d'obtenir une bonne coïncidence spatiale à son foyer sur la surface de l'échantillon.

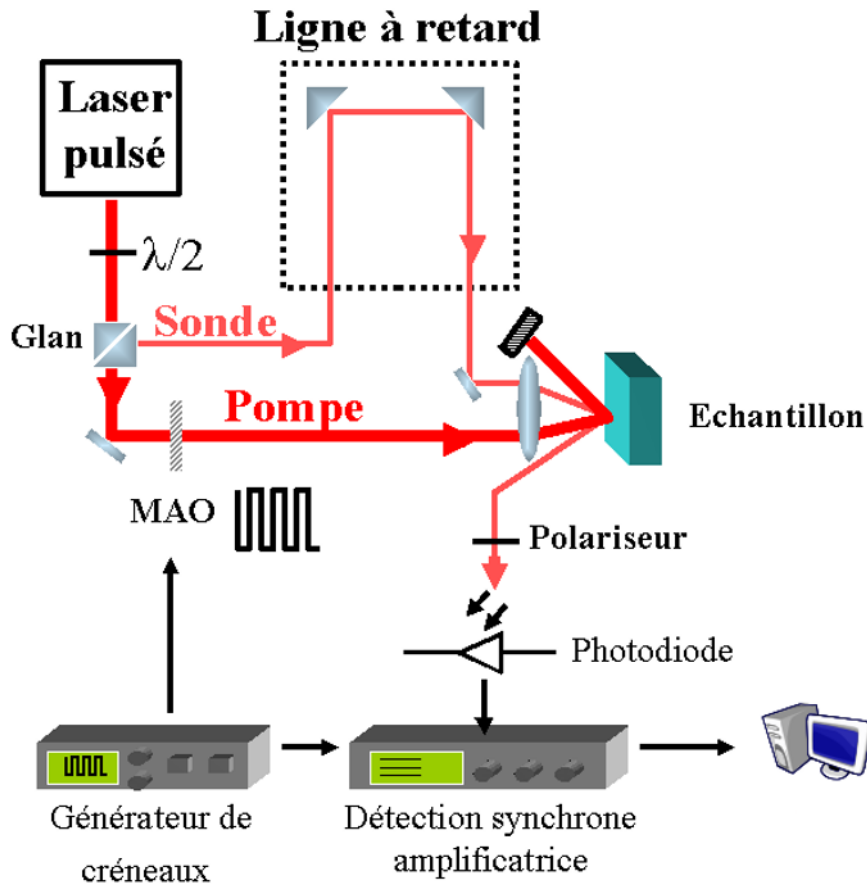


FIG. 2.4 – Mesure en réflectométrie.

Le champ électromagnétique réfléchi peut s'écrire (cf. §1.2) :

$$E_r(t) = r_0(1 + \rho(t) + i\varphi(t))E(t). \quad (2.1)$$

En pratique, la diode que l'on utilise est sensible à l'intensité du signal reçu, c'est à dire à $|E_r|^2$. La détection synchrone permet d'extraire la composante modulée à la fréquence F qui est proportionnelle à $\rho(t)$.

$$I_{mod}(t) \simeq E^2(t)\rho(t).$$

Il s'en suit que la variation relative de $r(t)$ l'est également

$$\left. \frac{\Delta r(t)}{r_0} \right|_{reflecto} = \rho(t). \quad (2.2)$$

La figure 2.5 montre une mesure en réflectométrie sur un film d'alliage Molybdène/Nickel de 184,6 nanomètres d'épaisseur. La variation relative de réflectivité est portée en ordonnée et le retard pompe/sonde en abscisse. On observe tout d'abord un

fond continu non nul correspondant à l'échauffement moyen car l'échantillon ne reçoit pas des impulsions isolées mais des trains d'impulsions. Lorsque la pompe et la sonde arrivent en même temps (retard nul), un pic apparaît : c'est la conséquence d'une forte excitation du gaz d'électrons qui se thermalise. Dans les métaux, il refroidit en quelques centaines de femtosecondes et cède son énergie au réseau. On voit ensuite une lente décroissance qui correspond au refroidissement du réseau qui peut s'étaler sur plusieurs centaines de picosecondes. Enfin, on constate de petites perturbations à intervalles de temps réguliers : ce sont les échos acoustiques séparés par le temps d'un aller/retour dans le film *Mo/Ni*.

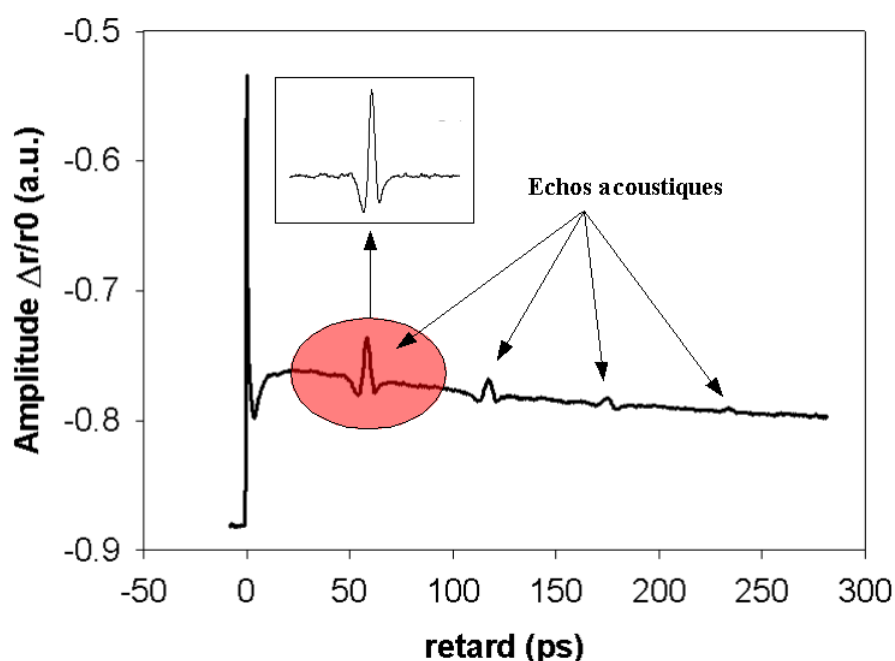


FIG. 2.5 – Mesure en réflectométrie dans un alliage de Mo/Ni.

2.4 Détection interférométrique

Avec un dispositif comme celui de la réflectométrie, on ne peut mesurer que la partie réelle du changement relatif de réflectivité ; pourtant il est également possible d'obtenir la partie imaginaire grâce à des mesures interférométriques. En effet, nous avons montré dans le chapitre précédent que la partie imaginaire du changement relatif de réflectivité est notamment liée au déplacement des interfaces (eq. 1.25), c'est pourquoi il est nécessaire de faire intervenir la différence de marche entre deux faisceaux pour déterminer cette partie imaginaire. Au cours de nos expériences, nous avons utilisé principalement deux interféromètres :

- l'interféromètre de Mach-Zehnder ;
- l'interféromètre de Sagnac.

Nous allons détailler le fonctionnement de chacun d'eux.

2.4.1 L'interféromètre de Mach-Zehnder

L'interféromètre de Mach-Zehnder utilise deux trajets (bras de l'interféromètre) symétriques. Le faisceau sonde incident arrive sur un cube séparateur non polarisant, ce qui permet d'avoir un bras se réfléchissant sur l'échantillon et un autre sur un miroir de référence. Le miroir de référence est monté sur une cale piézoélectrique grâce à laquelle on peut introduire un déphasage arbitraire entre les deux bras. Un asservissement permet de travailler avec un déphasage de $\pm\pi/2$. Le schéma du dispositif expérimental est présenté sur la figure 2.6.

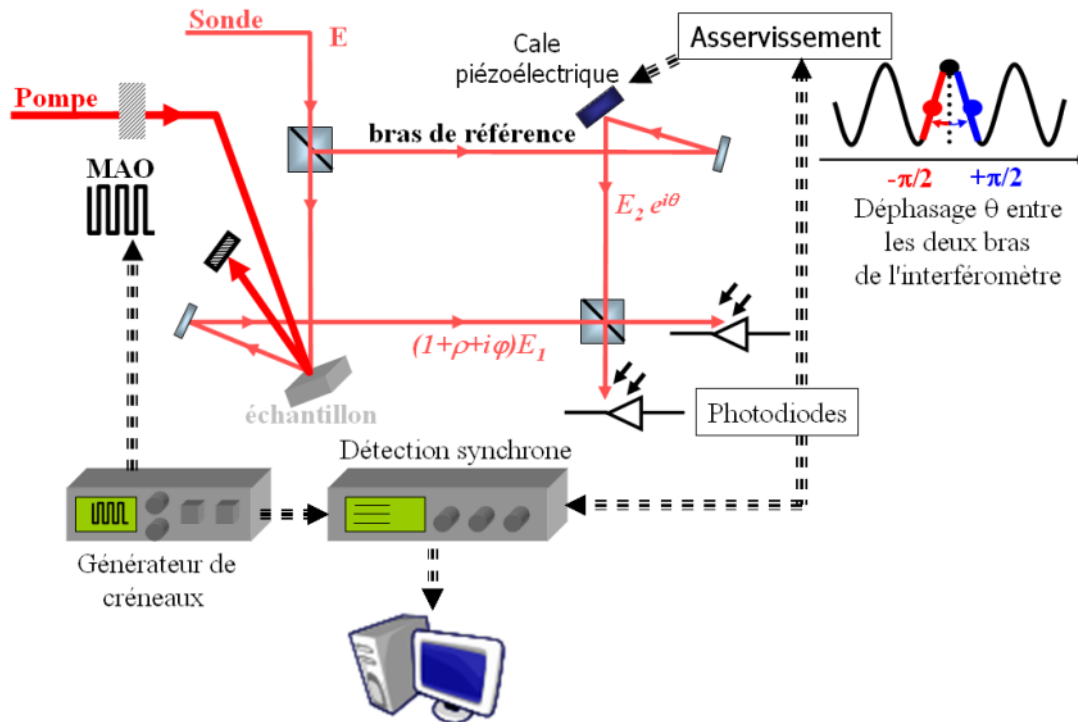


FIG. 2.6 – Dispositif expérimental de l'interféromètre de Mach-Zehnder.

Nous avons vu plus haut que le champ réfléchi par l'échantillon lorsqu'il est soumis à un champ de déformation est $(1 + \rho(t) + i\varphi(t))E$ avec ρ et φ les parties réelles et imaginaires du changement relatif de réflectivité. On appelle θ le déphasage arbitraire introduit grâce à la cale piézoélectrique, les champs arrivant sur le cube séparateur placé devant les diodes peuvent être exprimés simplement. Pour simplifier les calculs, on utilise un schéma simplifié de l'interféromètre de Mach-Zehnder (figure 2.7) qui ne

change absolument pas la problématique mais permet d'alléger les calculs. Ainsi, si on adopte les notations suivantes :

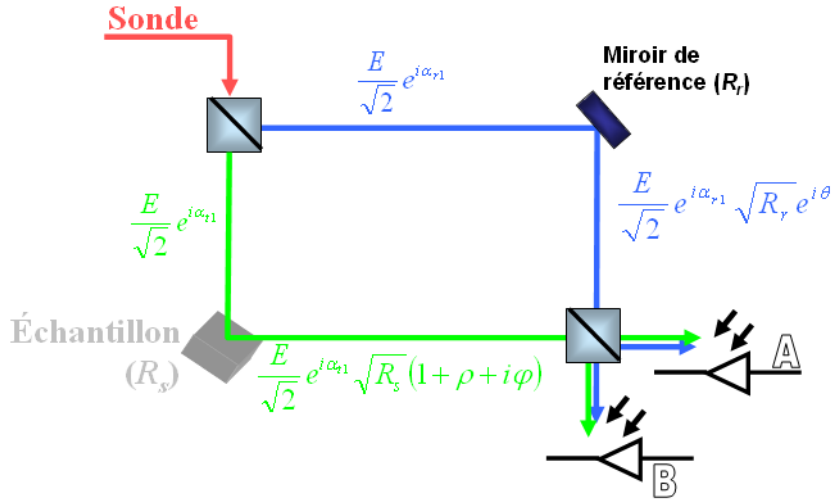


FIG. 2.7 – Principe de l'interféromètre de Mach-Zehnder simplifié.

- $\alpha_{r1}, \alpha_{r2}, \alpha_{t1}, \alpha_{t2}$: déphasage induits par les cubes 1 et 2 resp. pour la réflexion et la transmission ;
- θ : différence de marche ;
- I : Intensité en entrée de l'interféromètre ;
- R_s, R_r : Réflectivités de l'échantillon (s) et du miroir de référence (r) ;
- ρ, ϕ : changements d'amplitude et de phase induits par l'échantillon ;

alors, on peut écrire les champs réfléchis par le miroir de référence (la cale piézoélectrique) E_r et par l'échantillon E_s :

$$\begin{aligned} E_s &= \frac{E}{\sqrt{2}} e^{i\alpha_{r1}} \sqrt{R_s} (1 + \rho + i\phi) \\ E_r &= \frac{E}{\sqrt{2}} e^{i\alpha_{r1}} \sqrt{R_r} e^{i\theta} \end{aligned} \quad (2.3)$$

À la sortie du second cube séparateur, les faisceaux issus de la cale piézoélectrique et de l'échantillon sont mélangés et interfèrent. Les signaux recueillis sur les diodes A et B s'écrivent :

$$\begin{aligned} S_A &= \frac{1}{2} |E_s e^{i\alpha_{t2}} + E_r e^{i\alpha_{t2}}|^2 \\ S_B &= \frac{1}{2} |E_s e^{i\alpha_{r2}} + E_r e^{i\alpha_{r2}}|^2 \end{aligned} \quad (2.4)$$

Soient

$$\begin{aligned}
S_A &= \frac{I}{2} \left[\frac{R_r + R_s}{2} + \rho R_s + (1 + \rho) \sqrt{R_s R_r} \cos(\alpha_{t1} + \alpha_{t2} - \alpha_{r1} - \alpha_{r2} - \theta) \right. \\
&\quad \left. - \varphi \sqrt{R_s R_r} \sin(\alpha_{t1} + \alpha_{t2} - \alpha_{r1} - \alpha_{r2} - \theta) \right] \\
S_B &= \frac{I}{2} \left[\frac{R_r + R_s}{2} + \rho R_s + (1 + \rho) \sqrt{R_s R_r} \cos(\alpha_{t1} - \alpha_{t2} - \alpha_{r1} + \alpha_{r2} - \theta) \right. \\
&\quad \left. - \varphi \sqrt{R_s R_r} \sin(\alpha_{t1} - \alpha_{t2} - \alpha_{r1} + \alpha_{r2} - \theta) \right] \quad (2.5)
\end{aligned}$$

La conservation de l'énergie impose que la somme des intensités reçues sur les diodes soit égale à l'intensité à l'entrée de l'interféromètre, $S_A + S_B = I$. Ainsi pour simplifier l'écriture, on suppose que les miroirs et l'échantillons ont des réflectivités parfaites ($R_r = R_s = 1$) et on obtient :

$$S_A + S_B = \frac{I}{2} [2 + \cos(\alpha_{t1} - \alpha_{t2} - \alpha_{r1} + \alpha_{r2} - \theta) + \cos(\alpha_{t1} + \alpha_{t2} - \alpha_{r1} - \alpha_{r2} - \theta)] \quad (2.6)$$

Il en découle que

$$\cos(\alpha_{t1} - \alpha_{t2} - \alpha_{r1} + \alpha_{r2} - \theta) = -\cos(\alpha_{t1} + \alpha_{t2} - \alpha_{r1} - \alpha_{r2} - \theta)$$

soit l'égalité

$$\alpha_{t1} - \alpha_{t2} - \alpha_{r1} + \alpha_{r2} - \theta = \alpha_{t1} + \alpha_{t2} - \alpha_{r1} - \alpha_{r2} - \theta - \pi = \Phi$$

Ceci signifie que les signaux sur les diodes sont complémentaires. Lorsque le signal sur une diode est maximal, il est minimal sur l'autre et vice-versa. Les composantes des signaux S_A et S_B modulées à la fréquence F sont :

$$\begin{aligned}
S_A^{(m)} &= \frac{I}{2} [\rho R_s + \rho \sqrt{R_s R_r} \cos \Phi + \varphi \sqrt{R_s R_r} \sin(\Phi)] \\
S_B^{(m)} &= \frac{I}{2} [\rho R_s - \rho \sqrt{R_s R_r} \cos \Phi - \varphi \sqrt{R_s R_r} \sin(\Phi)]. \quad (2.7)
\end{aligned}$$

Grâce à un asservissement, on réinjecte à tout instant la quantité θ nécessaire pour que Φ soit toujours égal à $\pm \frac{\pi}{2}$ et comme les signaux sont complémentaires, on peut obtenir des mesures proportionnelles aux parties réelles $\rho(t)$ et imaginaires $\varphi(t)$ de $\Delta r(t)/r_0$ en prenant la demi-somme et la demi-différence des signaux enregistrés :

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} (S_A^{(m)} + S_B^{(m)}) &= R_s I \times \rho(t) \\
\frac{1}{2} (S_A^{(m)} - S_B^{(m)}) &= I \sqrt{R_r R_s} \times \varphi(t) \quad (2.8)
\end{aligned}$$

Avec ce montage, on peut noter qu'il suffit de bloquer le bras de référence pour obtenir directement un signal de réflectométrie (proportionnel à $\rho(t)$).

2.4.2 L'interféromètre de Sagnac

Avec l'interféromètre de Mach-Zehnder, on fait interférer un faisceau qui s'est réfléchi sur l'échantillon (portant la mesure) avec un faisceau de référence. Les chemins optiques des deux faisceaux sont symétriques. Dans le cas de l'interféromètre de Sagnac, les faisceaux sondes parcourent une boucle suivant deux directions opposées et l'échantillon est placé sur cette boucle en position non symétrique. Contrairement à l'interféromètre de Mach-Zehnder, les deux faisceaux portent la mesure mais à des instants différents. Le principe de l'interféromètre de Sagnac repose donc sur l'asymétrie des chemins optiques et sur le jeu des polarisations. La figure 2.8 donne un aperçu du montage expérimental de cet interféromètre.

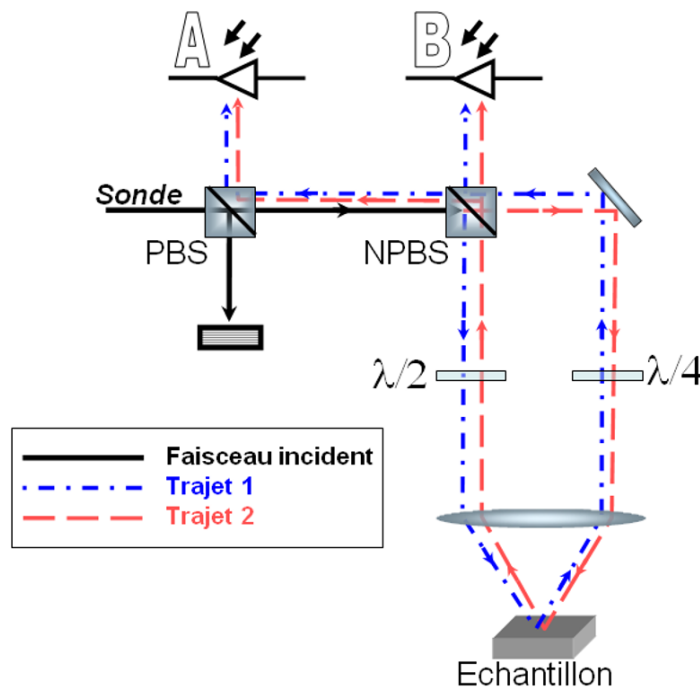


FIG. 2.8 – Interféromètre de Sagnac. Les trajets des bras de l'interféromètre ont été décalés pour plus de clarté, mais en réalité, ils sont confondus.

On compare ainsi deux faisceaux sondes qui ont été réfléchis (ou transmis) par le même point de l'échantillon à deux instants différents t et $t + \tau_s$ par rapport à l'impulsion pompe mais qui ont par ailleurs suivi exactement le même trajet. Cet aspect assure à ce type de montage une stabilité remarquable. Par ailleurs, on introduit une lame demi-onde et une lame quart-d'onde sur le trajet. La lame demi-onde a ses axes à 45° de la polarisation du faisceau sonde; la lame quart-d'onde a l'un de ses axes parallèle ou perpendiculaire à la polarisation du faisceau sonde. Ainsi, l'un des faisceaux du

Sagnac traverse d'abord la lame 1/4 d'onde avec sa polarisation suivant l'axe lent (ou rapide) puis passe par la lame 1/2 onde (sa polarisation tourne donc de 90°). L'autre faisceau du Sagnac passe d'abord par la lame 1/2 onde puis passe par la 1/4 d'onde suivant son axe rapide (ou lent). De cette façon, les faisceaux qui se propagent dans cette boucle en sens opposés se trouvent déphasés de $\pm\pi/2$. Par ailleurs, par le jeu des cubes séparateurs (polarisant et non polarisant), on recueille sur les diodes A et B des signaux complémentaires. Les intensités reçues sur les diodes A et B sont donc données par :

$$\begin{aligned} I_A &= [\rho(t) + \rho(t + \tau)] \pm [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)] \\ I_B &= [\rho(t) + \rho(t + \tau)] \mp [\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Une seule mesure permet d'obtenir les parties réelles $2[\rho(t + \tau) + \rho(t)]$ et imaginaires $2[\varphi(t + \tau) - \varphi(t)]$ en ajoutant ou soustrayant les signaux issus des deux diodes.

2.5 Conclusion

Les dispositifs expérimentaux que l'on utilise en acoustique picoseconde sont traditionnellement basé sur la méthode optique pompe-sonde combinée à une ligne à retard optique qui permet de venir sonder les effets engendrés par l'impulsion pompe avec un retard contrôlé grâce à la ligne à retard. La plupart des groupes travaillant sur l'acoustique picoseconde procède à des mesures en réflectométrie. L'information recueillie ne dépend alors que de l'effet photoélastique et seule la partie réelle de $\Delta r/r_0$ est détectée. L'utilisation d'une sonde interférométrique permet d'accéder à la partie imaginaire de

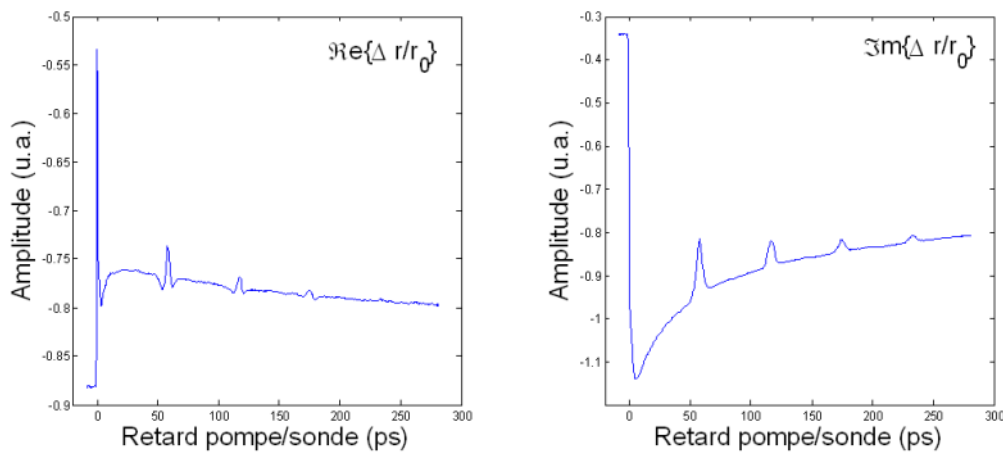


FIG. 2.9 – Mesures des parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0(t)$ avec un interféromètre de Mach-Zehnder sur un film d'alliage $Mo_{0.84}Ni_{0.16}$ de 184 nm d'épaisseur.

$\Delta r/r_0$, car le déplacement des interfaces n'affecte que la partie imaginaire et non la partie réelle. La figure 2.9 présente les signaux enregistrés à l'aide d'un interféromètre de

Mach-Zehnder sur un film d'alliage $Mo_{.84}Ni_{.16}$ de 184 nm d'épaisseur. On voit que l'on obtient à la fois (avec deux mesures) les parties réelles et imaginaires du changement relatif de réflectivité.

Deuxième partie

Étude de systèmes multicouches

Chapitre 3

Vers les systèmes multicouches

Sommaire

3.1	Rappel sur le problème à une couche	62
3.1.1	Champ acoustique	62
3.1.2	Relation entre les champs acoustiques de part et d'autre d'un film	64
3.1.3	Passage au multicouches : Formalisme de matrice de transfert	66
3.2	Systèmes multicouches	67
3.2.1	Matrice de transfert acoustique	67
3.2.2	Matrice de transfert électromagnétique	69
3.3	Détection dans un système multicouches	71
3.3.1	Contribution de l'effet photoélastique	71
3.3.2	Contribution du déplacement des interfaces	72
3.3.3	Changement relatif de réflectivité : Somme des deux contributions	73
3.4	Conclusion	75

Dans le cadre de ce travail, l'étude de structures métalliques multicouches est motivée par l'excitation de modes de haute fréquence. La réponse élastique des structures multicouches métalliques a déjà été étudiée de différentes façons [18, 19, 24] mais ce qui motive généralement la compréhension de leur comportement élastique est la possibilité d'exciter des modes de fréquences élevées grâce à des empilements de couches métalliques [25–27] ou semiconductrices [28–30]. En 1994, Wei CHEN *et al.* [25] ont analysé des résultats expérimentaux dans des multicouches métalliques à l'aide de matrice de transfert pour exprimer les champs acoustiques au sein de couches successives. Puis, Bernard PERRIN *et al.* a proposé une utilisation systématique du formalisme de matrice de transfert pour décrire les champs électromagnétiques et acoustiques dans chacune des couches afin de décrire les champs acoustiques excités et les mécanismes de détection de ces champs [26, 27]. Ce travail a été développé et utilisé largement lors de la thèse de Clément ROSSIGNOL [42]. Dans ce chapitre, on se propose de détailler la façon dont les phonons sont engendrés et détectés dans des structures multicouches ; nous traiterons le problème dans le cas général en considérant que l'empilement est constitué d'un nombre quelconque de couches métalliques. Ce travail a été abordé à plusieurs reprises dans le laboratoire pour les aspects thermiques [37, 38] et élastiques [42]. Nous verrons également comment expliciter les champs acoustiques au sein même de la structure, à chaque interface.

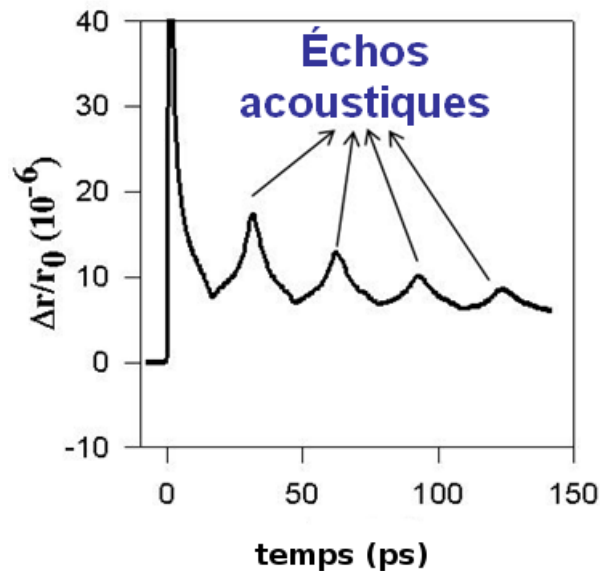


FIG. 3.1 – Variation de réflectivité pour une couche de tungstène de 86 nm d'épaisseur sur un substrat de silicium.

Lorsqu'on engendre des ondes ultrasonores dans une couche assez épaisse (quelques dizaines de nanomètres) les impulsions acoustiques font des aller-retours et donnent à la

surface des échos à intervalles de temps réguliers de quelques dizaines de picosecondes (cf. figure 3.1). Lorsque l'épaisseur de la couche diminue, alors le temps de vol dans le film diminue aussi, les échos acoustiques se chevauchent, entraînant ainsi des phénomènes d'interférence. Seules les fréquences de résonance du film subsistent ainsi qu'on peut le voir sur la figure 3.2 où la résonance à 0,45 THz d'un film de 6 nm de tungstène déposé sur une couche de magnésium apparaît très clairement. Cependant, on ne peut utiliser une couche unique pour exciter des ondes ultrasonores de fréquences très élevées car, il faudrait alors utiliser des films de quelques nanomètres d'épaisseurs or la longueur de pénétration optique dans les métaux est typiquement de 10 à 30 nm ; on aurait alors des effets supplémentaires dus à l'excitation photothermique dans le matériau situé en-dessous.

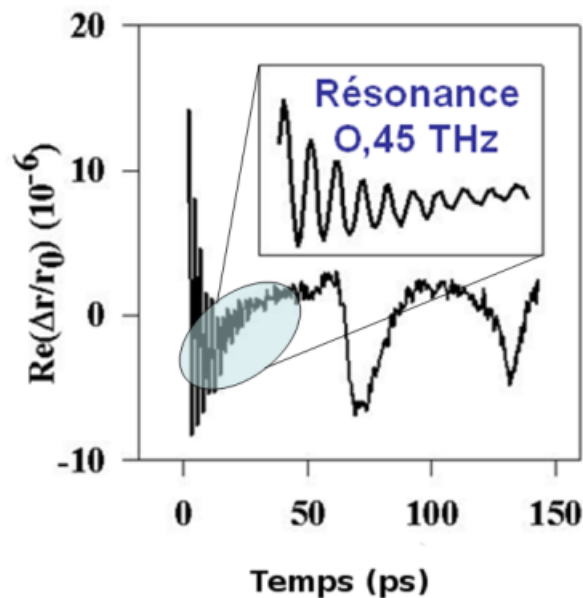


FIG. 3.2 – Variation de réflectivité pour un système multicouche $W_{6\text{nm}}/Mg_{190\text{nm}}/W_{6\text{nm}}$ déposé sur un substrat de silicium.

Si on considère un empilement quelconque, les résonances de chaque couche interfèrent, des échos acoustiques issus de toutes les interfaces apparaissent ; tous ces effets concourent à la modification de la variation relative de réflectivité.

Les propagations acoustiques et la pénétration de la lumière dans l'empilement sont également examinées séparément. Pour résoudre le problème, il est nécessaire de se placer successivement dans chaque couche et d'y résoudre un problème d'ondes stationnaires en tenant compte des conditions aux limites. En effet, l'absorption photothermique de l'impulsion laser dans la ou les première(s) couche(s) de l'empilement conduit à l'excitation

de champs acoustiques se propageant dans ces couches. La résolution en ondes stationnaires dans ces couches fixe des conditions aux limites pour les couches sous-jacentes. Chaque couche contribue ainsi au terme source pour les couches suivantes. On choisira donc un formalisme matriciel [25, 29] permettant de relier les grandeurs acoustiques ou électromagnétiques entre elles. On choisit de se baser sur le déplacement u et la contrainte σ ; ces grandeurs acoustiques étant continues aux interfaces, elles permettent de manipuler des matrices de transfert réelles. Dans un premier temps, nous ferons un bref rappel sur le problème à une couche, puis nous verrons comment relier les champs acoustiques de part et d'autre de cette couche de façon à exprimer le vecteur acoustique $\begin{pmatrix} u \\ \sigma \end{pmatrix}$ en tout point de l'empilement en fonction des conditions à la surface. Le formalisme de matrice de transfert acoustique [25, 29] et électromagnétique nous permettra ensuite de passer à une problématique multicouche permettant de caractériser les champs acoustiques à chaque interface. Enfin, nous verrons comment l'effet photoélastique et le déplacement des interfaces contribuent au changement relatif de réflectivité de l'ensemble de la structure. Notons que les calculs de ce chapitre sont menés de façon quelque peu "pédestre", cela ne conduit pas aux expressions mathématiques les plus élégantes mais permet de faciliter l'écriture de codes de calculs.

Dans la suite de ce chapitre, nous assimilerons tous les empilements à des structures semblables à celle représentée sur la figure 3.3. Les vecteurs acoustiques $\begin{pmatrix} u_p \\ \sigma_p \end{pmatrix}$ sont donnés pour la p -ième interface alors que les vecteurs électromagnétiques $\begin{pmatrix} a_p \\ b_p \end{pmatrix}$ sont définis au sein de la couche p , pour $z = d_p$ c'est à dire juste avant l'interface $p + 1$. Les coefficients $\begin{pmatrix} a_p \\ b_p \end{pmatrix}$ sont les amplitudes des champs électriques se propageant dans la couche p .

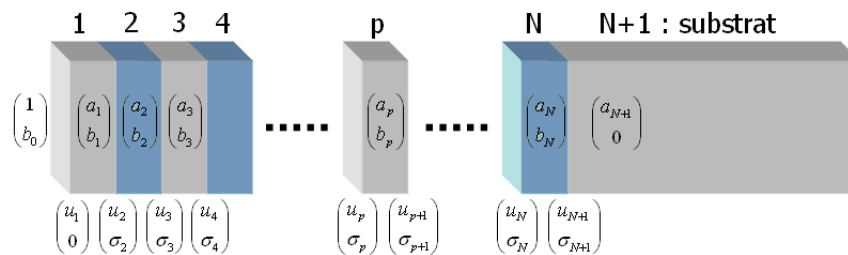


FIG. 3.3 – Schéma pour un échantillon multicouches.

3.1 Rappel sur le problème à une couche

3.1.1 Champ acoustique

Nous avons vu dans le paragraphe §1, que le champ acoustique est créé par la dilatation locale de la couche, elle-même engendrée par l'augmentation de la température suite

à l'absorption de l'impulsion pompe. L'élévation de température $\Delta T(z, t)$ peut s'exprimer par le rapport entre l'énergie absorbée par le milieu $W(z, t)$ et la chaleur spécifique : $\Delta T(z, t) = \frac{W(z, t)}{C_v}$. Ainsi la contrainte thermique et la densité d'énergie déposée s'écrivent respectivement $\sigma_{th}(z, t) = -3\beta B \Delta T(z, t)$ et $W(z, t) = \frac{\alpha Q}{S} \left| \vec{E}(z) \right|^2$ avec C_v la chaleur spécifique à volume constant ($J.K^{-1}$), B le module de compressibilité (GPa), β la dilatation thermique linéaire (K^{-1}), Q l'énergie de l'impulsion pompe et S la surface éclairée. Dans le chapitre §1, nous avons effectué les calculs sur la déformation, or dans le cas d'un empilement multicouches, il est pratique de travailler sur des grandeurs continues aux interfaces. L'équation de propagation au sein du film en terme de déplacement acoustique linéaire, s'écrit :

$$\frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} - v^2 \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial z^2} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \sigma_{th}(z, t)}{\partial z}. \quad (3.1)$$

Cette dernière équation est résolue par transformée de Fourier temporelle¹. Ceci nous permet d'obtenir l'équation de propagation en fréquence :

$$\omega^2 u(z, \omega) + v^2 \frac{\partial^2 u(z, \omega)}{\partial z^2} = \frac{3\alpha\beta B Q}{\rho C_v S} \frac{\partial \left| \vec{E}(z) \right|^2}{\partial z} H(\omega), \quad (3.2)$$

où $H(\omega)$ est la transformée de Fourier de la fonction saut. On rappelle, que l'on peut exprimer le champ électromagnétique au sein d'une couche en fonction de l'épaisseur z : $\vec{E}(z) = ae^{inkz} + be^{-inkz}$. En considérant un indice optique complexe $n = n' + in''$, le module au carré s'écrit

$$\left| \vec{E}(z) \right|^2 = E_1 e^{-\alpha z} + E_2 e^{\alpha z} + E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z} \quad (3.3)$$

où $E_1 = |a|^2$, $E_2 = |b|^2$, $E_3 = ab^*$, $E_4 = a^*b$, $\alpha = 2n''k$ et $\kappa = 2n'k$.

On résout l'équation de propagation des déplacements acoustiques (3.2) en ondes planes harmoniques, puis connaissant l'expression du déplacement $u(z, \omega)$, on déduit les contraintes $\sigma(z, \omega)$ et les déformations acoustiques $\eta(z, \omega)$ au sein d'un milieu homogène unidimensionnel :

¹ $x(t)$ et $X(\omega)$ sont transformées de Fourier l'une de l'autre et admettent les définitions suivantes : $X(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} x(t)$ et $x(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-i\omega t} X(\omega)$

$$\left\{ \begin{array}{l} u(z, \omega) = \left[\begin{array}{c} A(\omega) e^{iqz} + B(\omega) e^{-iqz} \\ -\alpha D_\alpha(\omega) (E_1 e^{-\alpha z} - E_2 e^{\alpha z}) - i\kappa D_\kappa(\omega) (-E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z}) \end{array} \right] \\ \sigma(z, \omega) = \left[\begin{array}{c} i\omega Z (A(\omega) e^{iqz} - B(\omega) e^{-iqz}) \\ -\rho\omega^2 (D_\alpha(\omega) (E_1 e^{-\alpha z} + E_2 e^{\alpha z}) + D_\kappa(\omega) (E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z})) \end{array} \right] \\ \eta(z, \omega) = \left[\begin{array}{c} iq (A(\omega) e^{iqz} - B(\omega) e^{-iqz}) \\ +\alpha^2 D_\alpha(\omega) (E_1 e^{-\alpha z} + E_2 e^{\alpha z}) - \kappa^2 D_\kappa(\omega) (E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z}) \end{array} \right] \end{array} \right. \quad (3.4)$$

avec $q = \omega/\nu$ le vecteur d'onde, $Z = \rho\nu$ l'impédance acoustique du milieu ; ainsi que trois fonctions de la pulsation :

$$\begin{aligned} - \tilde{\eta}(\omega) &= \tilde{\eta}_0 H(\omega) \text{ avec } \tilde{\eta}_0 = \frac{3\alpha\beta BQ}{\rho\nu^2 C_v S}, \\ - D_\alpha(\omega) &= \frac{\tilde{\eta}(\omega)}{(\omega^2 + \alpha^2\nu^2)}, \\ - D_\kappa(\omega) &= \frac{\tilde{\eta}(\omega)}{(\omega^2 - \kappa^2\nu^2)}. \end{aligned}$$

Pour connaître les champs acoustiques au sein d'une couche, il faut déterminer les valeurs des coefficients $A(\omega)$ et $B(\omega)$, ainsi que tous les paramètres électromagnétiques ($E_{1..4}$, D_α , D_κ , etc.).

3.1.2 Relation entre les champs acoustiques de part et d'autre d'un film

Pour exprimer les champs acoustiques de part et d'autre d'un film mince, on utilise le vecteur acoustique $\begin{pmatrix} u \\ \sigma \end{pmatrix}$; on écrit alors les composantes $u(z, \omega)$ et $\sigma(z, \omega)$ du système d'équations (3.4) sous une forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} u(z, \omega) \\ \sigma(z, \omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{iqz} & e^{-iqz} \\ i\omega Z e^{iqz} & -i\omega Z e^{-iqz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} - D_\alpha \begin{pmatrix} \alpha (E_1 e^{-\alpha z} - E_2 e^{\alpha z}) \\ \rho\omega^2 (E_1 e^{-\alpha z} + E_2 e^{\alpha z}) \end{pmatrix} - D_\kappa \begin{pmatrix} i\kappa (-E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z}) \\ \rho\omega^2 (E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z}) \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

Afin de déterminer les grandeurs $\begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix}$, on se place en $z = 0$, c'est-à-dire — d'après notre schéma de la figure 3.3 — à la gauche du film ; on renomme alors $u(z, \omega)$ et $\sigma(z, \omega)$ en u_g et σ_g , l'expression devient :

$$\begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ i\omega Z & -i\omega Z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} - D_\alpha \begin{pmatrix} \alpha (E_1 - E_2) \\ \rho\omega^2 (E_1 + E_2) \end{pmatrix} - D_\kappa \begin{pmatrix} i\kappa (-E_3 + E_4) \\ \rho\omega^2 (E_3 + E_4) \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

On exprime maintenant A et B en fonction des champs acoustiques. Pour cela et afin d'alléger l'écriture, on pose :

$$\begin{array}{l|l} x_1 = \alpha(E_1 - E_2) & x_2 = i\kappa(-E_3 + E_4) \\ y_1 = E_1 + E_2 & y_2 = E_3 + E_4 \end{array}$$

et on a

$$\begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} = m_0^{-1} \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} + D_\alpha m_0^{-1} \begin{pmatrix} x_1 \\ \rho\omega^2 y_1 \end{pmatrix} + D_\kappa m_0^{-1} \begin{pmatrix} x_2 \\ \rho\omega^2 y_2 \end{pmatrix}, \quad (3.7)$$

avec :

$$m_0 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ i\omega Z & -i\omega Z \end{pmatrix} ; m_0^{-1} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \frac{1}{i\omega Z} \\ 1 & -\frac{1}{i\omega Z} \end{pmatrix}.$$

On veut maintenant relier les vecteurs acoustiques de part et d'autre du film. On se place alors à l'autre extrémité de la couche, en $z = d$, où d est l'épaisseur du film. On reprend l'équation 3.5 et de la même façon, on renomme u et σ en u_d et σ_d .

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{iqd} & e^{-iqd} \\ i\omega Z e^{iqd} & -i\omega Z e^{-iqd} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} - D_\alpha \begin{pmatrix} \alpha(E_1 e^{-\alpha d} - E_2 e^{\alpha d}) \\ \rho\omega^2(E_1 e^{-\alpha d} + E_2 e^{\alpha d}) \end{pmatrix} - D_\kappa \begin{pmatrix} i\kappa(-E_3 e^{i\kappa d} + E_4 e^{-i\kappa d}) \\ \rho\omega^2(E_3 e^{i\kappa d} + E_4 e^{-i\kappa d}) \end{pmatrix}.$$

On pose :

$$\begin{array}{l|l} x_3 = -\alpha(E_1 e^{-\alpha d} - E_2 e^{\alpha d}) & x_4 = -i\kappa(-E_3 e^{\alpha d} + E_4 e^{-\alpha d}) \\ y_3 = -(E_1 e^{-\alpha d} + E_2 e^{\alpha d}) & y_4 = -(E_3 e^{\alpha d} + E_4 e^{-\alpha d}) \end{array}$$

et

$$m_d = \begin{pmatrix} e^{iqd} & e^{-iqd} \\ i\omega Z e^{iqd} & -i\omega Z e^{-iqd} \end{pmatrix}$$

pour obtenir l'expression des champs acoustiques à droite du film

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = m_d \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} - D_\alpha \begin{pmatrix} x_3 \\ \rho\omega^2 y_3 \end{pmatrix} - D_\kappa \begin{pmatrix} x_4 \\ \rho\omega^2 y_4 \end{pmatrix}. \quad (3.8)$$

On reporte l'expression (3.7) de A et B dans l'équation 3.8 et on exprime ainsi les champs acoustiques à droite du film en fonction des mêmes champs à gauche du film mince :

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = m_d \times \left[m_0^{-1} \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} + D_\alpha m_0^{-1} \begin{pmatrix} x_1 \\ \rho\omega^2 y_1 \end{pmatrix} + D_\kappa m_0^{-1} \begin{pmatrix} x_2 \\ \rho\omega^2 y_2 \end{pmatrix} \right] \\ + D_\alpha \begin{pmatrix} x_3 \\ \rho\omega^2 y_3 \end{pmatrix} + D_\kappa \begin{pmatrix} x_4 \\ \rho\omega^2 y_4 \end{pmatrix}$$

L'expression reliant les champs acoustiques de part et d'autre du film mince est donc la suivante :

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = \tau \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} + D_\alpha \left[\tau \begin{pmatrix} x_1 \\ \rho\omega^2 y_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x_3 \\ \rho\omega^2 y_3 \end{pmatrix} \right] + D_\kappa \left[\tau \begin{pmatrix} x_2 \\ \rho\omega^2 y_2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x_4 \\ \rho\omega^2 y_4 \end{pmatrix} \right]$$

où τ représente la matrice de transfert de la couche,

$$\tau = \begin{pmatrix} \cos(qd) & \frac{\sin(qd)}{\omega Z} \\ -\omega Z \sin(qd) & \cos(qd) \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

Si on peut relier les champs acoustiques de part et d'autre d'une couche mince, on peut exprimer ces vecteurs acoustiques à chaque interface d'un empilement de façon à caractériser les champs de proche en proche. Pour cela, nous utiliserons un formalisme de matrice de transfert. Notons que dans cette expression, aucune des grandeurs nécessaires au calcul effectif des grandeurs acoustiques n'est connue, car il s'agit de grandeurs électromagnétiques non encore calculées.

3.1.3 Passage au multicouches : Formalisme de matrice de transfert

Nous venons de voir au paragraphe précédent que les champs acoustiques de part et d'autre d'un film mince peuvent être reliés; on peut réécrire cette relation en mettant en évidence une matrice de transfert pour la couche considérée

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = \tau \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

où τ est la matrice de transfert du film (voir eq. (3.9)) et $\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$ joue le rôle de terme source. On l'appelle "vecteur thermo-acoustique"; il s'écrit :

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} = D_\alpha \left[\tau \begin{pmatrix} x_1 \\ \rho\omega^2 y_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x_3 \\ \rho\omega^2 y_3 \end{pmatrix} \right] + D_\kappa \left[\tau \begin{pmatrix} x_2 \\ \rho\omega^2 y_2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x_4 \\ \rho\omega^2 y_4 \end{pmatrix} \right]. \quad (3.11)$$

On se propose maintenant d'étendre cette relation par récurrence aux systèmes multicouches.

3.2 Systèmes multicouches

Pour un empilement donné, on peut traiter le problème couche par couche en exprimant toujours les champs acoustiques aux interfaces en fonction des interfaces précédentes.

3.2.1 Matrice de transfert acoustique

L'équation (3.10) permettant de relier les champs à droite et à gauche, peut se généraliser pour un problème à N couches. En effet, dans ce cas, on peut exprimer les champs acoustiques en surface en fonction de ceux-ci à n'importe quelle interface dans l'empilement.

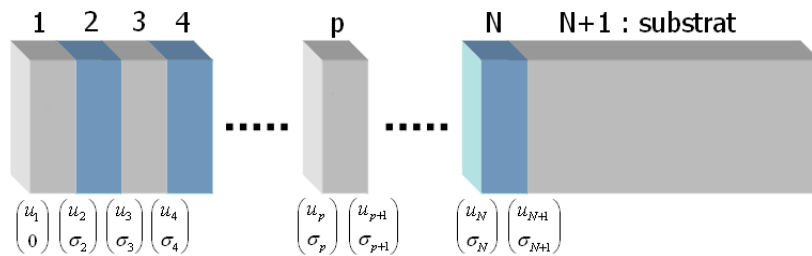


FIG. 3.4 – Notation des champs acoustiques dans un empilement.

On considère la première couche de l'empilement (celle qui se trouve en surface) : la matrice de transfert pour le passage de cette couche est notée τ_{a1} . Les champs acoustiques sont notés conformément à la figure 3.4. Ainsi, les champs en surface sont $\begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix}$ (avec $\sigma_1 = 0$, puisque la surface est libre) et les champs transmis après la première couche sont $\begin{pmatrix} u_2 \\ \sigma_2 \end{pmatrix}$; l'application de la formule (3.10) donne :

$$\begin{pmatrix} u_2 \\ \sigma_2 \end{pmatrix} = \tau_{a1} \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix}. \quad (3.12)$$

Considérant un empilement, on peut également écrire la relation entre les champs acoustiques des secondes et troisièmes interfaces avec τ_{a2} la matrice de transfert acoustique pour la seconde couche :

$$\begin{pmatrix} u_3 \\ \sigma_3 \end{pmatrix} = \tau_{a2} \begin{pmatrix} u_2 \\ \sigma_2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_2 \\ y'_2 \end{pmatrix}. \quad (3.13)$$

En reportant l'équation de la première couche (3.12) dans celle de la seconde (3.13), on obtient une relation entre les champs acoustiques en surface et ceux à l'interface entre les couches 2 et 3,

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} u_3 \\ \sigma_3 \end{pmatrix} &= \tau_{a2}\tau_{a1} \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} + \tau_{a2} \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_2 \\ y'_2 \end{pmatrix} \\ &= T_2 \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} X_2 \\ Y_2 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.14)$$

$T_2 = \tau_{a2}\tau_{a1}$ est la matrice de transfert de l'ensemble des deux premières couches (la bicouche 1-2) et le vecteur $\begin{pmatrix} X_2 \\ Y_2 \end{pmatrix}$ est la somme des vecteurs thermo-acoustiques des couches 1 et 2. Par récurrence, on peut exprimer le vecteur des champs acoustiques à la p -ième interface $\begin{pmatrix} u_p \\ \sigma_p \end{pmatrix}$ en fonction de ceux de surface $\begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix}$:

$$\begin{pmatrix} u_p \\ \sigma_p \end{pmatrix} = T_{p-1} \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} X_{p-1} \\ Y_{p-1} \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

avec T_{p-1} la matrice de transfert pour les $p-1$ couches traversées et $\begin{pmatrix} X_{p-1} \\ Y_{p-1} \end{pmatrix}$ le vecteur thermo-acoustique correspondant, soit le terme source "vu" depuis la p -ième interface

$$\begin{pmatrix} X_{p-1} \\ Y_{p-1} \end{pmatrix} = \tau_{a,p-1} \begin{pmatrix} X_{p-2} \\ Y_{p-2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_{p-1} \\ y'_{p-1} \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

De proche en proche, on peut calculer les vecteurs acoustiques à toutes les interfaces, toujours en fonction des champs en surface $\begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix}$. Pour connaître chaque vecteur acoustique indépendamment des autres, il faut donc connaître le vecteur acoustique en surface et grâce à lui, on pourra exprimer les coefficients A_p et B_p , qui apparaissent dans les expressions des déplacements, contraintes et déformations (cf. eq (3.4)). Dans le vecteur de surface, on connaît déjà σ_1 ; en effet, $\sigma_1 = 0$ car la surface est libre.

Dans tous les échantillons étudiés, le substrat est toujours suffisamment épais pour que l'on puisse le considérer comme semi-infini. On peut donc dire qu'aucune onde réfléchie ne revient de l'autre interface du substrat, soit $B_{N+1} = 0$ où N est le nombre de couches de l'empilement.

$$\begin{cases} u_{N+1} = A_{N+1} - x_{N+1} \\ \sigma_{N+1} = i\omega Z_{N+1} A_{N+1} - y_{N+1} \end{cases} \quad (3.17)$$

avec $x_{N+1} = D_{\alpha,N+1} E_{1,N+1}$ et $y_{N+1} = \rho\omega^2 D_{\alpha,N+1} E_{1,N+1}$. Les grandeurs $D_{\alpha,N+1}$ et $E_{1,N+1}$ sont respectivement les fonctions D_{α} et E_1 définies dans le substrat. Avec la formule qui précède et la relation de récurrence (3.15), on a :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} u_{N+1} \\ \sigma_{N+1} \end{pmatrix} &= T_N \begin{pmatrix} u_1 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} X_N \\ Y_N \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} A_{N+1} - x_{N+1} \\ i\omega Z_{N+1} A_{N+1} - y_{N+1} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.18)$$

Ce qui nous permet d'en déduire l'expression du déplacement u_1 de la surface de l'échantillon

$$u_1 = \frac{i\omega Z_{N+1} (X_N + x_{N+1}) - (Y_N + y_{N+1})}{T_{N,21} - i\omega Z_{N+1} T_{N,11}}. \quad (3.19)$$

Connaissant l'expression de u_1 , on peut maintenant réécrire l'équation de récurrence (3.15) exprimant le vecteur acoustique à la p -ième interface en fonction de u_1 ,

$$\begin{cases} u_p &= T_{(p-1);11} u_1 + X_{p-1} \\ \sigma_p &= T_{(p-1);21} u_1 + Y_{p-1} \end{cases}. \quad (3.20)$$

On exprime les coefficients A_p et B_p des ondes planes acoustiques de la couche p :

$$\begin{cases} A_p &= \frac{1}{2} \left(u_p + \frac{\sigma_p}{i\omega Z_p} + D_{\alpha,p} (x_{1,p} - iq_p y_{1,p}) + D_{\kappa,p} (x_{2,p} - iq_p y_{2,p}) \right) \\ B_p &= \frac{1}{2} \left(u_p - \frac{\sigma_p}{i\omega Z_p} + D_{\alpha,p} (x_{1,p} + iq_p y_{1,p}) + D_{\kappa,p} (x_{2,p} + iq_p y_{2,p}) \right) \end{cases} \quad (3.21)$$

On peut ainsi exprimer les perturbations acoustiques dans chacune des couches en fonction des paramètres optiques et ceux reliés à l'excitation ($\tilde{\eta}_0$). D'où la nécessité de résoudre le problème électromagnétique dans ce même empilement.

3.2.2 Matrice de transfert électromagnétique

Pour exprimer les perturbations acoustiques dans l'empilement, on a besoin de connaître le champ électromagnétique dans chacune des couches. Nous avons vu au début de ce chapitre, que le champ électromagnétique dans une couche s'écrit sous la forme : $\vec{E}(z) = a e^{ink_0 z} + b e^{-ink_0 z}$. En considérant un indice optique complexe $n = n' + in''$, le module au carré s'écrit :

$$\left| \vec{E}(z) \right|^2 = E_1 e^{-\alpha z} + E_2 e^{\alpha z} + E_3 e^{i\kappa z} + E_4 e^{-i\kappa z} \quad (3.22)$$

où $E_1 = |a|^2$, $E_2 = |b|^2$, $E_3 = ab^*$, $E_4 = a^*b$, $\alpha = 2n''k_0$ et $\kappa = 2n'k_0$.

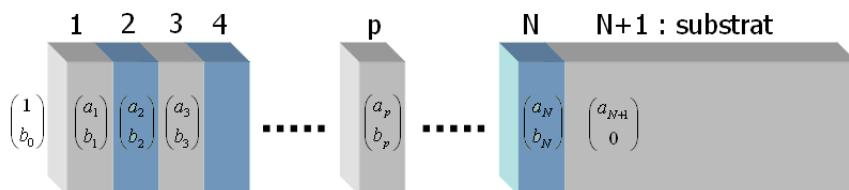


FIG. 3.5 – Champs électromagnétiques $E_m(z) = (a_m, b_m)$ dans un empilement multicouches.

Si le champ électromagnétique est incident sur la surface avec un angle θ , alors dans une couche m de l'empilement, on a :

$$\vec{E}_m(z) = a_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-ik_m \cos \theta_m z}, \quad (3.23)$$

avec $k_m = \sqrt{\epsilon_m} k_0$ où $\epsilon_m = n_m^2$ est la constante diélectrique (complexe), k_0 est le vecteur d'onde dans le vide. Chaque champ électromagnétique (caractérisé par ses amplitudes a_m et b_m) dans une couche m peut s'exprimer en fonction des champs dans les couches précédentes. En effet, la propagation au sein d'une couche m d'épaisseur d_m dans le sens des m croissant ($m-1 \rightarrow m+1$) s'écrit :

$$P_m = \begin{pmatrix} e^{-ik_m \cos \theta_m d_m} & 0 \\ 0 & e^{ik_m \cos \theta_m d_m} \end{pmatrix} \quad (3.24)$$

Quant au passage de l'interface entre les couches m et $m+1$ (dans le sens $m \rightarrow m+1$), il est donné par la matrice de transfert $\tau_{m,m+1}$:

$$\tau_{m,m+1} = \frac{1}{t_{m,m+1}} \begin{pmatrix} 1 & r_{m,m+1} \\ r_{m,m+1} & 1 \end{pmatrix}. \quad (3.25)$$

$r_{m,m+1} = \frac{n_m - n_{m+1}}{n_m + n_{m+1}}$ et $t_{m,m+1} = \frac{2n_m}{n_m + n_{m+1}}$ sont les coefficients électromagnétiques de réflexion et de transmission des ondes électromagnétiques. Les champs électromagnétiques (définis par a_m et b_m) pour les couches m et $m+1$ sont donc reliés par le produit des matrices de propagation et de passage de l'interface entre ces deux couches :

$$\begin{pmatrix} a_m \\ b_m \end{pmatrix} = P_m \tau_{m,m+1} \begin{pmatrix} a_{m+1} \\ b_{m+1} \end{pmatrix}. \quad (3.26)$$

$P_m \tau_{m,m+1}$ est la matrice de transfert de la couche $m+1$ vers la couche m . On applique le même raisonnement à l'ensemble des couches constituant l'empilement et par récurrence, on obtient l'expression qui permet de relier le champ électromagnétique d'une couche m quelconque au champ dans le substrat, dans lequel le terme b_s est nul car on considère qu'aucune onde ne revient du fond du substrat

$$\begin{pmatrix} a_m \\ b_m \end{pmatrix} = P_m \tau_{m,m+1} \cdots P_N \tau_{N,N+1} \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix} = T_m \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (3.27)$$

On peut directement relier le champ dans le substrat au champ incident dans l'air (défini par a_0 et b_0). Ainsi, on pourra définir un coefficient de réflectivité global pour l'empilement.

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} &= \tau_{0,1} P_1 \tau_{1,2} \cdots P_m \tau_{m,m+1} \cdots P_N \tau_{N,N+1} \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} &= T_0 \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{0,11} & T_{0,12} \\ T_{0,21} & T_{0,22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.28)$$

Le coefficient de réflexion r_0 de la structure complète est donné par $r_0 = \frac{b_0}{a_0}$ soit :

$$r_0 = \frac{T_{0,21}}{T_{0,11}} \quad (3.29)$$

En présence d'un champ acoustique, l'amplitude du champ réfléchi b_0 est affectée par deux processus distincts ; d'une part, la déformation élastique créée dans l'échantillon modifiant les propriétés optiques à l'intérieur de chaque couche et, d'autre part, les déplacements induits par le champ acoustique des interfaces de la structure. Ces deux processus provoquent des modifications au niveau de la matrice de transfert et du coefficient de réflexion r . On peut obtenir l'expression de ces termes perturbatifs en effectuant un développement limité au premier ordre de la matrice de transfert en présence du champ acoustique. À cet ordre de développement, les processus sont seulement additifs et peuvent être étudiés indépendamment et les contributions pour les différentes couches additionnées.

Nous sommes désormais capables de calculer les champs électromagnétiques dans chaque couche, il est donc possible de déterminer les champs acoustiques eux-mêmes nécessaire pour calculer la variation relative de réflectivité. En effet, dans les expériences d'acoustique picoseconde, c'est cette dernière que l'on mesure.

3.3 Détection dans un système multicouches

Lors de mesures expérimentales, la grandeur que l'on mesure est le changement relatif de réflectivité $\frac{\Delta r}{r_0}$. Nous venons de voir comment calculer r_0 , voyons maintenant comment exprimer la variation de réflectivité lorsque le système est perturbé par une déformation acoustique. Comme pour le problème du film mince (voir le chapitre 1.), la détection est soumise à deux effets :

- l'effet photoélastique, c'est à dire la modification des constante diélectriques par la déformation acoustique ;
- le déplacement de **chaque** interface dans l'empilement.

3.3.1 Contribution de l'effet photoélastique

L'effet photoélastique permet de relier la variation des constantes diélectriques d'un matériau à la déformation qui se propage en son sein. La variation des constantes diélectriques est reliée au tenseur de déformation par l'intermédiaire du tenseur de Pockels (tenseur d'ordre 4).

$$\Delta \epsilon_{il} = \epsilon_{ij} p_{jkmn} \epsilon_{kl} \eta_{mn} \quad (3.30)$$

Pour des matériaux isotropes ou cubiques, $\varepsilon_{il} = \varepsilon \delta_{il}$, ne considérant qu'un problème à une dimension selon l'axe z , seule la composante ε_{33} est pertinente et la constante diélectrique modifiée dans une couche m par la déformation s'écrit :

$$\delta\varepsilon_m = \frac{\partial\varepsilon_m}{\partial\eta}\eta_m(z) \quad (3.31)$$

Si l'impulsion laser a un angle d'incidence θ_m , l'équation différentielle à résoudre s'écrit :

$$\frac{\partial^2 E(z)}{\partial z^2} + k_0^2 \cos^2 \theta_m \varepsilon_m E(z) = -k_0^2 \cos^2 \theta_m \Delta\varepsilon_m E(z) \quad (3.32)$$

On doit faire cette modification pour chaque couche m , afin de déterminer les modifications induites sur la matrice de transfert globale. Pour cela, on résout d'abord l'équation de passage d'une interface τ_ξ infiniment mince localisée en z' et due à une déformation acoustique. On se place ensuite sur l'interface, (en $z = z'$) et on développe au second ordre. Les champs acoustiques de part et d'autre de l'interface peuvent être reliés par une matrice de transfert. Enfin en tenant compte de la déformation acoustique dans la couche m sur la variation d'indice de réfraction, on peut écrire la matrice de propagation intégrée sur toute l'épaisseur de la couche $P_m^{(1)}$:

$$P_m^{(1)} = P_m + \xi \frac{\partial\varepsilon_m}{\partial\eta} \int_0^{d_m} P(z) P_m \eta_m(z) dz + o(\xi^2)$$

soit,

$$P_m^{(1)} = P_m + \Delta_m^{(1)} P_m + o(\xi^2)$$

où

$$\Delta_m^{(1)} = \frac{ik_0^2 \cos \theta_m}{2k_m} \frac{\partial\varepsilon_m}{\partial\eta} \int_0^{d_m} dz P(z) \eta_m(z) \quad (3.33)$$

$\Delta_m^{(1)}$ représente la variation de réflectivité due à l'effet photoélastique dans la couche m . C'est la première contribution à la variation relative de réflectivité. La seconde est due aux déplacements d'interface dans l'empilement.

3.3.2 Contribution du déplacement des interfaces

De la même façon qu'un champ acoustique engendre un déplacement de la surface d'un film mince, la présence de ce champ dans une structure multicouches provoque un déplacement de chaque interface de l'empilement. Entre les couches m et $m+1$, l'interface est déplacée d'une quantité $u(\tilde{z}) = u_m$. La matrice de propagation dans la couche m : $P_m^{(2)}$ peut alors être exprimée en tenant compte des nouvelles positions des deux interfaces localisées en $(\tilde{z}_{m-1} + u_{m-1})$ et $(\tilde{z}_m + u_m)$:

$$P_m^{(2)} = \begin{pmatrix} e^{-ik_m \cos \theta_m (d_m + u_m + u_{m-1})} & 0 \\ 0 & e^{ik_m \cos \theta_m (d_m + u_m + u_{m-1})} \end{pmatrix}. \quad (3.34)$$

En développant ce terme au deuxième ordre, on obtient :

$$P_m^{(2)} = P_m + \Delta_m^{(2)} P_m + o(u^2)$$

où $\Delta_m^{(2)}$ est la variation de réflectivité due au déplacement des interfaces de part et d'autre de la couche m .

$$\Delta_m^{(2)} = -ik_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) R \quad (3.35)$$

La totalité de la variation relative de réflectivité $\Delta r/r_0$ ne dépendant que des contributions que nous venons d'évaluer, il est désormais possible de calculer son expression.

3.3.3 Changement relatif de réflectivité : Somme des deux contributions

Sachant que les deux effets contribuant à la variation relative de réflectivité sont l'effet photoélastique et le déplacement des interfaces et que les variations de réflectivité, qui leur sont dues sont respectivement $\Delta_m^{(1)}$ et $\Delta_m^{(2)}$, alors on peut dire que la variation de réflectivité dans une structure multicouches est la somme de ces deux contributions :

$$\Delta_m = \Delta_m^{(1)} + \Delta_m^{(2)}. \quad (3.36)$$

On peut alors montrer que la variation relative de réflectivité pour un empilement de N couches sur un substrat semi-infini s'écrit :

$$\frac{\Delta r}{r_0} = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left\{ \frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} \eta_m(z) [a_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-ik_m \cos \theta_m z}]^2 dz \right. \\ \left. + 2\varepsilon_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) a_m b_m \right\} \quad (3.37)$$

avec $d_{N+1} \rightarrow +\infty$, $u_{-1} = 0$ et $\frac{\partial \varepsilon_0}{\partial \eta} = 0$. Les effets photoélastiques de chaque couche ne sont intégrés qu'entre 0 et d_m et non entre 0 et $d_m + u_m$ car ce sont des effets du deuxième ordre, alors négligeables.

On voit que les termes qui entrent en jeu dans l'équation (3.37) sont :

- un terme intégral issu de l'effet photoélastique dans chaque couche. Dans la suite, on appellera ce terme "intégrale photoélastique" et noté $I_m(\omega)$.
- un terme issu du déplacement de chaque interface et noté $U_m(\omega)$

D'une part, l'intégrale photoélastique I_m s'écrit :

$$I_m(\omega) = \int_0^{d_m} dz \eta_m(z, \omega) [a_m e^{2ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-2ik_m \cos \theta_m z} + 2a_m b_m] \quad (3.38)$$

et d'autre part, la variation U_m de déplacement des interfaces s'écrit :

$$U_m(\omega) = u_m(\omega) - u_{m-1}(\omega). \quad (3.39)$$

On insère ces deux expressions dans l'expression de $\frac{\Delta r}{r_0}$ et on obtient finalement l'expression suivante :

$$\frac{\Delta r}{r_0} = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left\{ \frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} I_m(\omega) + 2\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m U_m(\omega) \right\}. \quad (3.40)$$

Afin de faciliter la simulation numérique du changement relatif de réflectivité $\frac{\Delta r}{r_0}$, les expressions de I_m et U_m peuvent être approfondies. Ce calcul étant particulièrement long et donnant lieu à des expressions de grande taille, il est reporté en annexe [A](#).

3.4 Conclusion

À partir de la dernière expression de la variation relative de réflectivité, on a pu écrire des programmes de calculs d'abord en FORTRAN, puis à l'aide de Matlab[®]. En effet, la forme même de l'expression de $\Delta r(t)/r_0$ permet d'éviter de procéder à des intégrations numériques et on s'intéresse surtout ici au traitement de matrices de transfert. Il faut toutefois faire plusieurs "passages" pour parcourir la structure multicouche afin de déterminer dans un premier temps les termes électromagnétiques qui permettront, dans le deuxième de temps, de calculer les termes des vecteurs acoustiques.

Ces programmes de calcul permettent de calculer la variation relative de réflectivité à la surface de l'échantillon. On peut aussi dégager le vecteur acoustique à chaque interface constituant l'empilement. On peut ainsi étudier l'évolution du spectre du paquet d'ondes traversant la structure et connaître la forme du vecteur acoustique à l'autre extrémité de l'empilement. La figure 3.6 permet de voir l'évolution du spectre du déplacement acoustique en fonction de la profondeur dans le multicouche.

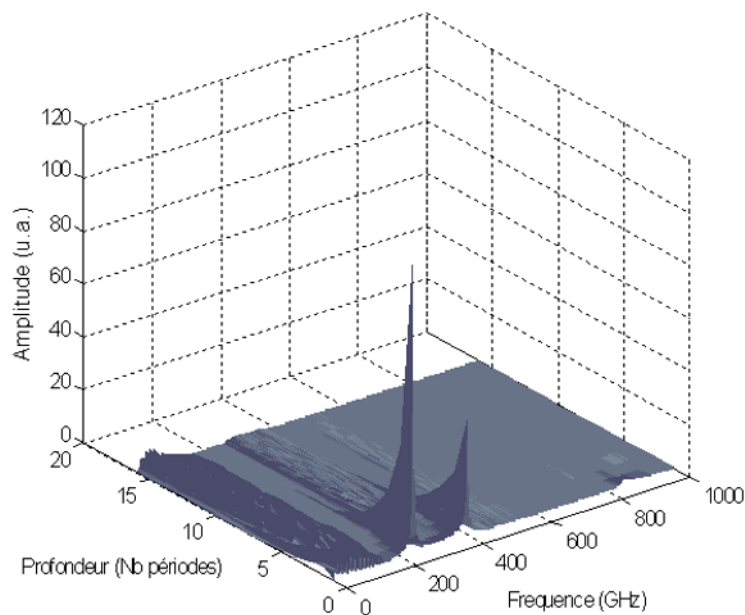


FIG. 3.6 – Evolution du spectre du déplacement acoustique en fonction de la profondeur pour un échantillon multicouche Cu/W ($d_{Cu} = 4$ nm et $d_W = 8$ nm).

Chapitre 4

Systemes multicouches périodiques alternés

Sommaire

4.1 Simplifications dues à la périodicité	79
4.1.1 Matrice de transfert optique	80
4.1.2 Matrice de transfert acoustique	81
4.2 Relation de dispersion - modes localisés	83
4.2.1 Relation de dispersion	83
4.2.2 Modes localisés	84
4.3 Propagation basse-fréquence - Milieux effectifs	88
4.3.1 Propriétés acoustiques	89
4.3.2 Propriétés optiques	90
4.4 Influence de couches d'interface	91
4.5 Transduction haute fréquence à l'aide de structures multicouches	92
4.5.1 Empilement périodique d'épaisseur finie	93
4.5.2 Transmission à travers un substrat	96
4.6 Conclusion	98

Dans ce chapitre, nous allons cette fois nous intéresser à un cas particulier des multicouches : l'empilement périodique alterné. Dans ce cas, on peut dégager des propriétés intéressantes grâce à la simplification des matrices de transfert [25–27, 29, 42]. Nous reprenons donc le calcul développé dans le chapitre précédent et nous allons reformuler les mêmes équations de façon à obtenir des équations plus condensées et plus élégantes. En effet, dans le chapitre 3 nous avons établi des expressions de façon à faciliter l'écriture de programmes de calcul. Les calculs repris au début de ce chapitre visent donc à travailler sur des expressions mathématiques plus élégantes et plus maléables, mais il faut bien garder à l'esprit qu'il s'agit bien du même problème physique. Ce n'est qu'à partir de la section §4.1 que nous aborderons spécifiquement les simplifications dues à la périodicité dans l'empilement.

Comme nous l'avons déjà vu, le champ électromagnétique $E(z)$ dans une couche s'écrit sous la forme d'une onde stationnaire $E(z) = ae^{ikz} + be^{-ikz}$ et on admet que ce champ donne lieu à une absorption instantanée, qui crée un gradient de température qui n'évolue pas pendant la durée de création des champs acoustiques. Ainsi, dans chaque couche, nous avons une densité d'énergie :

$$W(z, \omega) = \frac{\alpha Q}{S} H(\omega) |E(z)|^2 = \frac{\alpha Q}{S} H(\omega) \sum_{j=1}^4 E_j e^{\alpha_j z}, \quad (4.1)$$

en posant les quantités adéquates pour les E_j et les α_j . Le dépôt de cette énergie à la surface de l'échantillon entraîne une élévation de température qui donne naissance à une contrainte thermique. Comme dans la section §3.2.1, l'équation de propagation résolue en fréquence pour le déplacement acoustique s'écrit :

$$\rho \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \rho v^2 \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} - \frac{3\alpha\beta BQH(\omega)}{C_v S} \sum_{j=1}^4 \alpha_j E_j e^{\alpha_j z} \quad (4.2)$$

La résolution de cette équation différentielle conduit à un déplacement :

$$u(z, \omega) = Ae^{iqz} + Be^{-iqz} + \frac{3\alpha\beta BQH(\omega)}{\rho C_v S} \sum_{j=1}^4 \frac{\alpha_j}{\omega^2 + \alpha_j^2 v^2} E_j e^{\alpha_j z} \quad (4.3)$$

et donc à une contrainte :

$$\sigma(z, \omega) = i\omega Z (Ae^{iqz} - Be^{-iqz}) + \frac{3\alpha\beta BQH(\omega)}{C_v S} \sum_{j=1}^4 \frac{\omega^2}{\omega^2 + \alpha_j^2 v^2} E_j e^{\alpha_j z} \quad (4.4)$$

En exprimant le vecteur $\begin{pmatrix} u \\ \sigma \end{pmatrix}$ sous forme matricielle et avec ces nouvelles notations, on a :

$$\begin{pmatrix} u \\ \sigma \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{iqz} & e^{-iqz} \\ i\omega Z e^{iqz} & -i\omega Z e^{-iqz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} + \frac{3\alpha\beta BQ}{\rho C_v S} H(\omega) \sum_{j=1}^4 \frac{E_j e^{\alpha_j z}}{\omega^2 + \alpha_j^2 v^2} \begin{pmatrix} \alpha_j \\ -q\omega Z \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

Afin de retrouver la relation de récurrence liant les vecteurs acoustiques aux différentes interfaces de l'empilement, on exprime la dernière expression pour $z = 0$ (vecteur à gauche) pour avoir $\begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix}$ en fonction de $\begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix}$ et des paramètres d'excitation. On recommence ensuite en $z = d$ (vecteur à droite) et on reporte l'expression de $\begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix}$ dans cette dernière équation, ainsi on obtient une expression de $\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix}$ en fonction de $\begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix}$ et des termes sources :

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = \tau \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} + \eta_0 \sum_{j=1}^4 \frac{E_j}{(q^2 + \alpha_j^2)} \left(e^{\alpha_j d} \mathbf{I} - \tau \right) \begin{pmatrix} \alpha_j \\ -q\omega Z \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

avec $\eta_0 = \frac{3\alpha\beta BQ}{\rho v^2 C_v S} H(\omega)$ le facteur de mérite et τ la matrice de transfert du film (cf. eq. (3.9)). L'équation (3.11) peut être réécrite en tenant compte des nouvelles notations :

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} = \eta_0(\omega) \sum_{j=1}^4 \frac{e^{\alpha_j d} \mathbf{I} - \tau(d)}{q^2 + \alpha_j^2} w_j \begin{pmatrix} \alpha_j \\ -q\omega Z \end{pmatrix}$$

L'équation (3.10) peut ainsi être réécrite comme suit :

$$\begin{pmatrix} u_m \\ \sigma_m \end{pmatrix} = \tau_m \dots \tau_1 \begin{pmatrix} u_0 \\ 0 \end{pmatrix} + \sum_{p=1}^{m-1} \tau_m \dots \tau_{p+1} \begin{pmatrix} x'_p \\ y'_p \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_m \\ y'_m \end{pmatrix}. \quad (4.7)$$

Cette formulation est équivalente à celle du chapitre précédent et est donc valable pour un empilement quelconque, on se propose maintenant d'étudier des systèmes plus particuliers : les systèmes périodiques alternés.

Pour cela, nous allons aborder les simplifications dues à la périodicité d'un empilement, puis nous étudierons deux aspects de ce cas particulier : Les modes non propagatifs haute-fréquence et les modes basse-fréquence. En effet, la propagation peut être abordée de façon différente si la longueur d'onde acoustique est grande devant l'épaisseur des couches qui composent l'empilement ; on parle alors de milieu effectif.

Enfin, nous étudierons l'influence de couches interfaciales ainsi que la transduction à travers un échantillon.

4.1 Simplifications dues à la périodicité

On appelle système multicouche périodique alterné un empilement dans lequel des couches de deux types différents sont alternées.

Dans ce cas, il est montré dans la thèse de C. ROSSIGNOL [42] qu'il est possible de dégager des propriétés intéressantes. En effet, dans le cas d'un empilement périodique alterné, la matrice de transfert globale, pour la totalité de l'échantillon, ne dépend que de la matrice de transfert de la bicouche 1-2 (aussi bien pour l'acoustique que

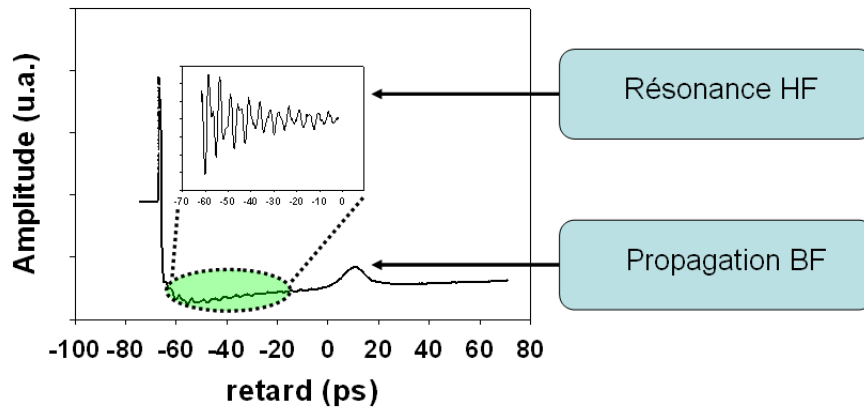


FIG. 4.1 – Les différents modes de propagation dans un empilement multicouches périodique alterné.

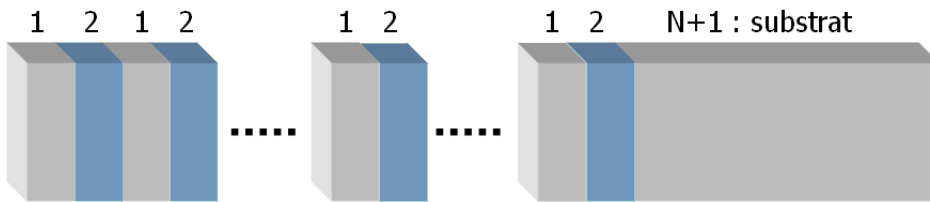


FIG. 4.2 – Schéma d'un système multicouches périodique alterné.

pour l'optique). Les propriétés des matrices de transfert acoustique et électromagnétique déterminent les champs acoustiques et électromagnétiques dans les couches de l'empilement. Le choix des vecteurs acoustiques et électromagnétiques est alors dicté par les vecteurs propres des matrices de transfert.

4.1.1 Matrice de transfert optique

Dans le cas d'un empilement périodique alterné constitué de couches métalliques, on peut considérer l'empilement comme optiquement opaque et le champ dans chacune des couches peut s'exprimer en fonction des champs dans les couches précédentes.

Nous avons vu dans la section 3.2.2, que la matrice de transfert permettant de relier les champs de part et d'autre de la couche est donnée par l'équation (3.26) :

$$\begin{pmatrix} a_m \\ b_m \end{pmatrix} = P_m \tau_{m,m+1} \begin{pmatrix} a_{m+1} \\ b_{m+1} \end{pmatrix}. \quad (4.8)$$

Pour chacune des deux premières couches, on peut donc écrire :

$$\begin{pmatrix} a_2 \\ b_2 \end{pmatrix} = M_1 \begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

$$\begin{pmatrix} a_3 \\ b_3 \end{pmatrix} = M_2 \begin{pmatrix} a_2 \\ b_2 \end{pmatrix} \quad (4.10)$$

La relation entre les champs de part et d'autre de la période (bicouche 1 – 2) s'écrit simplement en utilisant une matrice de transfert de la période étant le produit des matrices de transfert de chacune des couches constituant cette période :

$$\begin{pmatrix} a_3 \\ b_3 \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix}$$

où

$$M = M_2 M_1 = \frac{1}{t_{12} t_{21}} \begin{pmatrix} e^{ik_2 d_2} & r_{12} e^{-ik_2 d_2} \\ r_{12} e^{ik_2 d_2} & e^{-ik_2 d_2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{ik_1 d_1} & r_{21} e^{-ik_1 d_1} \\ r_{21} e^{ik_1 d_1} & e^{-ik_1 d_1} \end{pmatrix}$$

est la matrice de transfert de la bicouche 1 – 2.

Si on appelle $\begin{pmatrix} e_1 \\ e_2 \end{pmatrix}$ le vecteur propre associé à la matrice de transfert optique M , alors on peut lui associer une valeur propre λ . Dans l'empilement, le champ électromagnétique se propage vers les z croissants ($z > 0$). Si on considère un empilement semi-infini, alors le vecteur électromagnétique dans la couche de surface $\begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix}$ est parallèle au vecteur propre $\begin{pmatrix} e_1 \\ e_2 \end{pmatrix}$, qui correspond à la propagation selon z dans l'empilement. On peut donc exprimer tous les vecteurs $\begin{pmatrix} a_p \\ b_p \end{pmatrix}$ en fonction de la valeur propre de la matrice de transfert. Celle-ci étant une matrice 2×2 de déterminant égal à un, ses valeurs propres sont complexes conjuguées de module unité, $\lambda = e^{\pm ikd}$. Les couches paires et impaires peuvent être reliées grâce à ces valeurs propres :

$$\begin{pmatrix} a_{2p+1} \\ b_{2p+1} \end{pmatrix} = e^{ipkd} \begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \begin{pmatrix} a_{2p} \\ b_{2p} \end{pmatrix} = e^{ipkd} \begin{pmatrix} a_2 \\ b_2 \end{pmatrix} \quad (4.11)$$

et

$$\begin{aligned} |E_{2p+1}(z)|^2 &= e^{-p\alpha d} |E_1(z)|^2 \\ |E_{2p+2}(z)|^2 &= e^{-p\alpha d} |E_2(z)|^2. \end{aligned} \quad (4.12)$$

4.1.2 Matrice de transfert acoustique

Comme nous l'avons vu plus haut, pour un système multicouches périodique alterné semi-infini, la matrice de transfert d'une bicouche 1 – 2 s'écrit comme le produit des matrices de transfert des couches 1 et 2. La matrice de transfert globale de l'empilement

est alors le produit de toutes les matrices de transfert des bicouches. La matrice de transfert d'une bicouche est $\tau = \tau_2 \tau_1$.

On a vu que la périodicité de la structure permet d'écrire les champs électromagnétiques de façon grandement simplifiée (eq. 4.12). Le vecteur thermo-acoustique $\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$, dans l'équation différentielle de propagation (4.7) (le terme source) dépend des paramètres optiques et on a donc :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} x'_{2p+1} \\ y'_{2p+1} \end{pmatrix} &= e^{-p\alpha d} \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} x'_{2p+2} \\ y'_{2p+2} \end{pmatrix} &= e^{-p\alpha d} \begin{pmatrix} x'_2 \\ y'_2 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.13)$$

et

$$\sum_{p=0}^{n-1} \tau^p e^{(p+1-n)\alpha d} \left[\tau_2 \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_2 \\ y'_2 \end{pmatrix} \right] = (\tau^n - e^{-n\alpha d} I) \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$$

le terme source $\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$ devient :

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} = (\tau - e^{-\alpha d} I)^{-1} \left[\tau_2 \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_2 \\ y'_2 \end{pmatrix} \right]. \quad (4.14)$$

Puis, si l'empilement comporte $2n$ couches, alors $\tau = \tau_2 \tau_1$ étant la matrice de transfert d'une bicouche 1-2, τ^n est la matrice de transfert de l'ensemble de la structure et la relation permettant d'exprimer les vecteurs acoustiques dans l'empilement devient :

$$\begin{pmatrix} u_{2n} \\ \sigma_{2n} \end{pmatrix} = \tau^n \begin{pmatrix} u_0 \\ 0 \end{pmatrix} + (\tau^n - e^{-n\alpha d} I) \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}. \quad (4.15)$$

On peut alors déterminer rapidement le déplacement acoustique à la surface de l'empilement. L'équation

$$\begin{pmatrix} u_{2n} \\ \sigma_{2n} \end{pmatrix} = \tau^n \left[\begin{pmatrix} u_0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} \right] - e^{-n\alpha d} \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} \quad (4.16)$$

implique que le vecteur $\begin{pmatrix} u_0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$ soit parallèle au vecteur propre de la matrice de transfert acoustique associé à la valeur propre $\lambda = e^{iqd}$ avec $|\lambda| \leq 1$. D'où :

$$\tau_{21} (u_0 + x') + \tau_{22} y' = \lambda y'.$$

Le déplacement à la surface s'écrit donc :

$$u_0 = \frac{\lambda - \tau_{22}}{\tau_{21}} y' - x' \quad (4.17)$$

Si $\begin{pmatrix} u_0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$ est parallèle au vecteur propre associé à la valeur propre λ , alors

$$\begin{pmatrix} u_{2n} \\ \sigma_{2n} \end{pmatrix} = \lambda^n y' \begin{pmatrix} \frac{\lambda - \tau_{22}}{\tau_{21}} \\ 1 \end{pmatrix} - e^{-n\alpha d} \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} \quad (4.18)$$

or

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} = (\tau - e^{-\alpha d} I)^{-1} \left[\tau_2 \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \hat{u}_2 \\ y'_2 \end{pmatrix} \right].$$

On décompose le terme $(\tau - e^{-\alpha d} I)^{-1}$

$$(\tau - e^{-\alpha d} I)^{-1} = \frac{1}{\Delta} \begin{pmatrix} \tau_{22} - e^{-\alpha d} & -\tau_{12} \\ -\tau_{21} & \tau_{11} - e^{-\alpha d} \end{pmatrix}$$

avec Δ le polynôme caractéristique :

$$\Delta = (\lambda - e^{-\alpha d})(\lambda^{-1} - e^{-\alpha d}).$$

Posons maintenant

$$\begin{pmatrix} \tilde{u} \\ \tilde{\sigma} \end{pmatrix} = \tau_2 \begin{pmatrix} x'_1 \\ y'_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_2 \\ y'_2 \end{pmatrix},$$

Ainsi,

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix} = \frac{1}{\Delta} \begin{pmatrix} (\tau_{22} - e^{-\alpha d}) \tilde{u} - \tau_{12} \tilde{\sigma} \\ -\tau_{21} \tilde{u} + (\tau_{11} - e^{-\alpha d}) \tilde{\sigma} \end{pmatrix}$$

On reporte les expressions de x' et y' dans l'expression du déplacement en surface (4.17) et finalement,

$$u_0 = \frac{\lambda}{1 - \lambda e^{-\alpha d}} \left[\frac{\lambda - \tau_{22}}{\tau_{21}} \tilde{\sigma} - \tilde{u} \right]. \quad (4.19)$$

4.2 Relation de dispersion - modes localisés

4.2.1 Relation de dispersion

Comme nous l'avons exprimé plus haut, la matrice de transfert pour une bicouche est donnée par :

$$\tau = \begin{pmatrix} \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 - \frac{Z_1}{Z_2} \sin \alpha_1 \sin \alpha_2 & \frac{\cos \alpha_2 \sin \alpha_1}{\omega Z_1} + \frac{\cos \alpha_1 \sin \alpha_2}{\omega Z_2} \\ -\omega Z_1 \cos \alpha_2 \sin \alpha_1 - \omega Z_2 \cos \alpha_1 \sin \alpha_2 & \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 - \frac{Z_2}{Z_1} \sin \alpha_1 \sin \alpha_2 \end{pmatrix}. \quad (4.20)$$

Les deux valeurs propres de cette matrice sont :

$$\lambda_{1,2} = t_a \pm \sqrt{t_a^2 - 1} \quad (4.21)$$

Où t_a est la demi-trace de la matrice de transfert. Si $t_a^2 < 1$, les deux valeurs propres sont complexes et conjuguées et on peut écrire $\lambda_{1,2} = e^{\pm iqd}$; ceci correspond à la propagation d'une onde plane de vecteur d'onde q . La relation de dispersion qui relie ce vecteur d'onde q à la fréquence ω est donnée par $\cos(qd) = 1/2 (\lambda + \lambda^{-1})$ soit :

$$\cos(qd) = \cos\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \cos\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right) - \frac{1}{2} \left(\frac{Z_1}{Z_2} + \frac{Z_2}{Z_1}\right) \sin\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \sin\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right). \quad (4.22)$$

Si $t_a^2 \geq 1$, les solutions du polynôme caractéristique (les valeurs propres) sont réelles. Les fréquences pour lesquelles cette condition est satisfaite définissent des bandes interdites (ou des gaps si on choisit la terminologie des semiconducteurs). Si la surface du multicouche est sollicitée dans les fréquences situées dans une bande interdite, seules les ondes correspondant à $|\lambda| < 1$ seront prises en compte car on a un empilement semi-infini et on considère qu'aucune onde n'est réfléchiée à son extrémité. Ce sont des ondes évanescentes qui s'amortissent sur une distance caractéristique $d/\ln(|\lambda|)$. Dans le cas où $t_a^2 = 1$, on se place à la limite entre un gap et une partie continue de la courbe de dispersion ; c'est pourquoi, on a alors un mode dit "de bord de bande".

La relation de dispersion (4.22) est représenté sur la figure 4.3 pour un système multicouches périodique alterné Cu/W , pour lequel les épaisseurs des couches sont respectivement de 4 et 8 nm pour le cuivre et le tungstène. Cette représentation est dite "repliée". Les bandes interdites impaires ($q = 1$) sont dites "de bord de zone" et les bandes interdites paires ($q = 0$) sont dites de "centre de zone".

4.2.2 Modes localisés

Dans chaque bande interdite, il existe une fréquence $\omega = \omega_l$ pour laquelle $\tau_{a,21}(\omega_l)$ est nul. Sous certaines conditions, ceci peut conduire à l'apparition d'une singularité dans l'expression de $u_0(\omega)$ (eq. (4.19)).

Lorsque $\tau_{21} = 0$, alors τ_{11} est égal à une valeur propre et τ_{22} est égal à son inverse. On distingue deux cas :

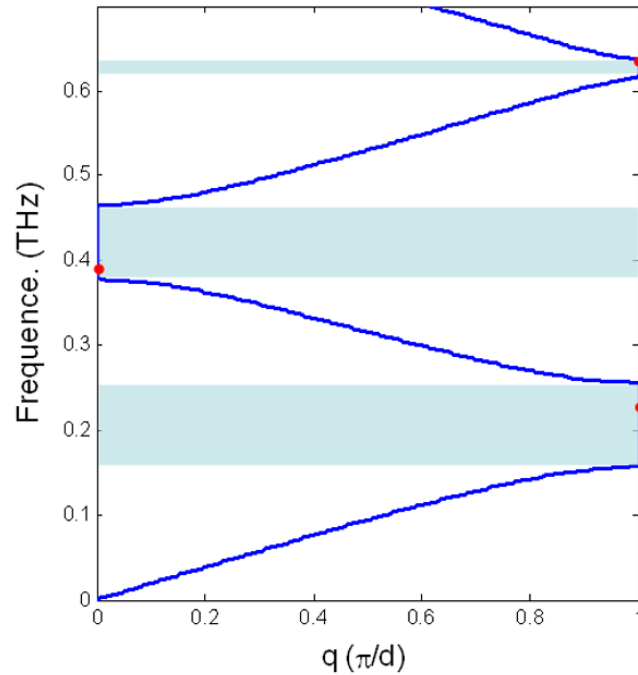


FIG. 4.3 – Courbe de dispersion calculée pour un système multicouches périodique alterné : Cu/W. Les couches ont des épaisseurs de 4 nm (cuivre) et 8 nm (tungstène). Les modes localisés en surface sont représentés dans les bandes interdites par des points rouges.

1. $|\tau_{11}| > 1$;
2. $|\tau_{11}| < 1$.

Dans un cas, $u_0(\omega)$ présente une singularité mais pas dans l'autre. Nous allons maintenant étudier ces deux cas de figure :

1. Si $|\tau_{11}| > 1$, alors $\tau_{22} = \lambda$ et $\tau_{11} = \lambda^{-1}$. Or le polynôme caractéristique de la matrice de transfert est

$$(\lambda - \tau_{11})(\lambda - \tau_{22}) = \tau_{12}\tau_{21}$$

donc la quantité $\frac{\lambda - \tau_{22}}{\tau_{21}}$ qui apparaît dans l'expression de u_0 peut s'écrire :

$$\frac{\lambda - \tau_{22}}{\tau_{21}} = \frac{\tau_{12}}{\lambda - \tau_{11}}. \quad (4.23)$$

Soit

$$\frac{\tau_{12}}{\lambda - \tau_{11}} = \frac{\frac{\sin(\alpha_1)\cos(\alpha_2)}{\omega Z_1} + \frac{\sin(\alpha_2)\cos(\alpha_1)}{\omega Z_2}}{\lambda - \lambda^{-1}} = \frac{\sin(\alpha_1)\cos(\alpha_2)(Z_2^2 Z_1^2)}{\omega Z_1 Z_2^2 (\lambda - \lambda^{-1})}$$

Cette quantité est finie et $u_0(\omega)$ ne présente donc pas de singularité si $|\tau_{11}| > 1$.

2. **Si au contraire** $|\tau_{11}| < 1$, alors $\tau_{11} = \lambda$ et $\tau_{22} = \lambda^{-1}$. Dans ce cas, $\frac{\lambda - \tau_{22}}{\tau_{21}}$ présente une singularité. Dans ce cas, on peut calculer les valeurs propres correspondant au mode localisé. En effet, $\tau_{21} = 0$ donc on a

$$-\frac{Z_1}{Z_2} = \frac{\sin \alpha_2 \cos \alpha_1}{\sin \alpha_1 \cos \alpha_2}$$

et on en déduit les valeurs propres λ et λ^{-1} :

$$\begin{aligned} \lambda &= \tau_{11} = \frac{\cos \alpha_1}{\cos \alpha_2} \\ \lambda^{-1} &= \tau_{22} = \frac{\cos \alpha_2}{\cos \alpha_1} \end{aligned}$$

La condition $|\tau_{11}| < 1$ équivaut à $Z_1 < Z_2$. Les deux conditions nécessaires à l'existence de modes localisés sont donc :

1. $\tau_{a,21}(\omega_l) = 0$
2. $Z_1 < Z_2$

Si ces conditions sont satisfaites, alors le déplacement à la surface de l'empilement admet une singularité en $\omega = \omega_l$. On développe donc au premier ordre au voisinage de ω_l .

$$\frac{\partial \tau_{21}}{\partial \omega} = \frac{\omega \partial \left(Z_1 \sin \left(\frac{\omega d_1}{v_1} \right) \cos \left(\frac{\omega d_2}{v_2} \right) + Z_2 \cos \left(\frac{\omega d_1}{v_1} \right) \sin \left(\frac{\omega d_2}{v_2} \right) \right)}{\partial \omega} + \frac{\tau_{21}}{\omega}$$

En ω_l , on a finalement :

$$\left. \frac{\partial \tau_{21}}{\partial \omega} \right|_{\omega_l} = -\omega_l \left(\rho_1 d_1 \frac{\cos \alpha_2}{\cos \alpha_1} + \rho_2 d_2 \frac{\cos \alpha_1}{\cos \alpha_2} \right).$$

ainsi, le déplacement à la surface $u_0(\omega)$ tend vers :

$$\lim_{\omega \rightarrow \omega_l} u_0(\omega) = \frac{(1 - \lambda^2) \left(\frac{1}{(\omega - \omega_l)^p} - i\pi \delta(\omega - \omega_l) \right)}{\omega_l (\rho_1 d_1 \lambda^{-1} + \rho_2 d_2 \lambda) (1 - \lambda e^{-\alpha d})} \tilde{\sigma}(\omega_l). \quad (4.24)$$

Fréquence des modes

Comme nous avons pu le voir, suivant la valeur de la trace t_a de la matrice de transfert, on peut se trouver dans des bandes de fréquences interdites (gaps) ou aux bords de celles-ci. Le tableau suivant récapitule les conditions d'existence des modes localisés et

type de mode	condition nécessaire d'existence	relation de fréquence
localisé	$\tau_{a,21} = 0$	$r \tan \alpha_1 + \tan \alpha_2 = 0$
bord de bande interdite ¹	$t_a^2 = 1$	$\tan \frac{\alpha_1}{2} + r^{\pm 1} \tan \frac{\alpha_2}{2} = 0$ (1) $\tan \frac{\alpha_1}{2} \tan \frac{\alpha_2}{2} - r^{\pm 1} = 0$ (2)

TAB. 4.1 – Relations fréquentielles pour les modes localisés et les modes de bord de bande interdites.

des modes de bords de zone (avec $r = \frac{Z_1}{Z_2}$ et $\alpha_i = q_i d_i$).

Pour un empilement périodique alterné donné, ces relations permettent de prévoir la fréquence des modes localisés et des modes de bords de gap. Les valeurs propres ainsi que les fréquences des modes localisés ne dépendent que de l'épaisseur des couches constituant l'empilement et de leur impédance acoustique.

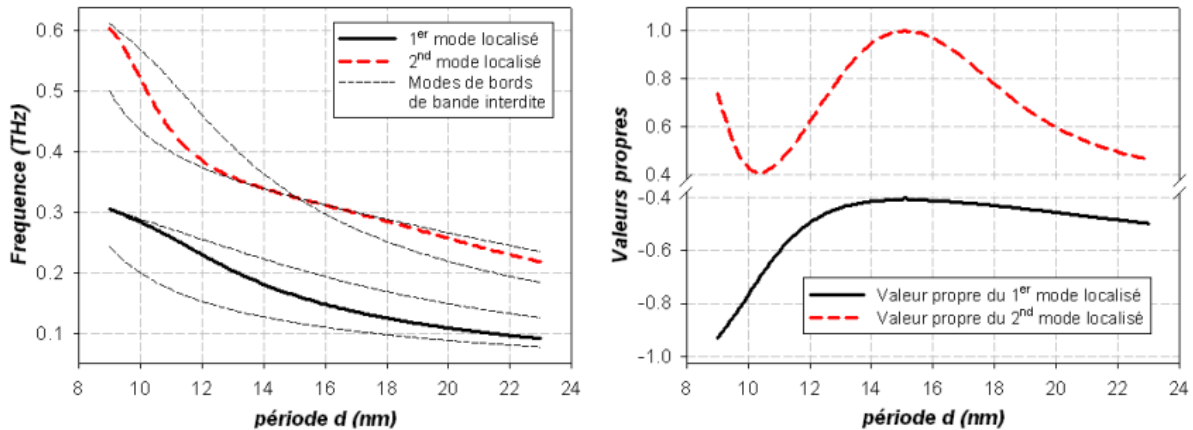


FIG. 4.4 – Evolution des fréquences des modes localisés (traits pleins), des modes de bords de bandes interdites (traits pointillées) et des valeurs propres associées aux modes localisés en fonction de l'épaisseur de la période ($d = d_1 + d_2$). Les courbes ont été calculées pour une période Cu/W avec $d_W = 8 \text{ nm}$ et d_{Cu} variant de 1 à 15 nm.

On peut donc tracer leur évolution en fonction de la période (cf. figure 4.4). Ici, on a calculé les fréquences remarquables pour des empilements Cu/W . On a fixé l'épaisseur de la couche de tungstène $d_2 = 8 \text{ nm}$ puis on a fait varier l'épaisseur d_1 de la couche de cuivre de 1 à 15 nm. Nous avons représenté les courbes correspondants aux deux pre-

¹les équations (1) et (2) correspondent respectivement aux modes de bord de gaps pairs et impairs. Le signe de la puissance de r correspond quant à lui aux bords supérieurs (+) et inférieurs (-).

mières bandes interdites. Les courbes en trait plein indiquent l'évolution de fréquence des modes localisés et les courbes pointillées montrent celle des modes de bord de bande.

Le tableau 4.2 donne les valeurs des fréquences calculées pour un échantillon Cu/W avec 2 nm de cuivre et 8 nm de tungstène soit une période de 10 nm.

Cu_2/W_8	mode localisé	modes de bords de zone
1 ^{er} gap de bord de zone	286	204 290
1 ^{er} gap de centre de zone	526	441 571
2 ^e gap de bord de zone	733	710 830

TAB. 4.2 – Fréquences (en GHz) correspondant aux différents modes remarquables pour un échantillon multicouche Cu/W de période de 10 nm avec un rapport d'épaisseur $r = 1/4$.

La figure 4.5 montre le module du spectre simulé de $\Delta r/r_0$ dans ce cas. Pour plus de lisibilité, on a reporté une courbe de dispersion retournée afin de mettre les bandes interdites en évidence. Sur le spectre, on peut observer les raies correspondant aux différents modes excités.

4.3 Propagation basse-fréquence - Milieux effectifs

Dans certains cas, il est utile de considérer l'ensemble d'un empilement comme une unique couche dont les propriétés optiques et acoustiques sont fonction de celles des couches qui constituent la structure multicouches. On parle alors de milieu effectif. Toutefois, on ne peut pas toujours assimiler un empilement à un milieu effectif; en effet, pour cela il faut que la longueur d'onde acoustique soit supérieure à la plus grande des couches de l'empilement. Le modèle du milieu effectif est particulièrement adapté lorsque l'on étudie des échantillons dont le nombre de couches est élevé et que celles-ci sont fines par rapport à la longueur d'onde acoustique. Les conditions d'utilisation de ce modèle simple pour les propriétés optiques et acoustiques sont les suivantes :

$$\begin{cases} kd \ll 1 \\ qd \ll 1 \end{cases} \quad (4.25)$$

où k et q sont respectivement les vecteurs d'onde électromagnétiques et acoustiques. d est l'épaisseur de la bicouche pour l'empilement périodique ($d = d_1 + d_2$).

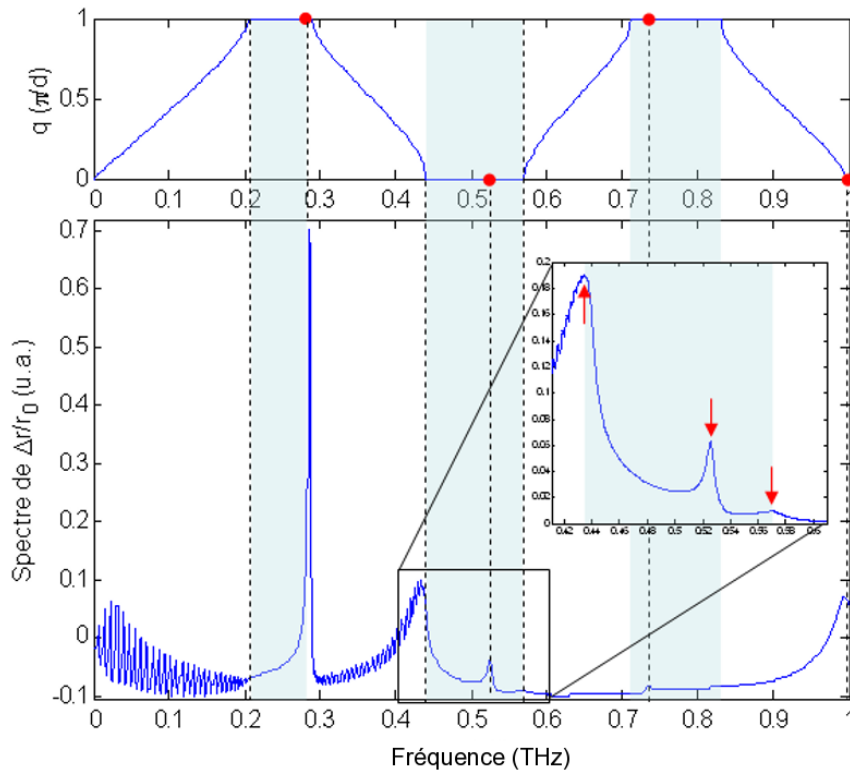


FIG. 4.5 – Relation de dispersion et spectre simulé de $\Delta r/r_0$ avec $d_{Cu} = 2$ nm et $d_W = 8$ nm soit $\Lambda = 10$ nm.

4.3.1 Propriétés acoustiques

Pour le milieu effectif acoustique, on a la condition $qd \ll 1$. Dans ce cas, la matrice de transfert d'une couche simple donnée par la formule (3.9) devient :

$$\tau = \begin{pmatrix} 1 & d/C \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (4.26)$$

où d est l'épaisseur de la couche et C la constante élastique longitudinale (C_{33}). Pour une période, on sait que la matrice de transfert de la bicouche est égale au produit des matrices de transfert des couches qui la composent. Par identification, on en déduit que pour le module élastique longitudinal C (correspondant à C_{33}) :

$$\frac{d}{C} = \frac{d_1}{C_1} + \frac{d_2}{C_2}. \quad (4.27)$$

où d , d_1 et d_2 sont respectivement les épaisseurs de la bicouche et des couches 1 et 2 qui la composent. De même pour C , C_1 et C_2 . La densité effective s'obtient par moyenne pondérée avec l'épaisseur et on a :

$$\rho = \frac{\rho_1 d_1 + \rho_2 d_2}{d} \quad (4.28)$$

4.3.2 Propriétés optiques

De la même façon, on peut également parler de milieu effectif pour les propriétés optiques, si la condition $kd \ll 1$ est respectée. En prenant le développement aux grandes longueurs d'ondes ($kd \ll 1$), on obtient une constante diélectrique effective ε :

$$\varepsilon d = \varepsilon_1 d_1 + \varepsilon_2 d_2. \quad (4.29)$$

En comparant les expressions du changement relatif de réflectivité pour une couche unique et pour un empilement périodique semi-infini, on peut aussi déterminer les variations de la constante diélectrique effective par rapport à la déformation, $\frac{\partial \varepsilon}{\partial \eta}$.

$$\frac{d}{C} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \eta} = \left(\frac{d_1}{C_1} \frac{\partial \varepsilon_1}{\partial \eta} + \frac{d_2}{C_2} \frac{\partial \varepsilon_2}{\partial \eta} \right) + \left(\frac{d_1 d_2}{d} (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) \left(\frac{1}{C_1} - \frac{1}{C_2} \right) \right). \quad (4.30)$$

Le premier terme est une moyenne pondérée des valeurs pour les couches 1 et 2. Le deuxième terme vient du déplacement des interfaces dû aux perturbations acoustiques.

Afin d'illustrer ces considérations sur les milieux effectifs, on a représenté sur la figure 4.6 deux calculs de changement relatif de réflectivité : d'une part un échantillon multicouches de *Mo*(110)/*Ni*(111) et d'autre part une couche effective équivalente. Le multicouche est périodique alterné avec 100 périodes de 2 nm d'épaisseur avec un rapport d'épaisseur $r = d_1/d_2$ unité pour une épaisseur totale de 200 nm. On place le molybdène en surface de l'échantillon afin d'éviter les modes localisés. La couche effective équivalente a la même épaisseur et les paramètres utilisés pour la simulation ont été calculés à partir de la structure multicouche précédemment décrite pour avoir les caractéristiques du milieu effectif correspondant.

On observe que les échos "basse fréquence" se propagent comme s'ils ne voyaient pas l'empilement et se réfléchissent sur le substrat. Dans le même temps, les échos issus de la propagation dans une couche effective arrivent à la surface avec les mêmes retards.

Afin de bien illustrer le propos, la figure 4.7 montre les parties réelles simulées des spectres de changement relatif de réflectivité. Là encore, on peut voir que le spectre correspondant à la structure multicouche (courbe supérieure) présente une bande interdite autour de 0,35 THz alors que celui-ci est absent du spectre de la couche unique. Ici, il s'agit d'un multicouche *Mo*/*Ni* de rapport d'épaisseur d_1/d_2 égal à 1/2 avec 20 périodes de 9 nm.

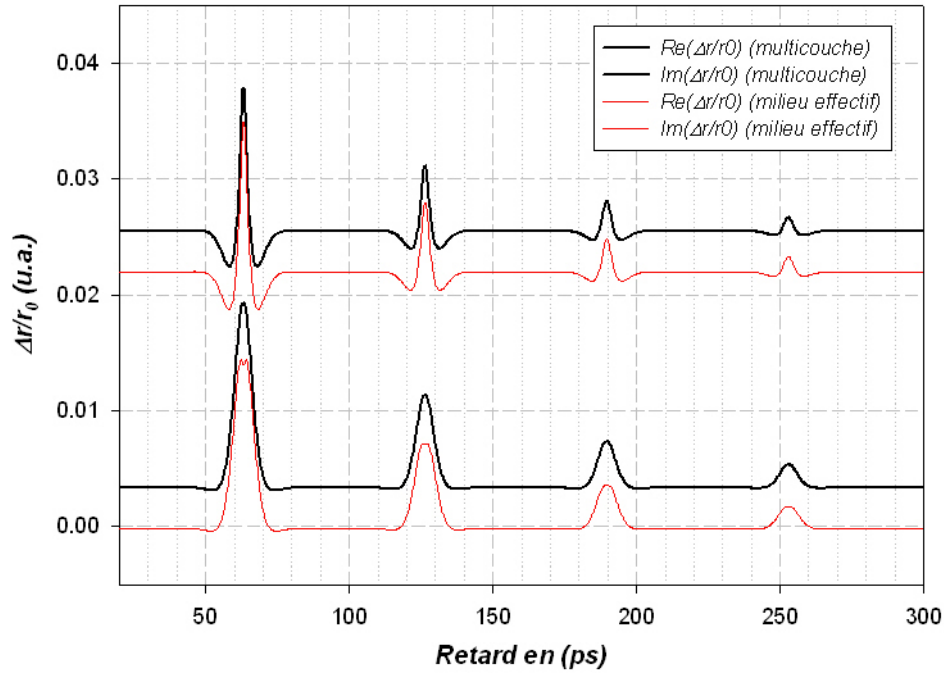


FIG. 4.6 – Parties réelles et imaginaires simulées du changement relatif de réflectivité pour un multicouche (courbes foncées) et pour le milieu effectif correspondant (courbes claires).

4.4 Influence de couches d'interface

Lors de l'élaboration d'échantillons multicouches, la méthode de dépôt peut occasionner de l'interdiffusion entre les couches. Il se forme alors un alliage interfacial avec des propriétés élastiques et optiques intermédiaires.

Si on se place dans l'approximation des grandes longueurs d'ondes (propagation basse fréquence), alors on peut considérer l'empilement comme une couche unique de propriétés intermédiaires entre celles de chaque type de couche. Nous avons vu dans la section §4.3.1 que la constante élastique effective est donnée par $\frac{d}{C} = \frac{d_1}{C_1} + \frac{d_2}{C_2}$, en tenant compte des couches d'interface 1 – 2 ; on a la relation suivante :

$$\frac{d}{C} = \frac{d_1}{C_1} + \frac{d_2}{C_2} + 2\frac{d_i}{C_i} \quad (4.31)$$

On peut avoir une estimation de l'épaisseur des couches d'interface, en mesurant les constantes élastiques effectives sur une série d'échantillons multicouches. Ceci sera abordé dans la section correspondante de la partie 3 : Résultats expérimentaux.

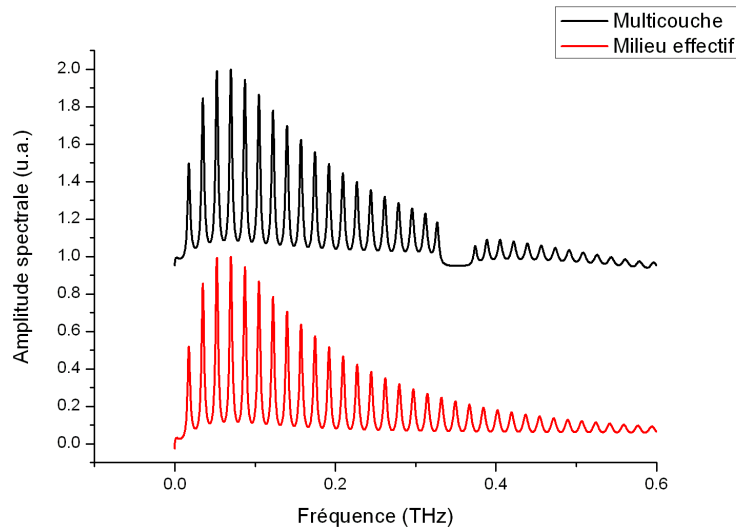


FIG. 4.7 – Parties réelles du spectre du changement relatif de réflectivité pour un multicouche et pour le milieu effectif correspondant.

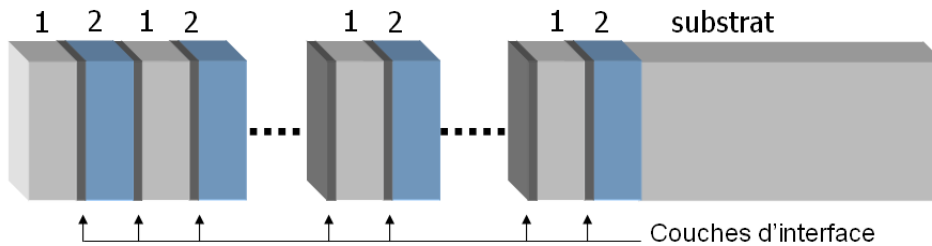


FIG. 4.8 – Présence de couches d'interface dans un empilement.

4.5 Transduction haute fréquence à l'aide de structures multicouches

Être capable d'exciter des modes quasi-monochromatiques de fréquences très élevées entraîne inévitablement l'envie de tenter de faire de la transduction, c'est-à-dire d'exciter des ondes élastiques à des fréquences données. Il faut trouver comment passer d'un simple empilement multicouche à un transducteur. Si l'on veut faire de la transduction à une fréquence donnée, il s'agit pour cela d'utiliser un empilement multicouche périodique pour lequel les épaisseurs et les impédances acoustiques des constituants sont ajustées pour que la fréquence des modes localisés corresponde à la fréquence que l'on veut émettre.

Si le nombre de périodes dans la structure est infini, alors les modes localisés ont une amplitude infinie et sont parfaitement monochromatiques ; en pratique, plus le nombre de période est grand et plus la raie spectrale correspondant au mode localisé est fine. Dans le cas de la transduction, la problématique est la suivante : il faut parvenir à transmettre des modes résonnants localisés à la surface de la structure et dont l'amplitude décroît avec la profondeur dans l'empilement. Il est donc nécessaire d'empiler suffisamment de couches pour que l'absorption de l'impulsion laser puisse engendrer les ondes ultrasonores à la fréquence du mode localisé. Il ne faut cependant pas avoir trop de couches sinon le caractère localisé du mode l'emporte et l'énergie reste confinée en surface. Or il importe d'utiliser ce qu'il reste d'énergie pour le transmettre. Pour passer d'un simple empilement à un transducteur, il faut donc définir un nombre optimal de périodes pour lequel l'énergie acoustique transmise sera maximale.

Expérimentalement, on utilisera un échantillon tel que celui décrit sur la figure 6.16 où l'excitation sera assurée par un empilement multicouche. Sur l'autre face, un film d'aluminium jouera le rôle de transducteur pour le processus de détection.

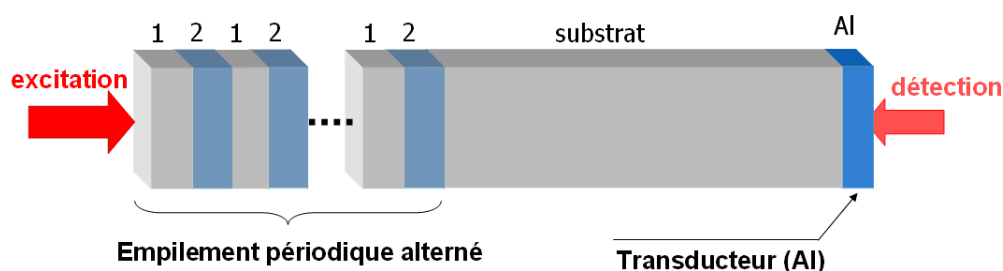


FIG. 4.9 – Transmission à travers un échantillon. On excite (pompe) du côté de l'empilement et on tente de détecter sur l'autre face avec une couche d'aluminium jouant le rôle de transducteur.

Dans un premier temps, nous décrirons le champ acoustique émis par une structure multicouche au nombre de période fini, puis nous étudierons la transmission de l'onde à travers un substrat en vue de sa détection sur l'autre face.

4.5.1 Empilement périodique d'épaisseur finie

On considère un empilement multicouche périodique d'épaisseur finie. S'il y a n couches sur le substrat et τ_i la matrice de transfert pour la couche i , alors on a la relation suivante :

$$\begin{pmatrix} u_s \\ \sigma_s \end{pmatrix} = \tau_n \dots \tau_1 \begin{pmatrix} u_0 \\ 0 \end{pmatrix} + \sum_{p=1}^{n-1} \tau_n \dots \tau_{p+1} \begin{pmatrix} \hat{u}_p \\ \hat{\sigma}_p \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \hat{u}_n \\ \hat{\sigma}_n \end{pmatrix} \quad (4.32)$$

qui donne le vecteur acoustique entre le substrat et l'empilement. On pose :

$$T = \tau_n \dots \tau_1 \quad \text{et} \quad \begin{pmatrix} \hat{U} \\ \hat{\Xi} \end{pmatrix} = \sum_{p=1}^{n-1} \tau_n \dots \tau_{p+1} \begin{pmatrix} \hat{u}_p \\ \hat{\sigma}_p \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \hat{u}_n \\ \hat{\sigma}_n \end{pmatrix}.$$

Dans ce cas, on peut relier les déplacements de part et d'autre de l'empilement. Soit u_1 le déplacement de la surface de l'empilement (1^e interface); on peut montrer qu'il s'écrit :

$$u_1 = \frac{i\omega Z_s \hat{U} - \hat{\Xi}}{T_{21} - i\omega Z_s T_{11}}. \quad (4.33)$$

Quant au déplacement à l'interface entre la dernière couche de l'empilement et le substrat, on le note u_s et on l'écrit de la manière suivante :

$$u_s = \frac{T_{21} \hat{U} - T_{11} \hat{\Xi}}{T_{21} - i\omega Z_s T_{11}}. \quad (4.34)$$

Dans le cas d'un empilement périodique, les fréquences telles que $\tau_{21} = 0$ annulent T_{21} ; de plus $T_{11} = \lambda^{n/2}$ et $T_{22} = \lambda^{-n/2}$ avec $\lambda < 1$ si $Z_1 < Z_2$. On a alors :

$$u_1 = -\lambda^{-n/2} \left(\hat{U} - \frac{\hat{\Xi}}{i\omega Z_s} \right), \quad (4.35)$$

si $\lambda < 1$, pour un nombre de couches croissant u_1 diverge et on a un mode localisé sinon u_1 tend vers zéro,

$$u_s = \frac{\hat{\Xi}}{i\omega Z_s} \quad (4.36)$$

et

$$\hat{\Xi} \propto \lambda^{-n/2}, \quad (4.37)$$

u_s diverge donc également pour un mode localisé! Ce résultat peut paraître paradoxal car le mode étant localisé, son énergie devrait rester confinée dans les premières couches. En fait, l'amplitude u_1 de ce mode diverge en λ^{-n} et décroît avec la distance selon $\lambda^{n/2}$. Cependant, il n'est pas choquant qu'une composante spectrale diverge, en effet lorsque le nombre de périodes augmente, alors l'amplitude du déplacement croît tandis que la largeur de la raie décroît. Il n'y a donc pas là d'incohérence physique tant que l'énergie correspondant à cette raie ($\int |u(\omega)|^2 d\omega$) ne diverge pas. La figure 4.10 présente les raies spectrales en puissance calculées autour de la fréquence du premier mode localisé

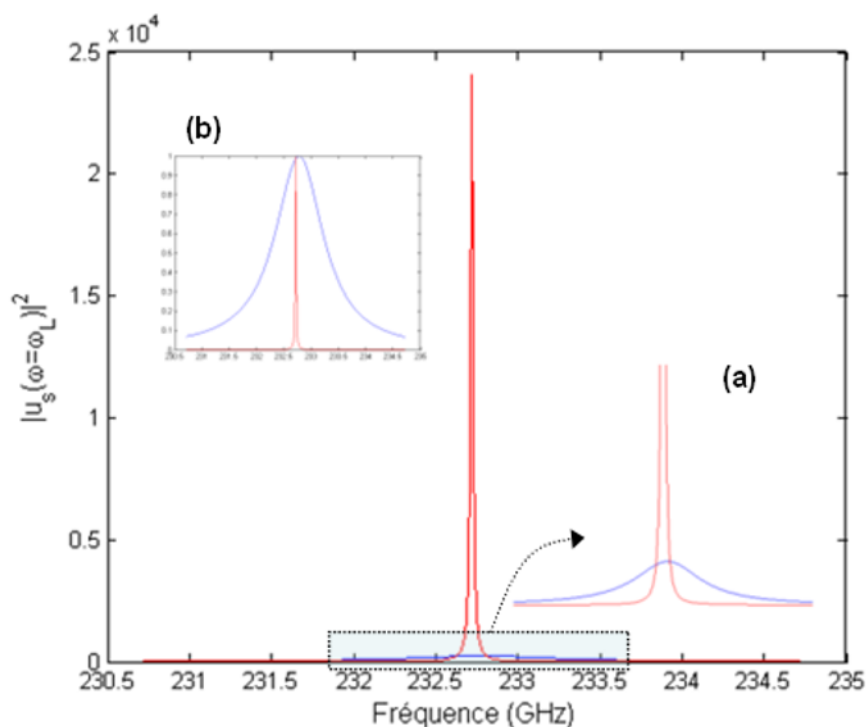


FIG. 4.10 – Raies spectrales (en puissance) autour du premier mode localisé pour un empilement Cu/W de 12 nm de période avec un rapport d'épaisseur de 1/2. On compte deux raies, la plus large correspond à un empilement de 3 périodes et la plus fine à un empilement de 6 périodes. (a) - Grossissement de la raie la plus large. (b) - Raies spectrales normalisées.

pour deux empilements dont seul le nombre de périodes diffère. Il s'agit d'un échantillon Cu/W dont la période compte 12 nm d'épaisseur avec un rapport d'épaisseur de 1/2. La figure présente deux encarts qui mettent en évidence l'amincissement des raies lorsque le nombre de périodes augmente.

Toujours en prenant le cas d'un échantillon Cu/W dont la période compte 12 nm d'épaisseur avec un rapport d'épaisseur de 1/2, nous avons calculé les déplacements acoustiques aux interfaces pour une série d'échantillons pour laquelle nous avons fait varier le nombre de période. Nous avons pu vérifier que les amplitudes spectrales des déplacements en surface et à l'interface avec le substrat divergent avec le nombre de périodes. Nous avons également pu vérifier que bien que le déplacement acoustique à l'interface empilement/substrat diverge, l'énergie acoustique correspondante ne diverge pas avec le nombre de périodes mais atteint une valeur limite (cf. figure 4.11).

En effet, à partir d'un certain nombre de couche, la structure n'absorbe pas plus

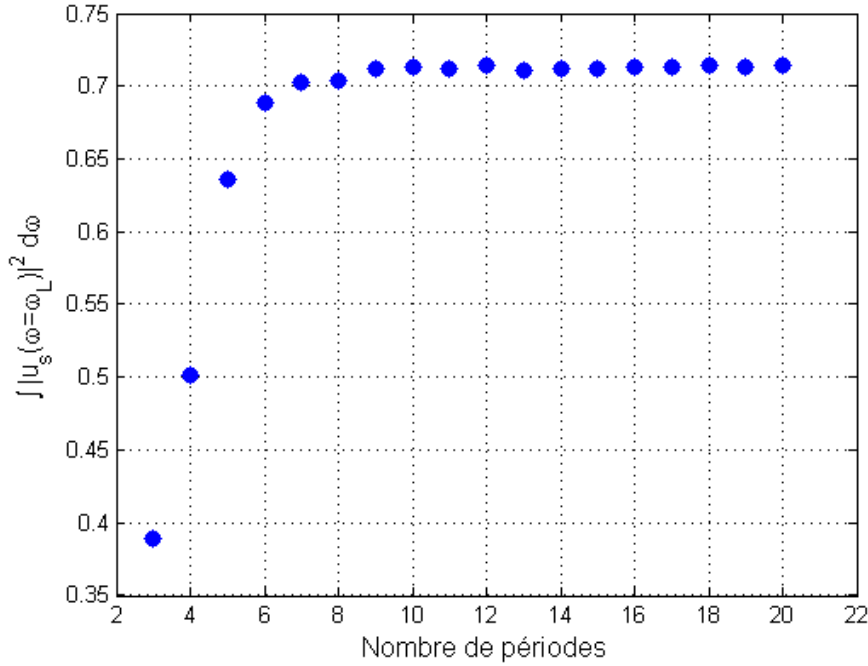


FIG. 4.11 – Densités spectrales de puissances à $\omega = \omega_L$ en fonction du nombre de périodes.

d'énergie électromagnétique même si le nombre de couche est plus important. Il semble donc qu'il existe un nombre optimal de période pour faire de la transduction. Lorsque l'énergie acoustique pour le mode localisé atteint sa valeur limite, on a empilé assez de périodes. En ajouter ne ferait que diminuer les chances de transmettre de l'énergie à la fréquence du mode localisé puisque leur amplitude décroît avec le nombre de périodes.

4.5.2 Transmission à travers un substrat

Nous avons vu comment exciter et détecter des ondes acoustiques grâce à des structures multicouches. Jusqu'à présent l'excitation et la détection avait lieu sur le même empilement ; dans le but de faire de la transduction, il faut exciter les ondes sur une face et tenter de les détecter sur l'autre face du substrat. Dans les deux cas, il est possible d'utiliser un empilement ; aussi bien pour l'excitation que pour la détection. La figure 4.12 donne un schéma de la situation dans le cas le plus général, c'est-à-dire avec des empilements a priori différents de part et d'autre du substrat.

La partie concernant l'excitation acoustique ne diffère pas de celle que nous avons déjà présentée dans la section §3.2. On connaît donc le champ acoustique qui est émis par le multicouche dans le substrat, en effet il s'agit du vecteur $\begin{pmatrix} u_{N+1} \\ \sigma_{N+1} \end{pmatrix}$ et d'un terme

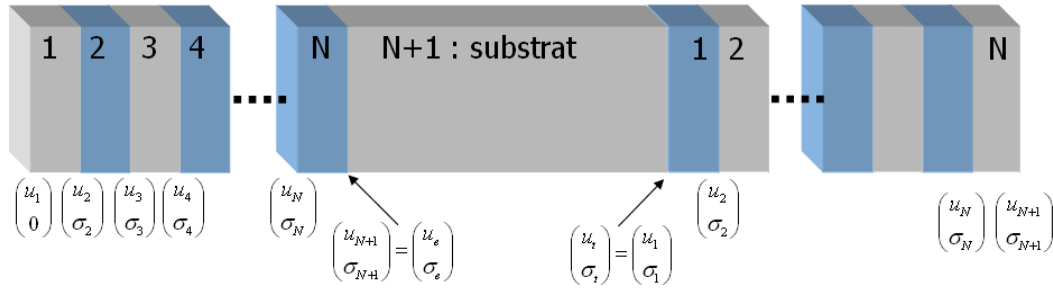


FIG. 4.12 – Excitation et détection par des multicouches (éventuellement différents) déposés de chaque côté d'un substrat.

thermoacoustique (eq. (3.20)). Cependant, dans la mesure où l'on considère un empilement de couches métalliques, on peut négliger ce terme. Dans la suite, on notera le vecteur acoustique émis par l'empilement $\begin{pmatrix} u_e \\ \sigma_e \end{pmatrix}$. On suppose le substrat suffisamment large pour qu'aucune onde ne revienne de l'autre face du substrat. Ceci entraîne $B_{N+1} = 0$.

Pour la détection — sur l'empilement de la face opposée — il s'agit de déterminer la succession de vecteurs acoustiques à chaque interface pour pouvoir utiliser la formulation générale du changement relatif de réflectivité (eq. (3.37), page 73). Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, on peut exprimer le déplacement à la surface de l'empilement en fonction du vecteur acoustique à n'importe quelle interface à condition de connaître le déplacement entre l'empilement et le substrat. Ici, on connaît le déplacement et la contrainte à l'interface entre le multicouche de détection et le substrat, car on connaît le vecteur acoustique émis par le multicouche d'excitation. Le vecteur acoustique à l'interface entre le substrat et l'empilement de détection est donné par le vecteur émis de l'autre côté du substrat corrigé avec un facteur de phase dû au parcours au travers du substrat. On notera ce vecteur $\begin{pmatrix} u_t \\ \sigma_t \end{pmatrix}$ (champ transmis).

À l'interface entre le multicouche de détection et le substrat, on a :

$$\begin{cases} u_1 = A + B \\ \sigma_1 = i\omega Z(A - B) \end{cases} \quad (4.38)$$

Les constantes A et B sont les amplitudes de champs acoustiques à cette interface. A est connu, car il est donné par le vecteur émis par le premier multicouche (en tenant compte de la traversée du substrat). Soit T la matrice de transfert de l'ensemble du multicouche (produit des matrices de transfert des couches qui composent l'empilement) de détection (voir figure 4.12), alors on peut écrire :

$$\begin{pmatrix} u_t \\ \sigma_t \end{pmatrix} = T \begin{pmatrix} u_{N+1} \\ \sigma_{N+1} \end{pmatrix} \quad (4.39)$$

La surface de la structure est libre, la contrainte à sa surface est donc nulle et selon les notations données par la figure 4.12, on a : $\sigma_{N+1} = \mathbf{0}$ et

$$T \begin{pmatrix} u_{N+1} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} u_t \\ \sigma_t \end{pmatrix} \quad (4.40)$$

Ce qui équivaut au système :

$$\begin{cases} T_{11}u_{N+1} = u_t \\ T_{21}u_{N+1} = \sigma_t \end{cases} \iff \begin{cases} T_{11}u_{N+1} = A + B \\ T_{21}u_{N+1} = i\omega Z(A - B) \end{cases}$$

soit

$$\begin{cases} B = A \left(\frac{2i\omega Z T_{11}}{T_{21} + i\omega Z T_{11}} - 1 \right) \\ u_{N+1} = \frac{2i\omega Z A}{T_{21} + i\omega Z T_{11}} \end{cases} \quad (4.41)$$

Connaissant le déplacement à la surface de l'empilement, on pourra calculer les vecteurs acoustiques à chaque interface de l'empilement conformément aux méthodes que nous avons décrites précédemment.

4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons traité le cas particulier des multicouches périodiques pour lesquels il est possible de dégager un certains nombre de propriétés intéressantes dues à sa structure. Nous avons vu comment la matrice de transfert acoustique d'une période conduit à une relation de dispersion laissant apparaître des bandes de fréquences interdites, dans lesquelles il est possible — sous certaines conditions — d'exciter et de détecter des modes localisés dont les fréquences peuvent atteindre et même dépasser le Terahertz. Ces conditions d'existence ont été détaillées et ont conduit à des expressions permettant de calculer a priori les fréquences des modes localisés (lorsqu'ils existent) et des modes de bords de gaps. Puis, nous avons aussi abordé les aspects basses-fréquences de la propagation. Pour cela, on utilise un modèle de milieu effectif qui permet d'appréhender l'empilement multicouche comme une couche unique dont les propriétés physiques dépendent naturellement de celles des composants de la période (bicouche). L'influence des couches d'interfaces formées lors de l'élaboration des échantillons multicouches a également été évoquée. Enfin, dans une optique d'approfondissement nous avons mentionné la possibilité de la transduction haute-fréquence grâce aux multicouches périodiques. Dans ce cas, nous avons montré qu'il est possible de dégager un nombre optimal de périodes.

Troisième partie

Résultats expérimentaux

Chapitre 5

Étude de solutions solides Mo_xNi_{1-x}

Sommaire

5.1	Préparation et caractérisation des échantillons	102
5.1.1	Dispositif expérimental	102
5.1.2	Transition cristal/amorphe et structure des alliages Mo_xNi_{1-x}	105
5.2	Acoustique picoseconde dans les alliages	109
5.2.1	Propriétés élastiques	109
5.2.2	Variation de la forme des échos	111
5.2.3	Adhésion entre film et substrat	115
5.3	Conclusion	117

L'étude d'alliages a été motivée par la nécessité de mieux comprendre le comportement des échantillons multicouches. En effet, dans certains cas, on peut observer une chute drastique de la constante élastique effective C_{44} (module de cisaillement) de la structure lorsque la période des systèmes multicouches décroît (voir figure. 5.1).

Une série d'échantillons monocouches a donc été élaborée par le LMP à Poitiers¹ [64]. Pour comprendre ce phénomène, on présente ici des mesures de propriétés optiques et élastiques de films minces métastables de Mo_xNi_{1-x} en fonction de la composition de l'alliage x . Les échantillons ont été obtenus¹ par co-déposition à l'aide d'une méthode dite de "ion beam sputtering" ou d'évaporation. Ils ont une épaisseur de 150 à 300 nanomètres. La structure cristalline et la plage d'amorphisation ont été caractérisées à Poitiers par diffraction des rayons X . Puis nous avons utilisé la technique d'acoustique picoseconde incluant une détection interférométrique pour mesurer la variation de réflectivité des films minces Mo_xNi_{1-x} . La constante élastique C_{33} a été déterminée pour toutes les compositions d'échantillons ($0 \leq x \leq 1$); un adoucissement significatif de la constante élastique C_{33} a été observé pour des compositions x inférieures à 0,28 et supérieures à 0,73 pour lesquelles des solutions solides sursaturées se sont formées. Cette adoucissement mécanique est clairement reliée à l'augmentation progressive du désordre structural et décale la transition de la phase cristalline en phase amorphe pour les seuils critiques $x \simeq 0.28$ et $x \simeq 0.73$. Nous avons ensuite analysé la forme des échos en fonction de la composition de l'alliage. La détermination simultanée des parties réelles et imaginaires de $\Delta r(t)/r_0$ en fonction du temps permet de dégager divers paramètres comme l'indice de réfraction et un coefficient photoélastique (grandeurs complexes) de l'alliage ou un paramètre que l'on relie à l'adhésion entre le film et son substrat.

Par ailleurs, ces alliages métalliques ont une longueur de pénétration optique très courte et la diffusion électronique y est faible. Le modèle du chapitre 1 négligeant ces effets, est adapté à l'étude de ces couches d'alliages.

5.1 Préparation et caractérisation des échantillons

5.1.1 Dispositif expérimental

Les films minces Mo_xNi_{1-x} ont été préparés et caractérisés par C. Jaouen, G. Abadias *et al.* au Laboratoire de Métallurgie Physique de Poitiers [64]. Toutes les mesures ayant servi à caractériser les échantillons ont été effectuées à Poitiers. Les photographies et les figures présentées dans la section §5.1 nous ont été fournies par le LMP.

¹Les échantillons ont été réalisés et caractérisés par C. Jaouen, G. Abadias et al.

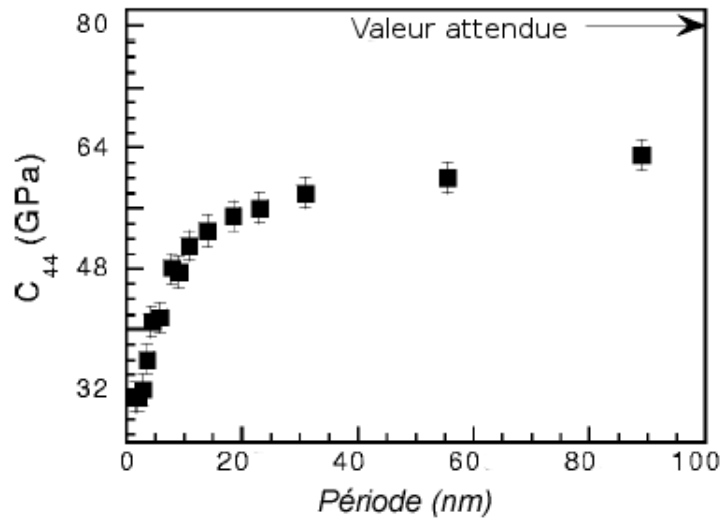


FIG. 5.1 – Variation de la constante élastique effective C_{44} pour des échantillons multicouches Mo/Ni . Elle est déterminée par des expériences de Diffusion Brillouin (BLS : Brillouin Light scattering). La valeur attendue (moyenne de Hill) est de 80 GPa.

Les solutions solides Mo_xNi_{1-x} avec $0 \leq x \leq 1$ ont été préparées par pulvérisation ionique dans une chambre de déposition cryopompée NORDIKO-3000 (en basse pression 10^{-8} Torr) équipée d'une source ionique RF. L'énergie des ions et le courant de faisceau d'argon était respectivement 1200 eV et 80 mA et la pression partielle de l'argon pur à 99.999% pendant le dépôt était $1.5 \cdot 10^{-4}$ Torr. Les alliages Mo_xNi_{1-x} ont été déposés à la température ambiante sur des substrats de Silicium (orientés 001) couverts d'une couche native d'oxyde. Ils sont obtenus par co-pulvérisation cathodique d'un disque de molybdène (pur à 99.95%) de 15 cm de diamètre refroidi par eau sur lequel est placé une double-cible de nickel (pur à 99.97%).

Grâce à la spectroscopie de rayons X, la fraction atomique de molybdène x a été quantifiée et échelonnée de 0 à 1 en ajustant la distance entre les deux pièces de la cible de nickel. La vitesse de déposition varie de 1.1 \AA/s à 0.6 \AA/s avec l'augmentation de x pour une épaisseur totale allant de 150 à 300 nanomètres.

En acoustique picoseconde, la détermination de la constante élastique C_{33} requiert une connaissance précise de l'épaisseur h et de la densité ρ des films minces. Ces deux quantités sont déterminées avec grande précision en utilisant la réflectométrie de rayons X. En effet, la densité du film peut être calculée avec l'angle critique (θ_c) pour la réflexion totale et l'épaisseur déduite des franges d'interférences entre la réflexion spéculaire pour un angle supérieur à θ_c , et les réflexions des rayons X à l'interface film/substrat.

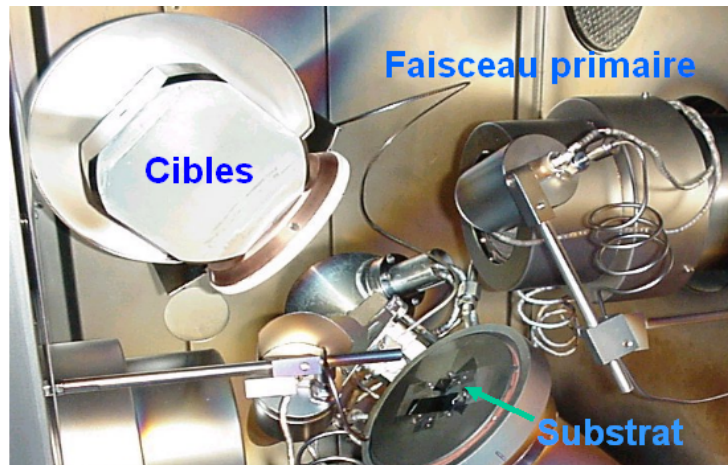


FIG. 5.2 – Chambre de dépôt NORDIKO-3000.

Au delà de la zone de réflexion totale, ces franges sont reliées à l'épaisseur du film mais sont très sensibles à la rugosité de surface et d'interface qui cause une baisse générale de l'intensité réfléchie. Pour extraire une information quantitative sur h et ρ , les données expérimentales sont ajustées grâce à un modèle théorique. Les épaisseurs extraites de ces ajustements sont très précises en comparaison avec les valeurs obtenues pour la densité, qui dépendent fortement des hypothèses prises en compte par le modèle utilisé comme l'homogénéité du film ou le nombre de couches (incluant la surface et les couches d'interface). Pour les films cristallins, la densité des films peut aussi être déterminée grâce à la connaissance de la composition du film, elle-même obtenue par EDX et le volume $V = a_0^3$ de la cellule élémentaire de diffraction, où a_0 est le paramètre de maille libre de contrainte, qui peut être obtenu par diffraction de rayon X .

Des mesures de réflectivité de rayons X (XRR) ont été faites sur un diffractomètre de rayons X à quatre cercles (Seifert XRD 3003, tube de cuivre 2.2 kW avec foyer linéaire de 12×0.4 mm) équipé d'un monochromateur, suivi d'une fente de sélection de 0,1 millimètre de largeur. La surface illuminée sur l'échantillon est maintenue constante sur toute la plage angulaire du scan en utilisant une lame. Une fente fine ($0,02^\circ$ de divergence) a été utilisée devant le détecteur proportionnel. Les courbes de réflexion spéculaire ont été enregistrées pour $\theta - 2\theta$ avec θ variant de 0° à 4° .

La structure cristallographique de ces films codéposés a été examinée grâce à un diffractomètre $\theta - \theta$ (Siemens D5005) fonctionnant à 40 kV et 30 mA et équipé d'un second monochromateur sélectionnant la radiation K_α du cuivre Cu ($\lambda = 1.5418$). Les scans de diffraction de rayons X (XRD) ont été enregistrés pour une configuration conventionnelle en $\theta - 2\theta$ en confinant le vecteur de diffusion selon la direction de croissance.

La détermination des contraintes a été obtenue par diffraction de rayons X en utilisant la méthode $\sin^2\Psi$, où Ψ est l'angle entre la surface de l'échantillon et la normale aux plans de diffusion [66]. Les mesures ont été faites sur un diffractomètre à quatre cercles utilisant une source à rayons X en cuivre avec un foyer ponctuel de $1 \times 1 \text{ mm}^2$. Plus de détails sur l'analyse de contrainte par diffraction de rayons X sont disponibles dans l'article d'Abadias et al [67].

La rugosité de surface a été observée au microscope à force atomique (AFM) ; les échantillons ont été scannés dans l'air avec une pointe de silicium en mode tapping. Les images AFM au-delà de 1×1 et $2 \times 2 \text{ }\mu\text{m}^2$ avec une résolution de 512×512 pixels ont été utilisées pour calculer la rugosité moyenne de surface (rms).

5.1.2 Transition cristal/amorphe et structure des alliages $\text{Mo}_x\text{Ni}_{1-x}$

La figure 5.3.A montre l'évolution du scan XRD $\theta - 2\theta$ pour les alliages codéposés $\text{Mo}_x\text{Ni}_{1-x}$ en fonction de x ; les pics de diffraction correspondent respectivement aux structures cc et cfc .

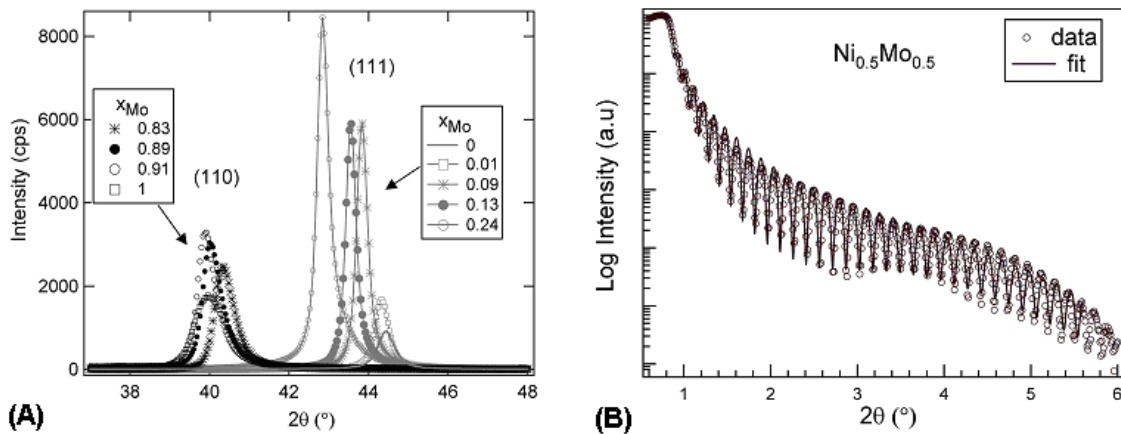


FIG. 5.3 – (A) - Scans XRD pour les films codéposés $\text{Mo}_x\text{Ni}_{1-x}$ en fonction de la composition x . (B) - Scan XRR d'un alliage $\text{Ni}_{0.5}\text{Mo}_{0.5}$ déposé sur Silicium. Les données sont ajustées avec un modèle à trois couches : une couche de surface oxydée ($\rho = 3.5 \text{ g/cm}^3$, $h = 1.2 \text{ nm}$), une couche de $\text{Mo}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}$ ($\rho = 5.7 \text{ g/cm}^3$, $h = 54 \text{ nm}$) et une couche interfaciale ($\rho = 3.3 \text{ g/cm}^3$, $h = 2.1 \text{ nm}$).

Le scan montre une réflexion unique (110) autour de 40° pour $0.73 \leq x \leq 1$ (alliages riches en Mo) et une réflexion unique (111) autour de 44° pour $0 \leq x \leq 0.28$ (alliages riches en Ni). Cela signifie que les solutions solides de structures cc et cfc sont respectivement formées pour $0.73 \leq x \leq 1$ et $0 \leq x \leq 0.28$. Aucune séparation de phase n'est jamais observée lors des analyses de diffraction de rayons X . Pour $0.28 \leq x \leq 0.73$, un

”pic” de très faible intensité et très large est observé pour $2\theta \simeq 43^\circ$ (non représenté sur la figure), ce qui est caractéristique des échantillons amorphes. Des échantillons amorphes sont donc obtenus par codéposition pour $0.28 \leq x \leq 0.73$. Les limites de solubilité observées dans les alliages codéposés sont beaucoup plus grandes que celles correspondant aux conditions d’équilibre thermodynamique, $x_{Mo} \simeq 0.13$ et $x_{Ni} \simeq 0$ [68]. On peut donc penser que la copulvérisation permet de stabiliser des films minces de solutions solides cristallines *cc* et *cfc* supersaturées. Dans cette étude, la transition amorphe du système Mo-Ni est située entre 28 et 73% de Molybdène, ce qui est proche des valeurs observées pour des multicouches Mo/Ni (25-75% de *Mo*) pour des réactions à l’état solide, valeur rapportée par Zhang et al [69] ou bien en dynamique moléculaire (21-75% de *Mo*) [71]. Les alliages amorphes ont également été observés pour 35-65% de molybdène après mélange par faisceaux d’ions (ion beam mixing) [72].

Il est intéressant de noter que les solutions solides *cc* riches en molybdène ont une forte texture de fibre (110), alors que dans les échantillons *cfc* riches en nickel, on trouve une texture (111) plus faible. L’organisation des grains (111) se détériore quand la solubilité du molybdène augmente parmi les plans *cfc* de nickel, ce qui signifie que l’amélioration de la texture se met en place. Un effet similaire mais moins prononcé est également observé pour les solutions solides riches en molybdène.

Les films minces sont contraints et l’état de contrainte dans le plan du film mince augmente avec la fraction volumique de molybdène x . Les valeurs obtenues en utilisant une méthode d’analyse standard $\sin^2\Psi$ avec une hypothèse de contrainte biaxiale, sont respectivement de -0.6 GPa et -4.0 GPa pour le nickel et le molybdène purs. Le paramètre de maille sans contrainte a_0 est déterminé en utilisant la méthode décrite dans la référence [73], où l’utilisation d’irradiation ionique a montré qu’elle était un outil efficace pour induire des relaxations de contrainte et pour apporter une détermination directe du véritable paramètre de maille hors de contrainte sans connaissance préalable des constantes élastiques.

La figure 5.3.B montre un scan XRR typique pour un film mince d’alliage Ni-Mo. On peut clairement y voir les franges de Kiessig au delà de l’angle critique, avec de larges amplitudes indiquant une surface relativement lisse. Les données expérimentales ont été ajustées en utilisant un modèle théorique basé sur le formalisme optique de Parrat [74]. Un bon ajustement est obtenu en utilisant un modèle à trois couches : une couche de surface oxydée (1-2 monocouches), l’alliage de *Mo-Ni* (épaisseur h) et une couche interfaciale de silicure (~ 2 nm) à l’interface film/substrat. On trouve une corrélation entre les densités des couches interfaciales et du film. C’est pourquoi l’incertitude liée à la détermination de la densité ρ à partir des scans XRR est estimée à 0.12 g.cm^{-3} . Dans le cas de solutions solides cristallines *cc* ou *cfc*, on a une erreur de 0.07 g.cm^{-3} dans la

détermination de ρ à partir de a_0 et des valeurs de x .

L'évolution de la densité des alliages Mo_xNi_{1-x} en fonction de la composition est reportée sur la figure 5.4.

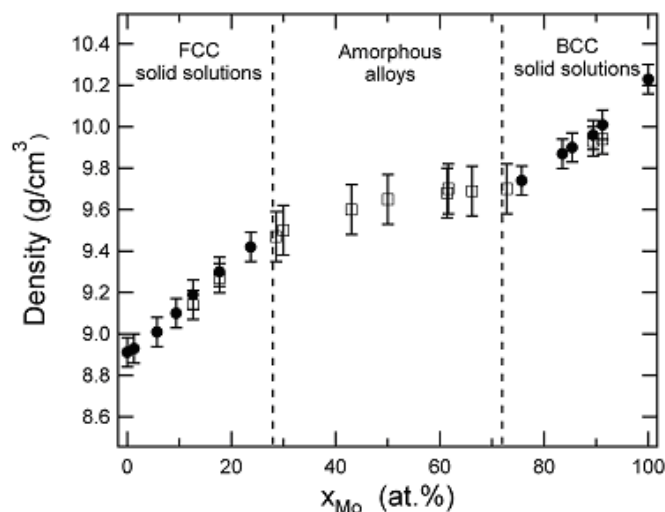


FIG. 5.4 – Densité des films minces d'alliages Mo_xNi_{1-x} en fonction de la fraction atomique x de Mo .

Cette variation ne suit pas une simple règle de mélange, en particulier, dans la région amorphe, la variation de densité semble suivre un comportement intermédiaire par rapport aux structures cc et $cfcc$. Toutefois aucune loi générale ne peut être dégagée. À notre connaissance, aucune donnée n'a été publiée dans la littérature scientifique pour les alliages amorphes dans les systèmes binaires de structures cristallographiques différentes.

Dans la région amorphe, on observe une surface beaucoup plus lisse que pour les échantillons riches en molybdène (cc) ou en nickel ($cfcc$). La rugosité de surface est donc essentiellement due à la présence de grains d'interface et il n'y a pas d'effets de repulvérisation pendant la croissance. Pour les alliages cc riches en molybdène, on observe une morphologie particulière constituée de "poils" et de plaquettes. Celle-ci est très similaire à celle observée par Maillé et al. [75] à la surface de films de tungstène cc .

L'évolution de la rugosité de surface (rms) sur toute la gamme de composition est représentée sur la figure 5.6. On peut voir une chute drastique de chaque côté de la transition cristal-amorphe, tandis qu'on observe un niveau constant de rugosité sur l'ensemble de la région amorphe.

Cette forte décroissance de la rugosité de surface pour les solutions solides cristallines

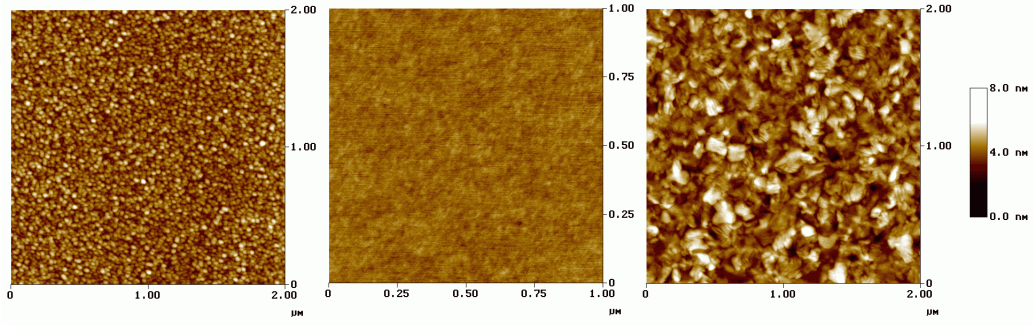


FIG. 5.5 – Images AFM de la topographie de surface de trois échantillons de Mo_xNi_{1-x} : a) $Ni_{0.87}Mo_{0.13}$ (Solution solide *fcc*), b) $Ni_{0.64}Mo_{0.36}$ (région amorphe) et c) $Ni_{0.17}Mo_{0.83}$ (solution solide *cc*).

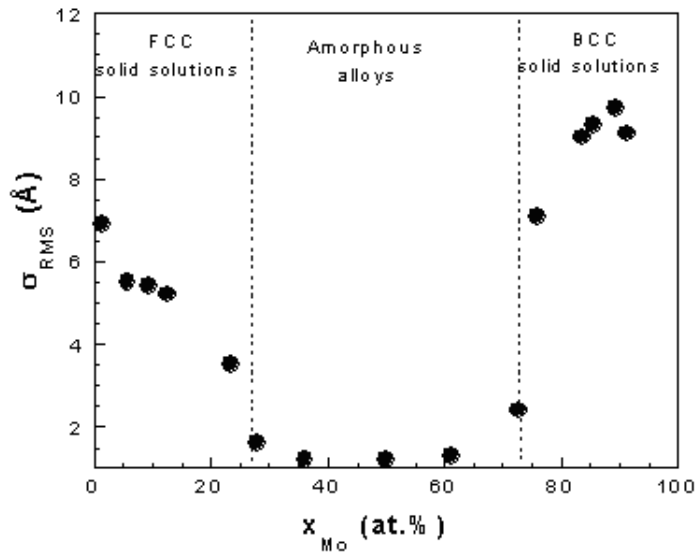


FIG. 5.6 – Evolution de la rugosité moyenne de surface (RMS) des alliages Mo_xNi_{1-x} en fonction de la composition x .

(*cc* et *fcc*) contraste avec l'amélioration de la texture notée plus haut. En supposant que la rugosité est liée à la taille des grains, ce comportement pourrait suggérer que la nucléation est favorisée au détriment de la croissance des grains lorsque le désordre structural des solutions solides augmente.

5.2 Acoustique picoseconde dans les alliages

5.2.1 Propriétés élastiques

Solutions solides en couches minces

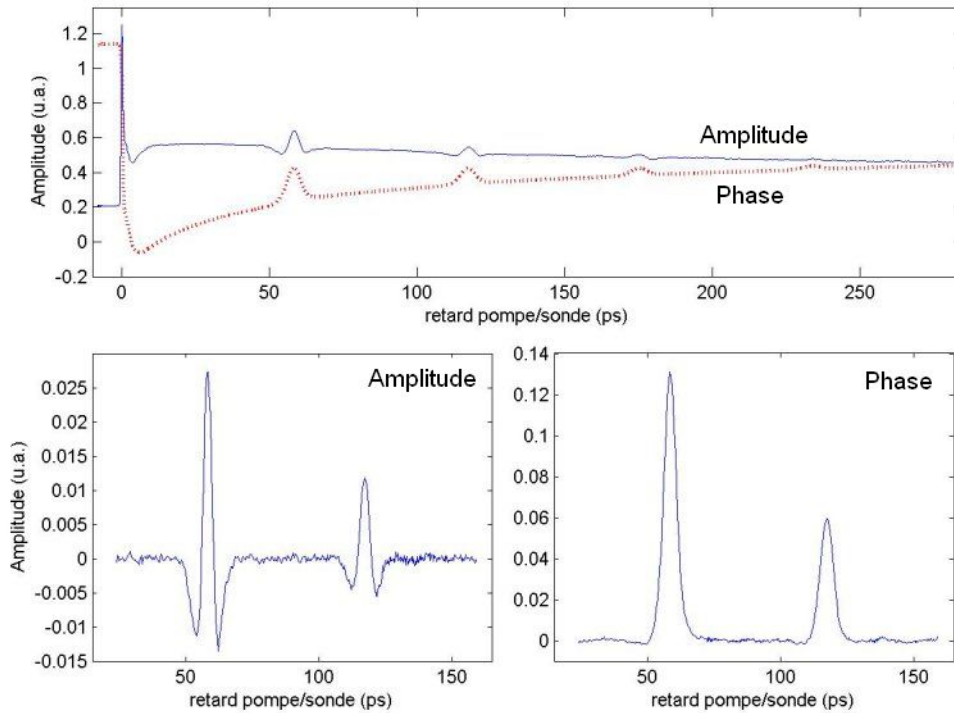


FIG. 5.7 – Mesures de réflectivité pour le film $Mo_{0.835}Ni_{0.165}$ (Éch. SE-03). Le graphique supérieur montre les courbes expérimentales. En dessous, on a extrait les échos acoustiques des parties réelle (à gauche) et imaginaire (à droite).

Lors de nos expériences d'acoustique picoseconde, l'usage d'une détection interférométrique nous a permis de mesurer les parties réelles et imaginaires de la variation relative de réflectivité sur l'ensemble de nos échantillons. On obtient alors des courbes similaires à celles présentées sur la figure 5.7. Sur le graphe supérieur, cette figure montre les courbes expérimentales telles qu'on les mesure, non traitées. On y voit clairement plusieurs échos acoustiques. Les deux graphes en dessous montrent les deux premiers échos que nous avons extraits pour les parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0$. Les mesures ont été effectuées avec des impulsions laser de longueur d'onde $\lambda = 750 \text{ nm}$. Ici l'épaisseur et la densité (cf. figure 5.4) des échantillons est connue avec une grande précision.

La vitesse des ondes acoustiques longitudinales est obtenue en mesurant le délai entre

les échos successifs. Les résultats pour l'ensemble des échantillons sont représentés sur la figure 5.8-(a). La constante élastique longitudinale C_{33} est déduite de la vitesse grâce à la densité : $C_{33} = \rho v^2$ où ρ est la valeur qui avait été obtenue par réflectivité de Rayons X (XRR). L'évolution de C_{33} en fonction de la composition des échantillons est représentée sur la figure 5.8-(b).

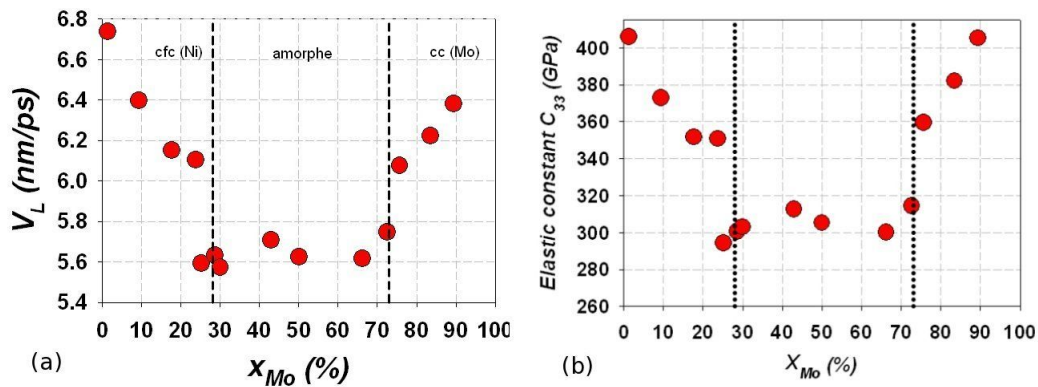


FIG. 5.8 – (a) - Vitesse longitudinale dans les films de Mo_xNi_{1-x} en fonction de la fraction x de molybdène. (b) - Constantes élastiques C_{33} mesurées par acoustique picoseconde.

Dans la région amorphe, on observe un adoucissement de 25% de la constante élastique C_{33} par rapport aux valeurs pour le nickel et le molybdène purs. Dans ce cas, le désordre structural augmente à cause d'un effet de taille entre les mailles des réseaux cristallins entre le nickel et le molybdène (9%). L'instabilité mécanique due au mélange de cristaux homogènes induit une décroissance de la constante élastique des alliages. On peut également noter une corrélation entre l'évolution de la rugosité de surface et les constantes élastiques. L'instabilité mécanique est également reliée à un fort changement dans la morphologie de la surface (cf. figure 5.6). On note également que l'évolution de C_{33} est similaire à celle qu'on peut observer pour la constante transverse C_{44} mesurée par diffusion Brillouin (BLS) par Abadias et al [57].

Dans les multicouches Mo/Ni , Abadias et al ont observé une stabilisation de solutions solides supersaturées dans la région au delà de la transition amorphe cristalline, qui explique les très faibles valeurs des constantes élastiques effectives C_{44} [57]. On attend le même comportement pour les mesures sur les autres constantes élastiques telles que C_{33} ; nous aborderons ce point dans le chapitre 6 sur l'étude expérimentale des multicouches.

5.2.2 Variation de la forme des échos

Etude de la forme de l'écho

Dans les métaux purs, l'énergie déposée par l'impulsion laser est transmise très rapidement aux électrons du réseaux par diffusion électronique et la durée de l'impulsion acoustique qui est engendrée est plus grande que lorsqu'il n'y a pas de diffusion. Dans les solutions solides Mo_xNi_{1-x} (polycristallines ou amorphes), la diffusion électronique est beaucoup moins efficace que dans les métaux purs. Dans ce modèle, on néglige la contribution de la diffusion électronique à la forme des échos. Cette hypothèse est confortée par des mesures de résistivité (obtenues par la méthode "4 points"), les valeurs mesurées vont de $28 \mu\Omega.cm$ à $140 \mu\Omega.cm$ respectivement pour le nickel pur et les alliages amorphes. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 1 dans le cas des matériaux isotropes ou cubiques, si on néglige la diffusion électronique, alors le changement relatif de réflectivité s'écrit :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = 2ik_0 u(z=0, t) + ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1-n^2} \int_0^{+\infty} \eta(z, t) e^{2ik_0 n z} dz. \quad (5.1)$$

En introduisant les équations de la déformation (1.12) et du déplacement de la surface (1.13) dans l'expression du changement relatif de réflectivité, on obtient une nouvelle équation qui s'écrit (après intégration) :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = -\frac{\eta_0 r_{ac} e^{-\alpha v |t|}}{n''} \left[i + \gamma e^{i\theta} \left((\zeta + i) e^{i\zeta \alpha v |t|} - i \right) \right] \quad (5.2)$$

où $n = n' + in''$ est l'indice optique du film, $\zeta = \frac{n'}{n''}$ et $\gamma e^{i\theta} = \frac{2nn'^2}{n'(1-n^2)(2n-n')} \frac{\partial n}{\partial \eta}$ et qui peut être séparée en parties réelles et imaginaires pour s'écrire sous la forme $\frac{\Delta r(z, t)}{r_0} = \rho + i\phi$ avec

$$\rho = \lambda \gamma e^{-\alpha v |t|} [r \cos(r\alpha v |t| + \theta) - \sin(r\alpha v |t| + \theta) + \sin \theta] \quad (5.3)$$

$$\phi = \lambda e^{-\alpha v |t|} [1 + \gamma (\cos(r\alpha v |t| + \theta) + r \sin(r\alpha v |t| + \theta) - \cos \theta)] \quad (5.4)$$

$$\text{où } \lambda = -\frac{\eta_0 r_{ac}}{n''}.$$

Pour la série d'alliages Mo_xNi_{1-x} , γ se situe toujours entre 5 et 20% et v est connue, ce qui signifie que ϕ est surtout proportionnel à $e^{-\alpha v |t|}$; de cette façon, on obtient directement une bonne approximation de n'' à partir de ϕ . Les parties réelles ρ et imaginaires ϕ sont ajustées simultanément par les équations (5.3) et (5.4) pour obtenir les valeurs de n et de $\frac{\partial n}{\partial \eta}$. Le tableau 5.1 indique les paramètres utilisés pour l'ajustement présenté sur la figure 5.9. Grâce à cet ajustement, on obtient des approximations de n et de $\partial n / \partial \eta$ (cf. Tableau 5.2).

$\lambda = 750 \text{ nm}$	$e = 184,6 \text{ nm}$	$\rho = 9,87 \text{ kg.m}^{-3}$	$C_{33} = 382,0465 \text{ GPa}$
$x_{Mo} = 83,5\%$	$\Delta T = 59,342 \text{ ps}$	$v_L = 6,2216 \text{ nm/ps}$	

TAB. 5.1 – Paramètres utilisés pour l’ajustement des parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0$.

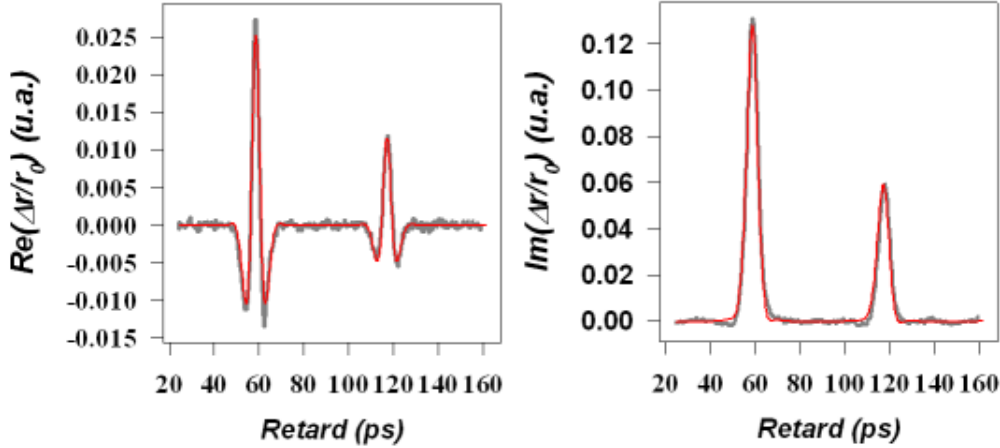


FIG. 5.9 – Ajustement des parties réelles et imaginaires du changement relatif de réflectivité $\Delta r/r_0$.

n	$5,8331 + 4,5660i$
$\partial n/\partial \eta$	$-2,0602 - 1,7947i$

TAB. 5.2 – Résultats de l’ajustement des parties réelles et imaginaires de $\Delta r/r_0$ pour l’échantillon ”SE03”.

Nous disposons donc d’échantillons formant un système modèle bien décrit par les équations présentées au chapitre 1. Dans ces alliages, on observe des échos remarquablement fins de moins de 3 ps à mi-hauteur et des composantes spectrales jusqu’à plus de 200 GHz. A notre connaissance, ce sont les plus fins observés à ce jour dans les métaux ou les alliages métalliques. Ce modèle permet d’ajuster la forme des échos pour chacun des échantillons de composition x différente.

Variation de la forme des échos

Au cours des mesures sur l’ensemble des échantillons Mo_xNi_{1-x} , nous avons observé que la forme des échos variait sensiblement d’un alliage à l’autre. Nous disposons d’un système modèle qui permet de reproduire la forme des échos lorsque la composition varie.

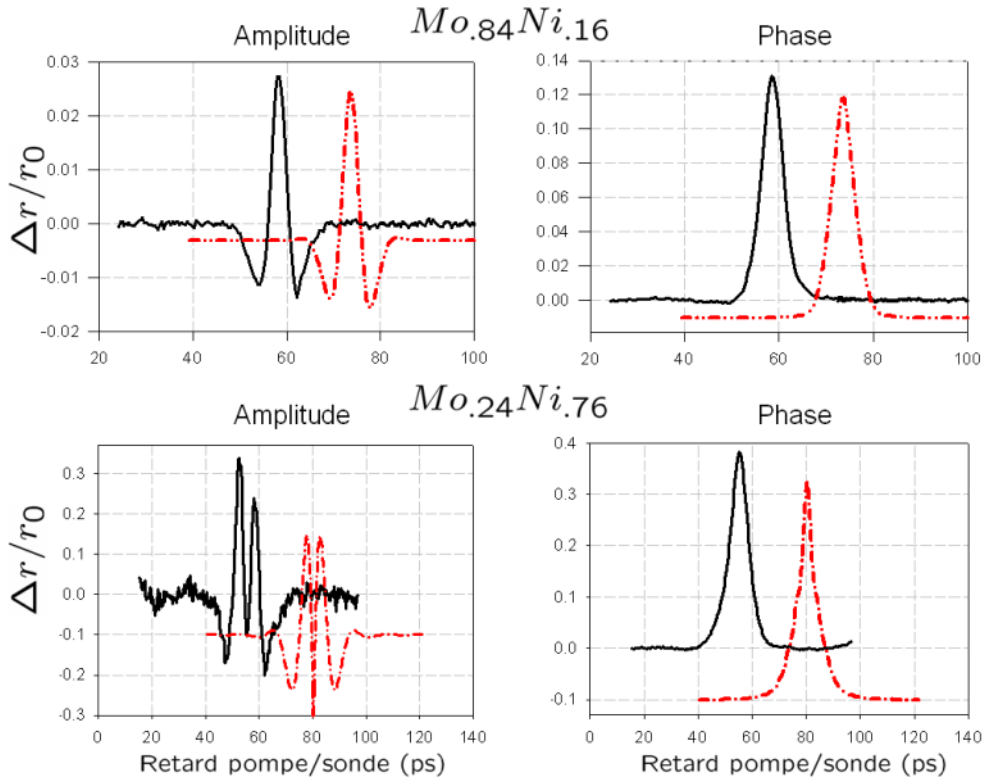


FIG. 5.10 – Formes d'échos pour deux fractions x de molybdène : les courbes expérimentales sont données en trait plein, leur meilleur ajustement est en ligne pointillée, ils ont été décalés pour une meilleure visualisation.

Comme on peut le voir sur la figure 5.10, ces expressions permettent d'ajuster les courbes expérimentales avec une grande précision quelle que soit la composition x de l'alliage. On peut déduire l'indice et le coefficient photoélastique pour chaque échantillon.

Les paramètres ajustés sont reportés sur la figure 5.11. Ces paramètres varient peu et sont du même ordre de grandeur que les valeurs connues pour les métaux purs (e.g. $n''_{Mo} = 3.46$, $n''_{Ni} = 4.25$ [60]).

Il est intéressant de noter, que la forme des échos subit de fortes variations pour de faibles variations des paramètres optiques. Ici, les formes ajustées des parties réelles et imaginaires sont représentées sur la figure 5.12 pour une large plage de composition x .

Cette haute sensibilité de la forme des échos aux paramètres optiques a déjà été étudiée sur des films métalliques en variant un autre paramètre optique : la longueur d'onde ; cette étude a été menée à l'IEMN [65] par Devos et al [56].

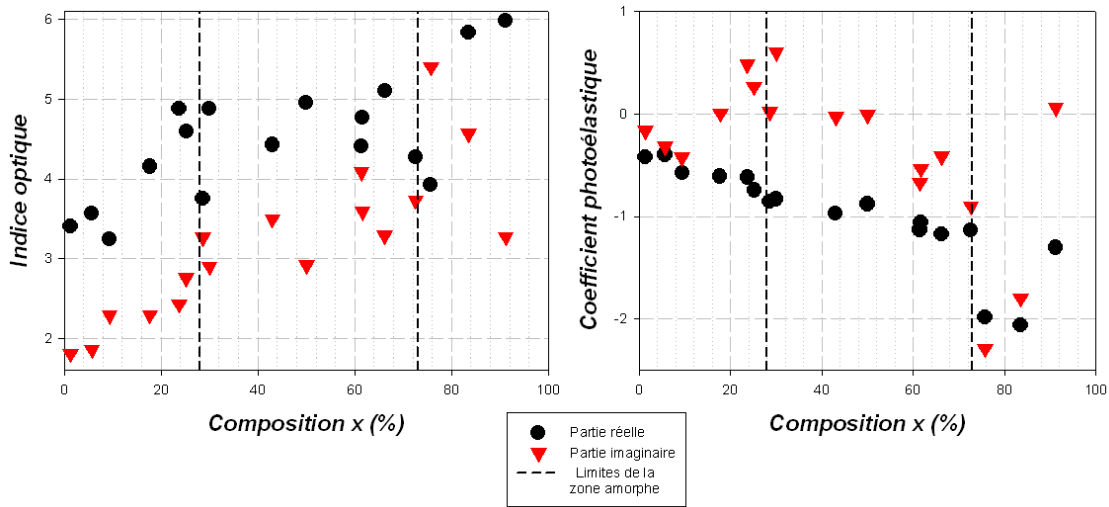


FIG. 5.11 – Parties réelles (disques) et imaginaires (triangles) de l'indice optique et du coefficient photoélastique pour toute la plage de concentration x .

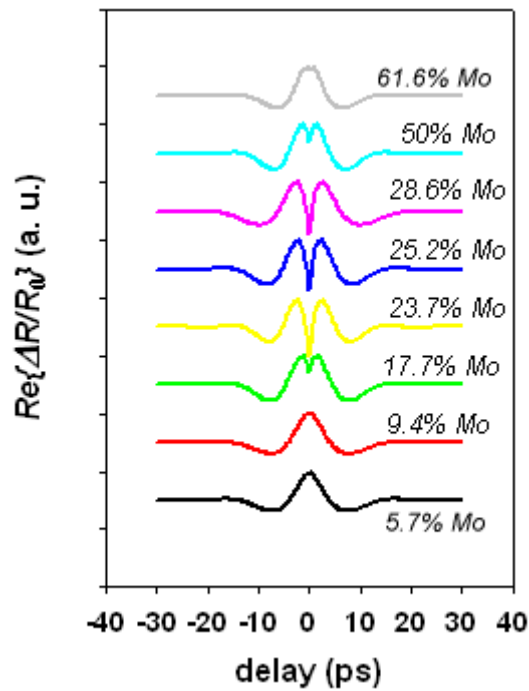


FIG. 5.12 – Evolution de la forme des échos en fonction de la composition (pour $5.7 \leq x \leq 61.6\%$).

5.2.3 Adhésion entre film et substrat

Au cours des expériences dans les solutions solides Mo_xNi_{1-x} , on a pu remarquer que pour certains échantillons, la partie réelle du changement relatif de réflectivité présente une dissymétrie telle que celle que l'on peut voir sur la figure 5.13.

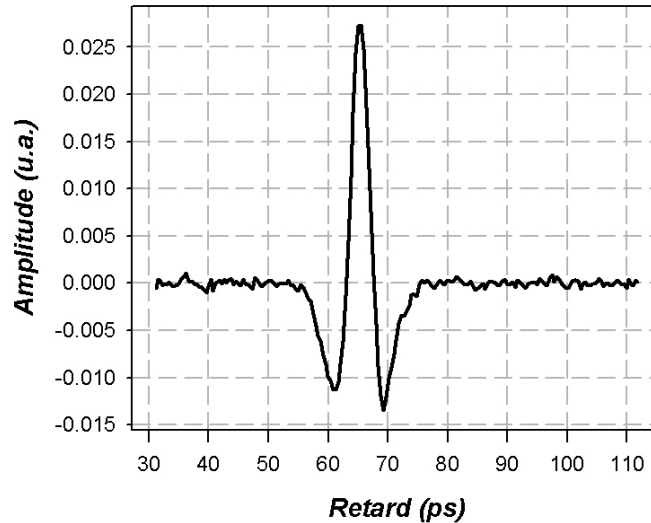


FIG. 5.13 – Partie réelle de $\Delta r/r_0$ pour l'échantillon SE03 ($Mo_{0.84}Ni_{0.16}$)

Une dissymétrie intervenant dans la forme des échos n'est pas nécessairement surprenante, dans certains cas l'introduction de la diffusion thermique permet de l'expliquer. En effet, la diffusion électronique dans le film peut modifier la forme des échos [39–42], mais dans ce cas la dissymétrie présentée est dans l'autre sens, de plus la diffusion électronique affecte également la partie imaginaire de la réflectivité ce qui ne semble pas être le cas ici. En outre, nous avons vu dans le paragraphe §5.2.2 que la résistivité est plus élevée dans les alliages Mo_xNi_{1-x} ce qui nous incite également à écarter la diffusion électronique. Nous avons donc essayé d'expliquer ce comportement en supposant que l'interface entre le film Mo_xNi_{1-x} et son substrat de silicium n'est pas parfaitement rigide (cf. figure 5.14). Ceci revient à considérer qu'on a un défaut d'adhésion.

Dans ce cas, on peut relaxer la condition de continuité des contraintes à l'interface film/substrat suivant la formule :

$$\sigma = \varepsilon^{-1} (u_{film} - u_{substrate}), \quad (5.5)$$

où ε^{-1} joue le rôle d'une constante de raideur par unité de surface entre le film et le substrat [44]. Avec cette nouvelle condition de continuité, le coefficient de réflexion r_{ac} devient dépendant de la fréquence,

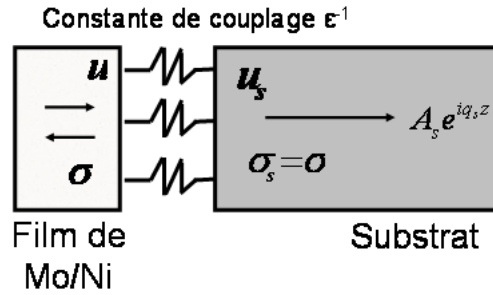


FIG. 5.14 – Modélisation de l'interface non-rigide entre le film et le substrat par une force de rappel.

$$r_{ac} = \frac{r_{ac0} + i\omega\tau}{1 - i\omega\tau} \quad (5.6)$$

où $\tau = \epsilon \frac{ZZ_s}{Z+Z_s}$. Ainsi, les basses fréquences subissent une réflexion normale, alors que les hautes fréquences sont partiellement réfléchies. Les conséquences d'une interface non rigide sur la forme de l'écho peuvent être contrôlées par un paramètre sans dimension $\delta = \alpha\nu\tau$ (que nous appellerons paramètre d'adhésion dans la suite de ce document) ; $\delta = 0$ pour une interface parfaitement rigide. L'expression de la partie réelle de $\Delta r(z, t)/r_0$ (eq. (5.3)) fait maintenant intervenir le paramètre δ . La figure 5.15 montre la déformation de l'écho pour différentes valeurs de δ . Les courbes montrent clairement que lorsque l'interface n'est pas rigide ($\delta \neq 0$), la dissymétrie apparaît. L'effet est encore plus visible si on choisit un substrat plus dur que le film (avec une impédance acoustique plus élevée). On peut également voir que si on choisit une valeur très grande pour δ , alors on retrouve un écho symétrique, car si la couche est décollé alors on a une réflexion totale ; tout se passe comme s'il n'y avait rien derrière le film.

Nous avons essayé d'analyser la dyssymétrie dans la forme de l'écho sur quelques échantillons en utilisant ce modèle simple. Le meilleur ajustement (voir figure 5.16) a été obtenu sur l'échantillon $Mo_{0.835}Ni_{0.165}$. Pour $\delta = 0,33$ on peut reproduire parfaitement le défaut de symmétrie.

Dans la majorité des cas, le défaut d'adhésion a plutôt été observé dans les échantillons riches en molybdène, probablement parce qu'ils présentent un état de contrainte en compression permanent qui favorise un léger décollement. Pour être certain que l'adhésion est bien la cause de cette dissymétrie (éventuellement la seule), il pourrait être utile de faire des mesures sur des échantillons pour lesquels on dispose d'informations préalables sur l'adhésion film/substrat.

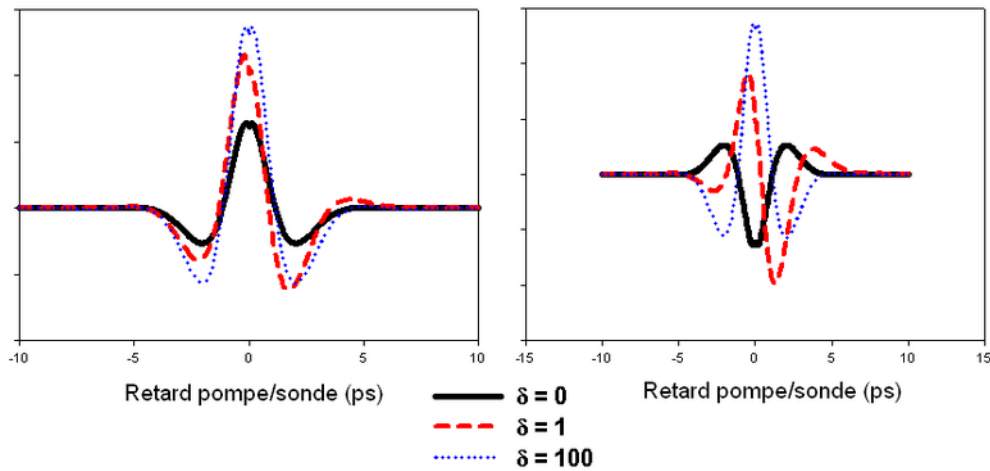


FIG. 5.15 – Influence du paramètre d’adhésion δ sur la partie réelle du changement de réflectivité, pour un substrat plus mou (a) et pour un substrat plus dur (b).

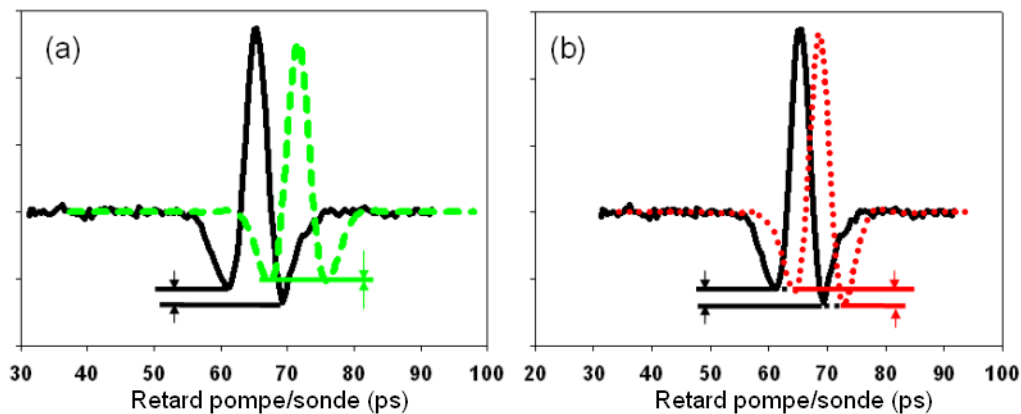


FIG. 5.16 – forme des échos pour le film $Mo_{0.835}Ni_{0.165}$. Les courbes expérimentales sont représentées en trait plein. (a) - La ligne pointillée est un ajustement pour une interface rigide $\delta = 0$. (b) la ligne pointillée est un ajustement pour une interface non-rigide ($\delta = 0.33$).

5.3 Conclusion

Les mesures de vitesses des ondes acoustiques longitudinales et de la constante élastique C_{33} pour les solutions solides Mo_xNi_{1-x} sur toute la gamme de compositions x semblent montrer que l’amorphisation des alliages est à l’origine de l’adoucissement observé entre 28% et 73% de molybdène. Dans cette gamme de composition, la constante C_{33} chute de 25%, ce qui peut être responsable de l’adoucissement observé pour C_{44} dans les structures multicouches Mo/Ni par Abadias et al. [57] et pour C_{33} par notre équipe

(cf. chapitre 6).

Avec de tels alliages, les effets de la diffusion électronique peuvent être négligés et on dispose d'un système modèle qui peut être décrit par les équations que nous avons présentées dans le chapitre 1. De plus, les échos acoustiques observés sont à notre connaissance les plus brefs (moins de 3 ps) observés à ce jour dans les métaux ou alliages. Pour ces systèmes modèles, nous avons pu réaliser des ajustements permettant d'obtenir des valeurs approchées de l'indice optique et d'un coefficient photoélastique. Les valeurs ajustées avoisinent les valeurs connues pour les métaux purs. Les valeurs obtenues à l'aide d'ajustements varient peu autour des valeurs moyennes mais il est intéressant de constater qu'ils entraînent tout de même des changements importants dans la forme des échos. Lorsque la composition x des échantillons varie, la forme des échos mesurés est différente, différences que nous avons pu reproduire (fig. 5.12). Nous avons enfin poussé cette étude de forme encore plus loin à l'aide d'un modèle tenant compte d'un défaut d'adhésion à l'interface film/substrat (5.16).

Chapitre 6

Étude de multicouches périodiques alternées

Sommaire

6.1 Propagation basse-fréquence et milieu effectif	120
6.1.1 Empilements multicouches et milieu effectif	120
6.1.2 Étude d'échantillons multicouches Mo[110]/Ni[111], influence de couches d'interfaces	122
6.2 Propagation haute-fréquence et modes localisés	125
6.2.1 Existence des modes localisés	126
6.2.2 Évolution de la fréquence des modes localisés	129
6.2.3 Amplitude relative des modes localisés - règle de sélection . .	133
6.3 Étude préliminaire d'échantillons multicouches en trans- mission	138
6.4 Conclusion	142

Dans ce chapitre, nous allons étudier des systèmes métalliques tels qu'ils ont été décrits dans le chapitre 4. Il s'agit d'empilements de couches métalliques périodiques et alternés. La figure 6.1 rappelle la structure de tels échantillons.

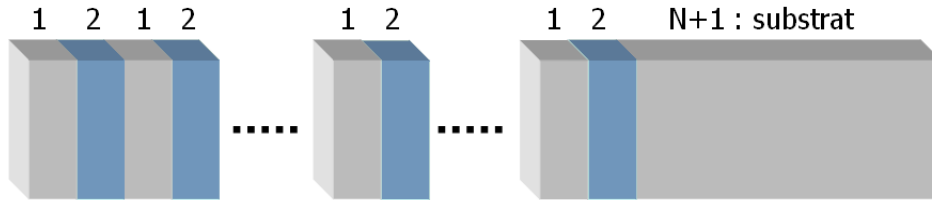


FIG. 6.1 – Schéma d'un système multicouche périodique alterné.

Afin de vérifier les modèles exposés dans les chapitres précédents, Abadias et al. ont fabriqué des échantillons de compositions diverses au LMP de Poitiers. Pour notre étude, deux approches se distinguent :

- **l'approche basse-fréquence.** Lorsque la longueur d'onde acoustique est grande devant la plus grande des épaisseurs mises en jeu dans l'empilement, alors on considère un milieu effectif (décrit dans la section §4.3) dans lequel les interfaces n'affectent pas la propagation des ondes acoustiques.
- **l'approche haute-fréquence.** Lorsque le vecteur d'onde acoustique prend certaines valeurs particulières ($q = n\pi/d$), la relation de dispersion laisse apparaître des bandes de fréquences interdites dans lesquelles aucun mode ne peut se propager. On observe alors des modes résonants localisés en surface dont on peut prévoir les fréquences de vibration.

Nous avons également tenté de procéder à la transmission de modes hautes-fréquences à travers un substrat. Ceci sera traité dans la dernière section de ce chapitre.

6.1 Propagation basse-fréquence et milieu effectif

Le dispositif expérimental d'acoustique picoseconde nous permet de mesurer le temps de parcours aller/retour d'un écho acoustique dans l'échantillon avec une très grande précision. Si on connaît l'épaisseur de cet échantillon, on peut en déduire la vitesse de propagation dans l'échantillon ainsi que la constante longitudinale effective C_{33} .

6.1.1 Empilements multicouches et milieu effectif

Dans la section §4.3, nous avons vu qu'entre autres, la densité ρ^{eff} et la constante élastique longitudinale C_{33}^{eff} effectives dépendent des valeurs respectives des couches qui composent l'empilement. Le temps de vol d'un écho acoustique dépendant de ces grandeurs, il est possible de prévoir le délai au bout duquel on observera un écho ayant

parcouru l'ensemble de l'empilement.

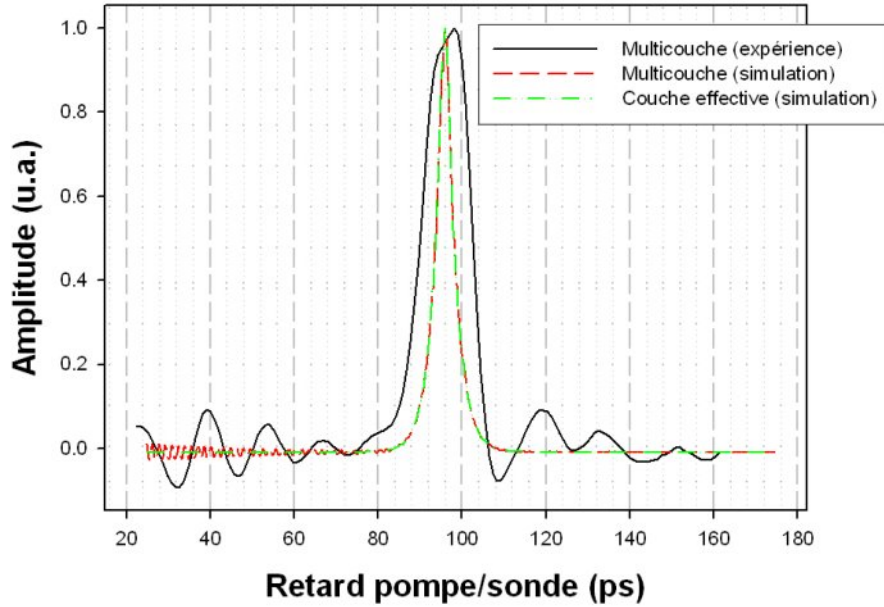


FIG. 6.2 – Partie imaginaire de $\Delta r(t)/r_0$ pour un empilement multicouche $(Mo_{1.8}/Ni_3)_{\times 63}$. On a représenté le signal mesuré expérimentalement en interférométrie (ligne pleine). Les deux autres courbes représentent la simulation numérique du même empilement et celle d'une couche unique ayant les caractéristiques du milieu effectif.

Sur la figure 6.2, on a représenté 3 courbes. L'une d'entre elles (en trait plein) correspond à la mesure de la partie imaginaire du changement relatif de réflectivité dans un échantillon multicouches périodique alterné de type $(Ni_{1.8}/Mo_3)_{\times 63}$, soient 63 périodes (bicouches) de 4.8 nm d'épaisseur, chacune des périodes est composée d'une couche de nickel de 1.8 nm et d'une couche de molybdène de 3.0 nm. Suivant la condition d'application du modèle du milieu effectif ($qd \ll 1$), on assimile la structure multicouche à une monocouche effective pour les ondes élastiques de fréquences très inférieures à 200 GHz.

Le signal expérimental est représenté par la courbe en trait plein, il présente une oscillation parasite basse-fréquence due à la ligne à retard. On observe un écho acoustique correspondant dont l'extension spatiale (et donc la longueur d'onde moyenne) de 125 nm est très supérieure à la période; la présence d'interface n'affecte donc pas sa propagation et il apparaît après le temps nécessaire pour parcourir un aller/retour dans l'ensemble de la structure. Les deux autres courbes (en trait pointillé) sont des simulations numériques. L'une d'entre elles est issue d'un calcul complet prenant en compte la totalité des 126 couches; la seconde présente la simulation dans une couche unique

dont les différents paramètres physiques ont été déterminés théoriquement à partir des paramètres des constituants. On constate ainsi que le résultat obtenu avec la couche effective confirme l'hypothèse avancée, puisque l'écho ayant parcouru un aller/retour dans la couche unique arrive en même temps que l'écho basse-fréquence dans le cas du multicouche. La figure 6.2 montre que l'écho expérimental est plus large que prévu par les calculs numériques. En effet, le modèle utilisé pour les simulations numériques ne prend pas en compte les phénomènes de diffusion électronique, c'est pourquoi les échos calculés sont plus fins. L'écho expérimental n'est cependant pas si large (moins de 15 ps) car dans une structure multicouche la diffusion des électrons est limitée par les interfaces.

Il reste évident que le modèle du milieu effectif ne peut s'appliquer que si $qd \ll 1$, c'est à dire tant que la longueur d'onde des ondes élastiques excitées est très supérieure à la période. Si ce n'est pas le cas, il n'est plus légitime de négliger le comportement aux interfaces, celles-ci entraînent des interférences entre les ondes provenant de chaque interface et le modèle de milieu effectif ne s'applique plus. A l'inverse, il est également possible de rencontrer des difficultés lorsque l'épaisseur de la période diminue. En effet, lors de la confection de structures multicouches métalliques, des couches d'alliage peuvent se former à chaque interface. On peut alors supposer que plus l'épaisseur d'une période sera petite et plus l'influence de ces couches interfaciales devrait être importante.

6.1.2 Étude d'échantillons multicouches Mo[110]/Ni[111], influence de couches d'interfaces

Pour confirmer cette hypothèse concernant les couches d'interface, nous avons mené une étude avec des mesures d'acoustique picoseconde dans des échantillons multicouches Mo[110]/Ni[111] avec des périodes variant entre 2 et 17 nm, une épaisseur totale située autour de 280 nm et une composition donnée : $Mo_{0.75}/Ni_{0.25}$. Les détails de la procédure d'élaboration ont été décrits par Martin et al. [58]. Dans des systèmes multicouches tels que les empilements Mo/Ni , des anomalies élastiques ont déjà été observées en diffusion Brillouin (BLS) sur ces mêmes échantillons [57, 58]. La méthode BLS donne une information pertinente et très précise sur la constante élastique C_{44} , l'acoustique picoseconde apporte une information complémentaire sur cette anomalie élastique par l'intermédiaire de la constante élastique C_{33} . La constante élastique C_{33}^{eff} est donnée par l'équation :

$$\frac{\Lambda}{C_{33}^{eff}} = \frac{h_{Mo}}{C_{33}^{Mo}} + \frac{h_{Ni}}{C_{33}^{Ni}} \quad (6.1)$$

Où les constantes élastiques sont notées C et les épaisseurs h . L'évolution de la constante C_{33} en fonction de la période pour les différents échantillons est représentée sur la figure 6.3.

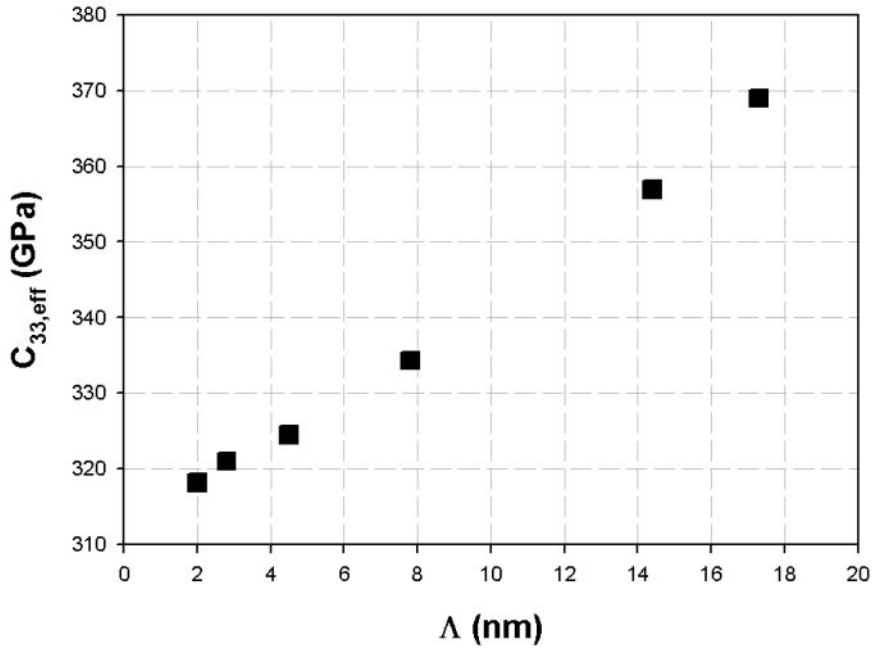


FIG. 6.3 – Évolution de C_{33} (mesurées en acoustique picoseconde) en fonction de la période Λ des multicouches.

On constate que si la période diminue, alors la constante élastique effective du multicouche s'effondre. Pour interpréter la dépendance de C_{33} par rapport à la période Λ de l'empilement, on introduit une couche d'alliage d'épaisseur h_{int} avec une constante élastique longitudinale C_{33}^{int} , à chaque interface Mo/Ni . La constante élastique effective pour une période (et donc pour l'empilement) est ainsi donnée par :

$$\frac{\Lambda}{C_{33}^{eff}} = \frac{h_{Mo}}{C_{33}^{Mo}} + \frac{h_{Ni}}{C_{33}^{Ni}} + 2 \frac{h_{int}}{C_{33}^{int}} \quad (6.2)$$

où C_{33}^{Mo} (C_{33}^{Ni}) et h_{Mo} (h_{Ni}) sont respectivement les constantes élastiques et les épaisseurs des couches individuelles de Molybdène (Nickel). De même, h_{int} et C_{33}^{int} sont respectivement l'épaisseur et la constante élastique pour l'interface. Cette équation peut être exprimée en termes d'une constante élastique effective C_{33}^{∞} correspondant à une période Λ infinie. La couche interfaciale est composée d'un alliage de Molybdène et de Nickel dont la fraction de Molybdène est notée ε ($1 - \varepsilon$ pour le Nickel). L'équation (6.2) devient alors :

$$\frac{\Lambda}{C_{33}^{eff}} = \frac{\Lambda}{C_{33}^{\infty}} + 2h_{int} \left[\frac{1}{C_{33}^{int}} - \left(\frac{\varepsilon}{C_{33}^{Mo}} + \frac{1 - \varepsilon}{C_{33}^{Ni}} \right) \right] \quad (6.3)$$

et reste valable tant que $\Lambda > h_{int}$. Cette nouvelle équation tient compte du fait que

l'épaisseur de la couche interfaciale est comprise dans l'épaisseur de la période. Nous avons mesuré les constantes élastiques effectives de nos échantillons. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 6.4 où $\frac{\Lambda}{C_{33}^{eff}}$ est donné en fonction de la période Λ . Un ajustement linéaire des données permet d'obtenir une estimation de la valeur numérique de la constante élastique effective ; $C_{33}^{\infty} = 354 \pm 16$ GPa. Cette valeur est en bon accord avec la valeur calculée avec une moyenne harmonique pondérée [59] soit 355 GPa (calculée avec $C_{33}^{Mo} = 375$ GPa et $C_{33}^{Ni} = 347$ GPa).

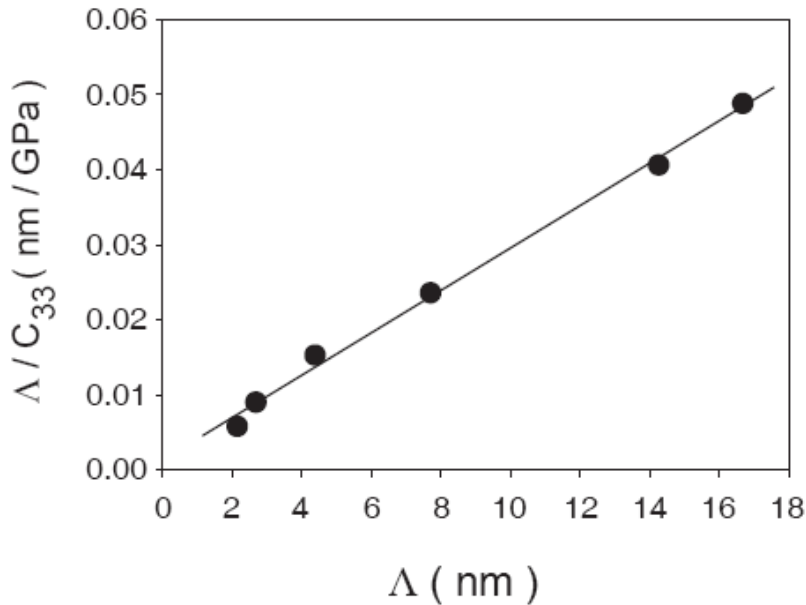


FIG. 6.4 – Évolution de $\frac{\Lambda}{C_{33}}$ en fonction de la période Λ des multicouches (les barres d'erreur n'excèdent pas la taille des points représentés ici).

L'ordonnée à l'origine ne permet pas de déterminer à la fois h_{int} , C_{33}^{int} et ϵ . Nous supposons maintenant que l'alliage interfacial est sursaturé, nous prendrons donc les valeurs limites de ϵ pour la zone amorphe de l'alliage Mo/Ni (28 à 73% de molybdène) ce qui nous permettra de donner un encadrement de l'épaisseur h_{int} . Nous avons reporté les mêmes résultats expérimentaux sur la figure 6.5 mais cette fois en représentant $1/C_{33}$ en fonction de $1/\Lambda$. Une telle représentation conduit à d'importantes barres d'erreur pour les petites périodes, car l'incertitude sur l'épaisseur de la période est répercutée autant de fois que l'empilement compte de bicouches. Si $1/\Lambda$ tend vers l'infini ($\Lambda \rightarrow 0$) alors pour $\Lambda = 2h_{int}$, la période est uniquement constituée d'alliage. Ainsi, pour $1/\Lambda > 1/(2h_{int})$ on a un plateau dont l'ordonnée nous donne une valeur approchée de C_{33}^{int} : $C_{33}^{int} = 285$ GPa. Cette valeur semble réaliste car elle correspond à la valeur observée pour des alliages amorphes Mo_xNi_{1-x} (cf. chapitre 5).

Connaissant maintenant C_{33}^{int} et en supposant que l'alliage de *Mo/Ni* à l'interface est sursaturé (c'est à dire pour $0.28 < \epsilon < 0.73$), on peut donner un intervalle pour h_{int} : $1.17 < h_{int} < 1.39 \text{ nm}$. Finalement, l'épaisseur de la couche interfaciale dépend assez peu de la composition de l'alliage interfacial car les constantes élastiques pour le Molybdène et le Nickel sont assez proches. Cette plage de valeurs pour h_{int} comprend la valeur de 1.2 nm donnée par Abadias et al. [57].

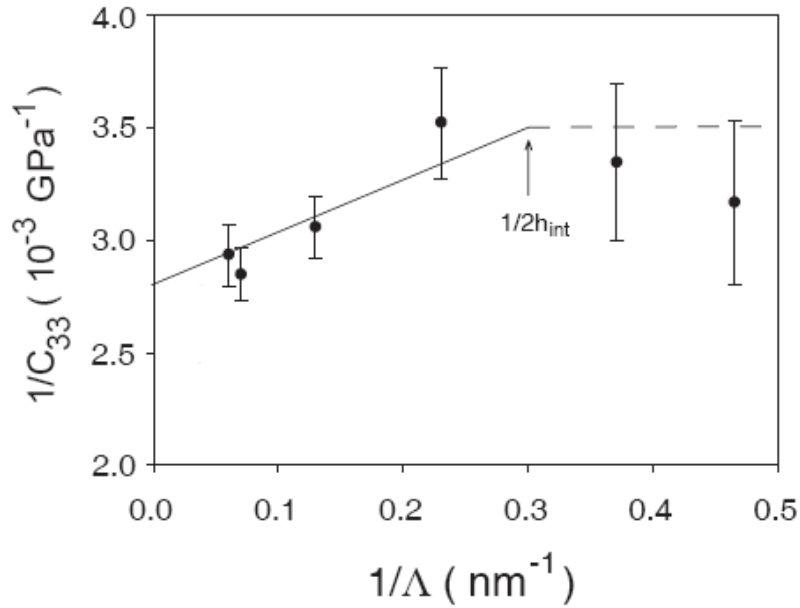


FIG. 6.5 – Variation de $1/C_{33}$ en fonction de Λ^{-1} . Les valeurs de $1/C_{33}^{eff}$ et de $1/h_{int}$ sont également reportée.

Finalement, nos résultats obtenus pour C_{33} confirment les résultats obtenus pour C_{44} en diffusion Brillouin par Abadias et al. [57].

6.2 Propagation haute-fréquence et modes localisés

Comme nous avons pu le voir dans le chapitre 4, dans le cas d'échantillons multicouches périodiques, on peut définir une relation de dispersion pour la bicouche (Eq. (4.22), page 84). Pour une telle structure, on peut observer l'ouverture de bandes interdites dues à la périodicité. On peut également calculer les fréquences pour lesquelles ces gaps vont apparaître ainsi que la fréquence des modes localisés si les conditions nécessaires à leur existence sont remplies. Les relations permettant de calculer toutes ces fréquences sont données dans le tableau 4.1 (page 87).

Afin d'illustrer ce point, la figure 6.6 présente les spectres de $\Delta r/r_0$ mesurés et calculés pour un échantillon Cu/W de 15 périodes de 12 nm avec un rapport d'épaisseur de 1/2. Pour une meilleure lisibilité, la courbe de dispersion correspondante "retournée" a été ajoutée pour mettre les bandes interdites en évidence.

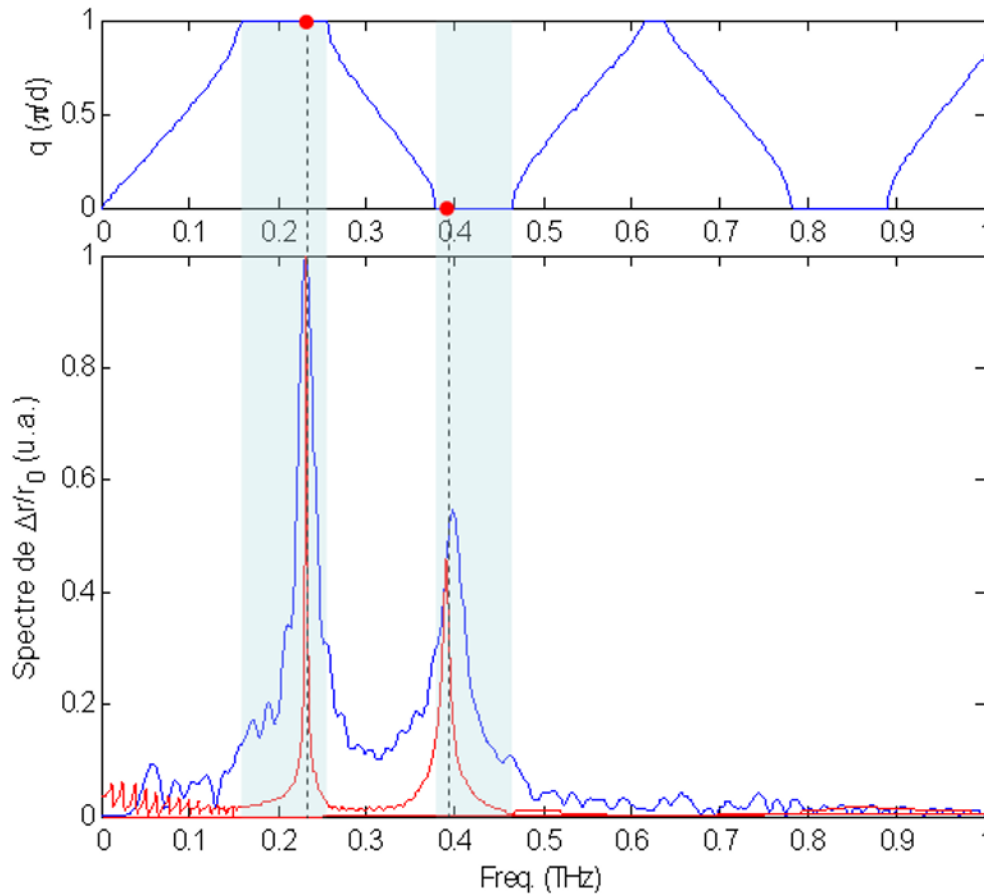


FIG. 6.6 – Relation de dispersion et spectre simulé de $\Delta r/r_0$ avec $d_{Cu} = 4$ nm et $d_W = 8$ nm soit $\Lambda = 12$ nm. Le spectre expérimental est la courbe supérieure et le spectre calculé la courbe inférieure.

Le tableau 6.1 récapitule les fréquences calculées pour les gaps et les fréquences des modes localisés. On constate une bonne adéquation entre les données expérimentales et simulées, les fréquences sont correctement prédites.

6.2.1 Existence des modes localisés

Nous avons vu dans le chapitre 4 (§4.2.2), qu'il existe deux conditions nécessaires à l'existence de modes localisés :

Cu_4/W_8		mode localisé	modes de bords de zone
1 ^{er} gap de bord de zone	calculé	233	156 - 257
	mesuré	232	
1 ^{er} gap de centre de zone	calculé	391	378 - 465
	mesuré	398	
2 ^e gap de bord de zone	calculé	638	614
		-	638
2 ^e gap de centre de zone	calculé	851	781
		-	889

TAB. 6.1 – Fréquences (en GHz) correspondant aux différents modes remarquables pour un échantillon multicouche Cu/W de période de 12 nm avec un rapport d'épaisseur $r = 1/2$.

	Λ (nm)	rapport $r = d_1/d_2$	e_{Cu} (nm)	e_W (nm)	Couche de surface	F_1 (THz)	F_2 (THz)
Cu/W 13	11	1	5.5	5.5	Cu	0.220	0.458
Cu/W 14	11	1	5.5	5.5	W	–	–

TAB. 6.2 – Fréquences des modes localisés en fonction des caractéristiques des échantillons "Cu/W 13" et "Cu/W 14". F_1 et F_2 sont respectivement les fréquences attendues pour les modes localisés dans les bandes interdites d'ordre 1 et 2. Les valeurs données pour les épaisseurs sont nominales.

1. $Z_1 < Z_2$. L'impédance acoustique de la couche superficielle doit être inférieure à celle de l'autre constituant de la période (bicouche).
2. $\tau_{a,21} = 0$ soit $r \tan \alpha_1 + \tan \alpha_2 = 0$. L'élément $\tau_{a,21}$ de la matrice de transfert acoustique de la bicouche doit être nul.

Pour les échantillons satisfaisant la première condition, on peut aisément calculer les fréquences des modes localisés que l'on peut attendre; en effet, elles ne dépendent que des épaisseurs et des vitesses d'ondes acoustiques dans les couches 1 – 2. L'exemple donné au début de la section §6.2 le montre bien.

Afin de vérifier expérimentalement les conditions d'existence des modes localisés, nous avons fait déposer une série d'échantillons dans laquelle deux d'entre eux présentent des caractéristiques similaires mais la couche qui termine l'empilement (la couche de surface) n'est pas la même. Les données concernant ces échantillons sont rappelées dans le tableau 6.2.

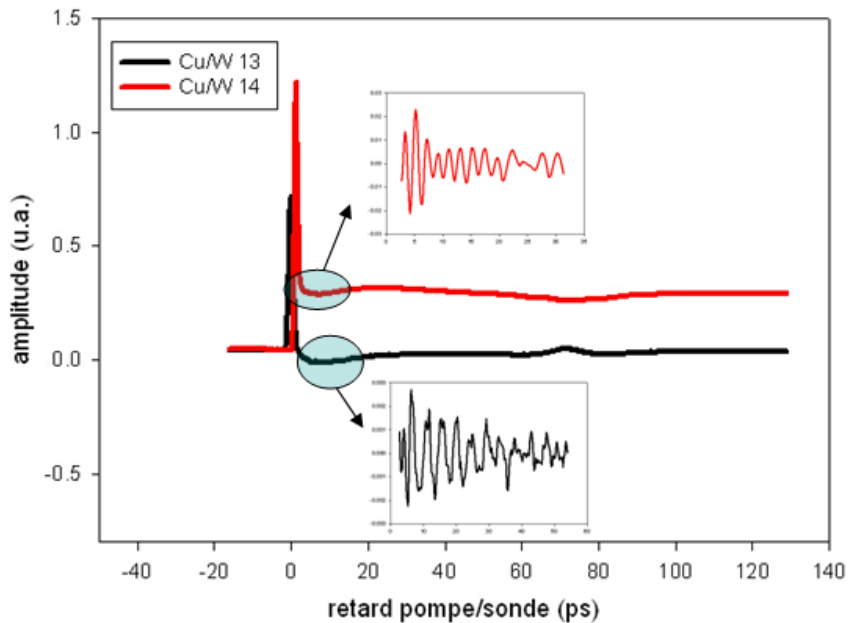


FIG. 6.7 – Signaux expérimentaux mesurés sur "Cu/W13" et "Cu/W14".

La couche en surface pour l'échantillon nommé "Cu/W 13" est le cuivre et pour "Cu/W 14", la couche de surface est en tungstène. Nous devrions donc observer des modes localisés pour "Cu/W 13" mais pas pour "Cu/W 14".

Des mesures de réflectivité ont été faites sur ces échantillons. On peut constater des oscillations sur les signaux expérimentaux des deux échantillons, mais il ne s'agit d'un mode localisé que dans le cas où la couche de surface est celle de plus basse impédance acoustique (le cuivre). Dans ce cas, on observe le premier mode localisé à $f_1 = 0.223$ THz (cf. figure 6.7). Pourtant, la variation de réflectivité de l'échantillon avec le tungstène en surface présente lui aussi des oscillations (cf. figure 6.7). Toutefois, un examen attentif de la courbe de dispersion et des spectres des signaux expérimentaux montre qu'il ne s'agit pas d'un mode localisé mais d'un mode propagatif. La courbe de dispersion "retournée" et les spectres correspondant à ces échantillons sont donnés par la figure 6.8. Sur le spectre de l'échantillon "Cu/W 14", on peut vérifier que les oscillations de $\Delta(r)/r_0(t)$ ne contiennent pas de fréquences comprises dans les bandes interdites. Les raies les plus importantes correspondent à des modes propagatifs.

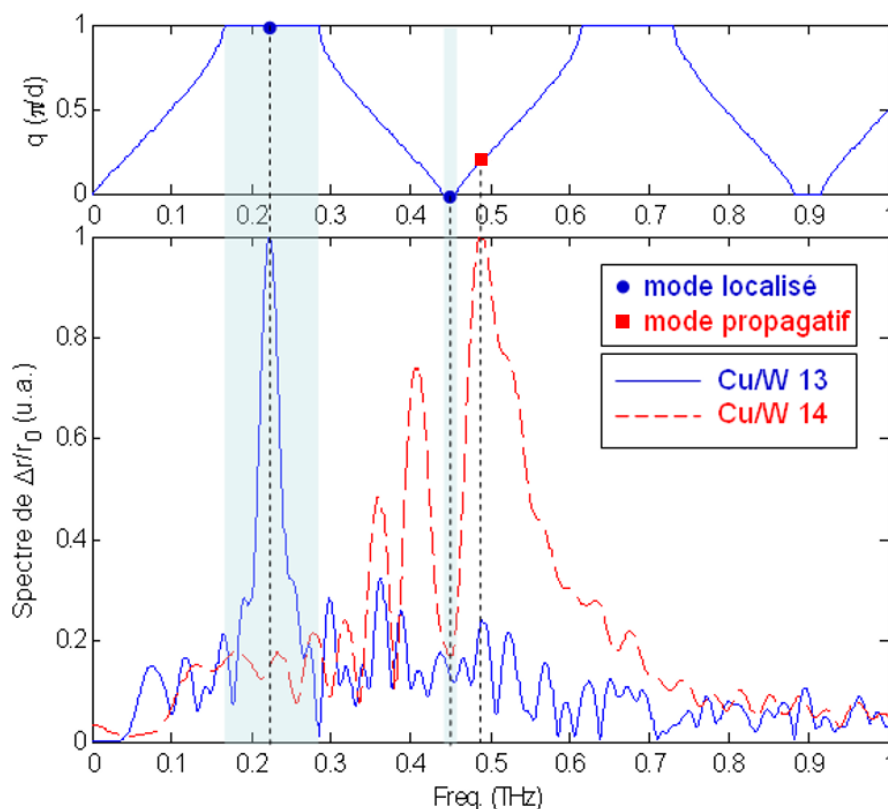


FIG. 6.8 – courbe de dispersion et spectres expérimentaux mesurés pour "Cu/W13" et "Cu/W14".

6.2.2 Évolution de la fréquence des modes localisés

Dans le but d'étudier l'influence de la composition de l'empilement sur la fréquence des modes localisés, une série d'échantillons multicouches a été réalisée par le Laboratoire de Métallurgie Physique de Poitiers. Deux directions ont été adoptées, d'une part, on suit l'évolution de la fréquence en fonction de l'épaisseur de la période Λ , avec un rapport d'épaisseur constant et égal à 1 (cf. tableau 6.3). D'autre part, on étudie aussi l'évolution de la fréquence des modes localisés en fonction du rapport d'épaisseur $r = d_1/d_2$ et à période constante. Les données concernant ces échantillons sont reportées dans le tableau 6.4.

Pour tous ces échantillons, la première couche déposée sur le substrat *Si* est le *W*, on finit donc par le *Cu* sauf pour "Cu/W 14" sur lequel un capping (ie une couche superficielle) de tungstène *W* de 5.5 nm d'épaisseur a été déposé.

¹Les échantillons "Cu/W 16" et "Cu/W 17" ont été recuits à T=200°C.

Ref.	Période (nm)	Ratio Cu/W	W (nm)	Cu (nm)	Nb bicouches
Cu/W 1	10	1	5	5	15
Cu/W 2	15	1	7.5	7.5	15
Cu/W 3	4	1	2	2	30
Cu/W 4	6	1	3	3	20
Cu/W 5	8	1	4	4	15
Cu/W 6	12	1	6	6	15
Cu/W 7	18	1	9	9	15
Cu/W 13	11	1	5,5	5,5	15
Cu/W 14	11	1	5,5	5,5	15
Cu/W 15	6	1	3	3	15
Cu/W 16 ¹	6	1	3	3	15
Cu/W 17 ¹	8	1	4	4	15

TAB. 6.3 – Paramètres pour les échantillons multicouches Cu/W avec un rapport $r = d_1/d_2$ constant.

Ref.	Période (nm)	Ratio Cu/W	W (nm)	Cu (nm)	Nb bicouches
Cu/W 6	12	1	6	6	15
Cu/W 8	12	2	4	8	15
Cu/W 9	12	1/2	8	4	15
Cu/W 10	12	3	3	9	15
Cu/W 11	12	1/3	9	3	15
Cu/W 12	12	5	2	10	15

TAB. 6.4 – Paramètres pour les échantillons multicouches Cu/W à période constante.

Évolution de la fréquence en fonction de la période Λ

Le tableau 4.1 du chapitre 4 concernant les multicouches périodiques alternés rappelle qu'une condition d'existence des modes localisés dans un empilement multicouches est d'annuler le terme $\tau_{a,21}$ de la matrice de transfert de la période, soit $\frac{Z_1}{Z_2} \tan \alpha_1 + \tan \alpha_2 = 0$.

En connaissant les données relatives aux échantillons, on peut calculer les fréquences des modes localisés en fonction des épaisseurs données à partir de mesures en rayons X et des paramètres élastiques des couches constituant la période. La fréquence des modes localisés varie en $1/\Lambda$. C'est pourquoi, on s'attend à des fréquences très élevées pour de très petites périodes.

La figure 6.9 montre l'évolution pour les deux premières bandes interdites. Nous

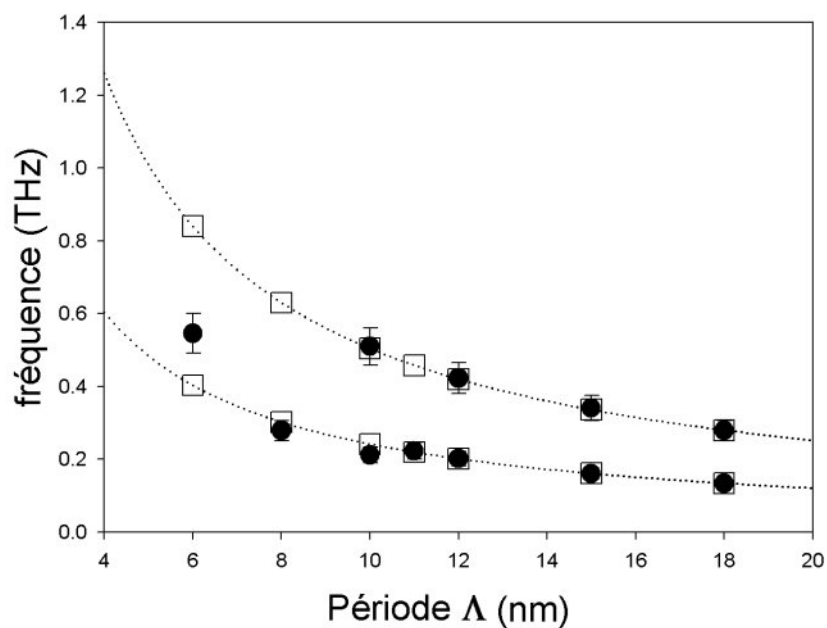


FIG. 6.9 – Fréquences des modes localisés en fonction de la période Λ . Les points théoriques sont représentés par des carrés et les mesures par des points (pleins).

avons superposé les mesures expérimentales correspondant aux échantillons du tableau 6.3. On constate que l'accord entre la simulation et les mesures est très bon. La figure 6.10 (page 132) montre des spectres expérimentaux et simulés pour des échantillons multicouches Cu/W .

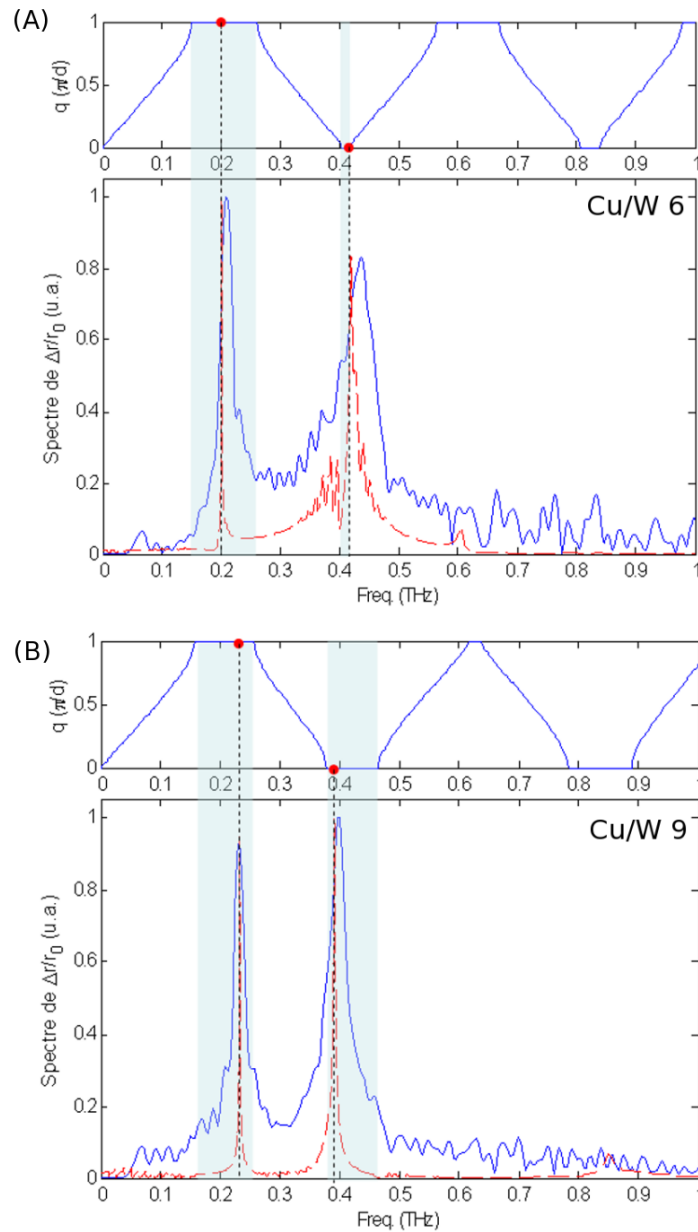


FIG. 6.10 – Spectres expérimentaux et simulés pour deux échantillons Cu/W de différentes compositions. Afin d’améliorer la lisibilité, les courbes de dispersions retournées ont été reportées au dessus des spectres et les bandes de fréquences interdites ont été ombrées sur les deux courbes. Sur les courbes de dispersions, les modes localisés ont été matérialisés par des points. **(A)** - Multicouche "Cu/W 6", le rapport d’épaisseur $r = d_1/d_2$ vaut 1 et la période est 12 nm. **(B)** - Multicouche "Cu/W 9", le rapport d’épaisseur $r = d_1/d_2$ vaut 1/2 et la période est 12 nm.

Évolution de la fréquence en fonction du rapport d'épaisseur

De la même façon que précédemment, on peut calculer les fréquences de modes localisés attendues pour chacun des échantillons de cette série. Celles-ci sont représentées sur la figure 6.11. On peut y voir les courbes théoriques pour toutes les valeurs possibles des épaisseurs tout en gardant une période de 12 nm. Les mesures expérimentales ont été superposées afin de les comparer aux valeurs attendues. Là encore, l'accord entre le calcul numérique et les mesures expérimentales est satisfaisant.

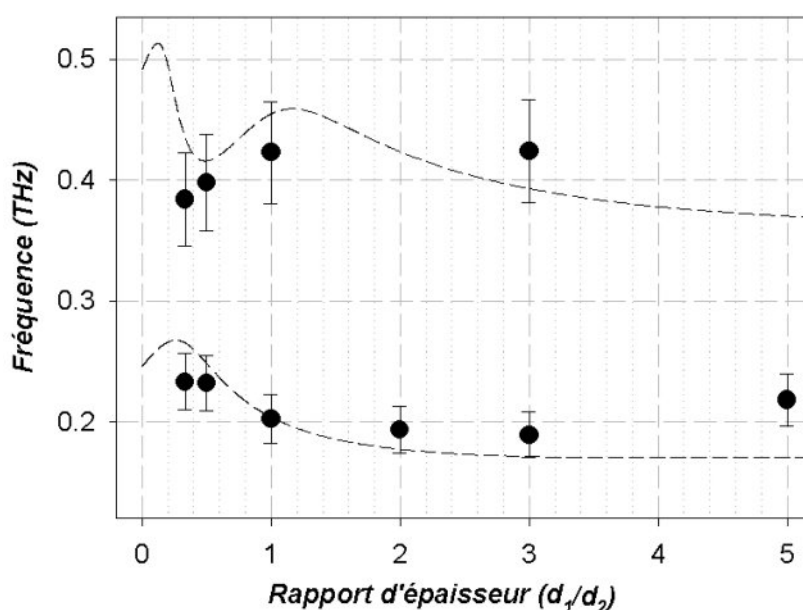


FIG. 6.11 – Fréquence des modes localisés en fonction du rapport d'épaisseur $r = \frac{d_1}{d_2}$.

6.2.3 Amplitude relative des modes localisés - règle de sélection

Nous avons vu dans le chapitre traitant des multicouches périodiques alternés (chap. 4, §4.2.2), qu'on peut attribuer une valeur propre à chaque mode localisé. Ces valeurs propres sont comprises entre -1 et 1 suivant la symétrie de la bande interdite. Si on considère un mode situé dans une bande interdite impaire (bord de zone), alors $\lambda < 0$, au contraire si le mode est dans une bande paire (centre de zone), alors $\lambda > 0$. La figure 6.12 donne l'évolution des valeurs propres pour la série d'échantillon de Cu/W de période $\Lambda = 12$ nm. Les courbes représentent les valeurs propres calculées pour tous les empilements possibles de période égale à 12 nm et de rapport d'épaisseurs compris entre 0 et 5. Les caractéristiques des échantillons sont données dans le tableau 6.4.

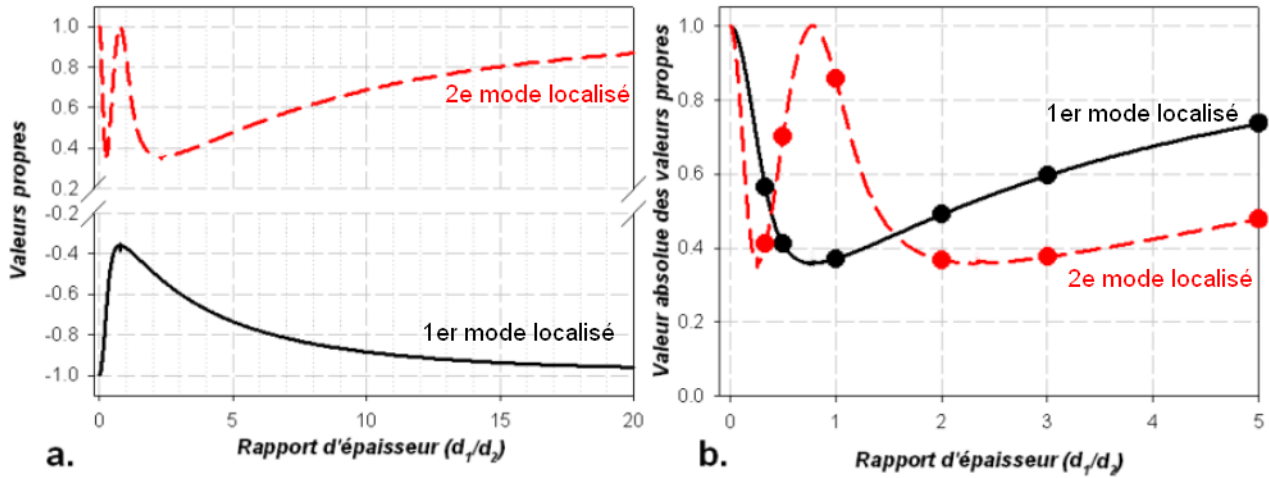


FIG. 6.12 – **a.** - Valeurs propres des deux premiers modes localisés calculées pour des multicouches Cu/W de période $\Lambda = 12$ nm. **b.** - Valeur absolue de ces valeurs propres.

Grâce aux valeurs propres, on peut établir une règle de sélection des modes localisés et ainsi avoir une idée des modes qui seront favorisés à l'excitation et à la détection. Pour ce faire, on distingue les bandes interdites paires et impaires :

- **Dans une bande interdite impaire (bord de zone)**, la valeur propre associée au mode localisé est négative. Sa valeur absolue doit être la plus petite possible pour que le mode soit favorisé.
- **Dans une bande interdite paire (centre de zone)**, la valeur propre associée au mode localisé est positive. Sa valeur absolue doit se rapprocher de l'unité pour que l'excitation de ce mode localisé soit favorisée.

En résumé, il faut que $|\lambda_i| \lesssim 1$ si i est pair (centre de zone) ou que $|\lambda_i| \sim 0$ si i est impair (bord de zone).

Nous avons mené des expériences d'acoustique picoseconde sur des échantillons de rapports d'épaisseurs divers tout en gardant une période fixée à 12 nm. Les figures 6.12a. et 6.12b. montrent l'évolution des valeurs propres et de leur valeur absolue. Les valeurs repérées par des points désignent les échantillons pour lesquels nous avons pu faire des mesures. Avec une période de cet ordre de grandeur ($\Lambda = 12$ nm), les rapports d'épaisseurs possibles sont limités par les possibilités d'élaboration, avec l'état de l'art actuel, il n'est pas possible de faire des échantillons avec une période de 12 nanomètres et un rapport d'épaisseur de 20 ou 1/20. Cela nécessiterait de produire des couches de 11.43 nm et de 0.57 nm ; les problèmes dus à l'élaboration de ces multicouches sont pour l'instant trop importants pour obtenir de tels échantillons car cela impliquerait d'être capable de déposer des métaux au plan atomique près. Les rapports d'épaisseurs dont

nous disposons s'étalent de $1/3$ à 5 .

La figure 6.12a. montre les valeurs propres calculées pour des rapports allant de 0 à 20. D'après les règles que nous venons de donner, des échantillons avec des rapports d'épaisseur important devrait favoriser le second mode localisé. Il en va de même pour les valeurs très faibles de r . Nous n'avons pas pu mener d'expériences pour les valeurs extrêmes de r , mais on comprend bien que le mode localisé de plus haute fréquence tende à être favorisé dans ces cas puisque l'épaisseur d'une des couches est très faible, ce qui est propice à des résonances de fréquence élevée. Les mesures que nous avons menées sur cette série d'échantillons confirment la règle qualitative que nous avons énoncée. En effet, le mode localisé de bord de zone est sollicité pour tous les échantillons que nous avons étudiés car les valeurs propres sont toujours assez proches de la valeur maximale qu'elles peuvent atteindre. De plus, la fréquence correspondant à ces modes est inférieure à 200 GHz et se trouve donc peu atténuée. D'après la figure 6.12b., l'amplitude spectrale (amplitude au maximum de la raie) de ce premier mode localisé doit décroître avec le rapport d'épaisseur r .

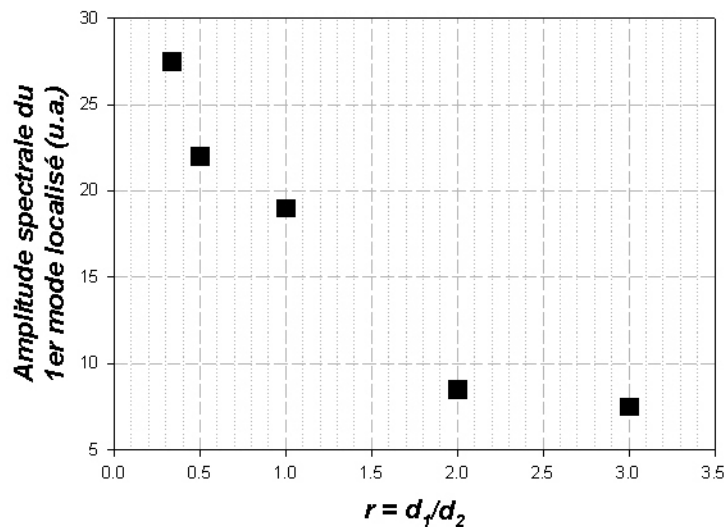


FIG. 6.13 – Décroissance de l'amplitude spectrale du premier mode localisé mesuré en acoustique picoseconde pour des multicouches Cu/W de période $\Lambda = 12$ nm.

En effet la figure 6.13 montre que les amplitudes spectrales les plus fortes pour le premier mode localisé lorsque r est faible. Pour des valeurs plus importantes de l'épaisseur de la période, l'amplitude du mode localisé reste faible car la lumière ne pénètre pas suffisamment dans l'empilement pour que sa périodicité permette d'engendrer des modes localisés d'amplitude significative. La diminution du nombre de couches entraîne un élargissement de la raie correspondant au mode. En théorie, le mode localisé a une

amplitude infinie si l'empilement multicouche est infini, si ce n'est pas le cas, les modes perdent d'autant plus leur caractère localisé que le nombre de périodes est faible.

D'après la figure 6.12b, le mode localisé de centre de zone devrait être favorisé pour des rapports de 0.5 à 1. Pour les valeurs de 2 à 5 du rapport, la valeur propre correspondante atteint ses valeurs minimales et ce mode est peu excité. Les mesures que nous avons conduites tendent à le confirmer, puisque les spectres obtenus pour ces valeurs de r ne présentent pas de raies significatives dans la bande interdite correspondante, alors que c'est bien le cas lorsque la valeur propre tend vers un.

La figure 6.14 présente les spectres mesurés sur les échantillons de période égale à 12 nm avec des rapports d'épaisseurs variant de 1/3 à 5.

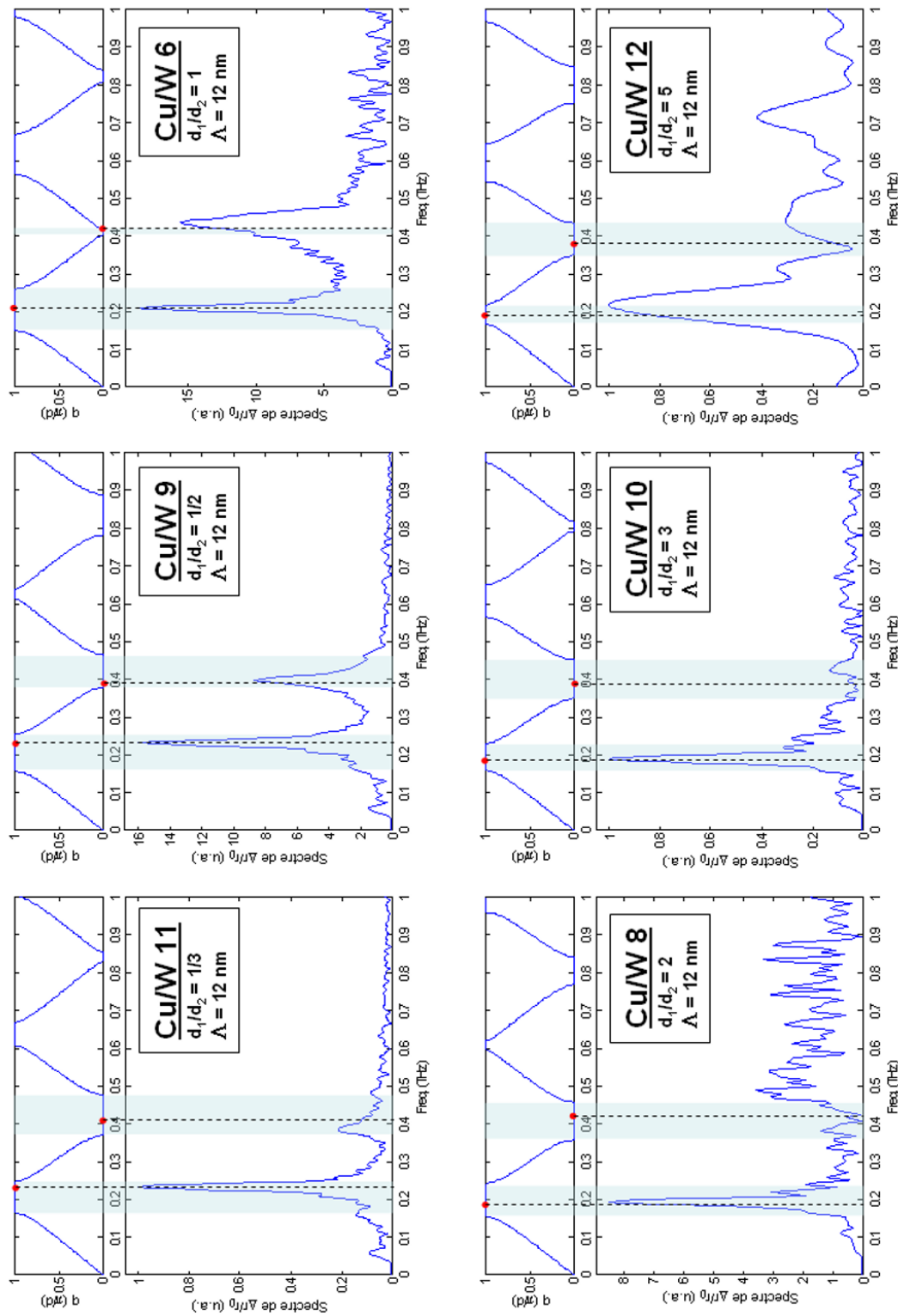


FIG. 6.14 – Spectres expérimentaux pour les échantillons de 12 nm de période.

Nous avons également procédé à des mesures sur des échantillons d'épaisseurs différentes et de rapport d'épaisseur constant et égal à 1. Dans ce cas, les valeurs propres pour les deux premiers modes localisés sont respectivement $\lambda_1 = -0,42$ et $\lambda_2 = 0,98$. Dans ce cas de figure, les valeurs propres sont proches de leurs maxima respectifs et les deux modes doivent donc apparaître. La figure 6.15 montre trois spectres pour des empilements avec des rapports d'épaisseurs égaux à un et de périodes différentes ; on peut y vérifier que les deux modes apparaissent simultanément sur ces trois mesures.

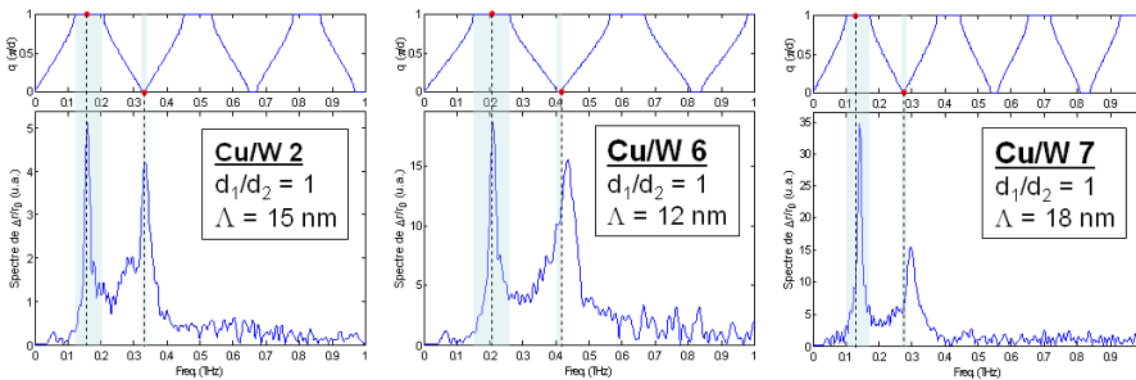


FIG. 6.15 – Spectres du changement relatif de réflectivité pour trois multicouches Cu/W de rapport d'épaisseur unité.

6.3 Étude préliminaire d'échantillons multicouches en transmission

Dans cette dernière partie, nous allons montrer les résultats préliminaires d'une étude en transmission. Le but de cette expérience est de tenter une transduction haute fréquence à travers un échantillon de taille significative. Nous avons donc tenté de traverser un échantillon de silicium de $269 \mu\text{m}$. Avec une longueur d'onde de 750 nm pour le faisceau sonde du laser, la longueur d'absorption dans le silicium est $\xi = 6,63 \mu\text{m}$ il faut donc déposer un transducteur sous peine d'être gêné par des oscillations Brillouin. L'échantillon étudié présente donc quatre périodes Cu_4/W_8 d'une épaisseur totale de 48 nm , un substrat de silicium et un film d'aluminium de 30 nm (le transducteur pour la détection). Pour mener à bien cette expérience, il est nécessaire de refroidir l'échantillon pour minimiser l'influence de l'atténuation acoustique sur les plus hautes fréquences du spectre. Ainsi nos expériences de transmission ont été menées à une température de 15 K .

Lors des expériences en transmission, les réglages sont rendus très délicats pour plusieurs raisons. D'une part le simple fait de faire des mesures en transmission pose des

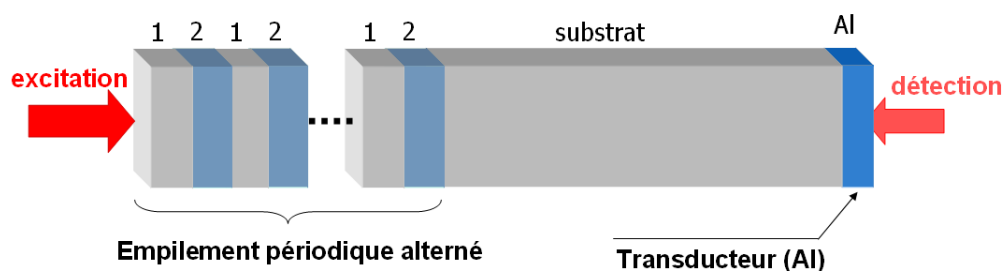


FIG. 6.16 – Transmission à travers un échantillon. On excite (pompe) du côté de l'empilement et on tente de détecter sur l'autre face avec une couche d'aluminium jouant le rôle de transducteur

problèmes d'alignement. En effet, dans ce cas on ne peut pas se baser sur la superposition des faisceaux pompe et sonde puisqu'ils ne sont pas réfléchis sur la même face. On doit donc utiliser un jeu de diaphragmes pour superposer les faisceaux en l'absence de l'échantillon puis on replace celui-ci le plus perpendiculairement possible par rapport aux faisceaux. D'autre part les réglages sont aussi rendus difficiles à cause de la présence d'un cryostat, celui-ci nous permet de faire des mesures en basses températures (jusqu'à environ 15 K). Dans ce cas, nous sommes beaucoup moins gênés par l'atténuation des ondes ultrasonores mais en contrepartie il est plus difficile de faire les réglages car l'échantillon est beaucoup plus difficile d'accès.

Malgré ces difficultés, nous avons pu procéder à des mesures en transmission. La figure 6.17 montre le signal mesuré en excitant les ondes acoustiques du côté du multicouche et en détectant le signal transmis vers l'autre face sur une couche d'aluminium (voir le schéma de la figure 6.16). Pour la détection, nous avons utilisé un interféromètre de Sagnac. La figure 6.17 montre les signaux de sortie de la détection synchrone. Nous avons représenté ses deux voies car dans le cas d'échantillons épais, il est possible de détecter des échos sur chacune des deux voies. En effet, la détection synchrone est conçue pour minimiser le terme de phase entre ses voies X et Y de façon à ce qu'elles soient en quadrature de phase, ainsi, lorsque le signal est maximal sur une voie, il doit être minimal sur l'autre voie. Dans la pratique, le système a un temps de réponse correspondant à la durée d'observation du signal, si celui-ci n'est plus négligeable devant la période de modulation utilisée, alors le terme de phase entre les deux voies de la détection synchrone augmente. On peut donc détecter des échos sur l'une ou l'autre des voies X et Y en fonction du nombre de traversées effectuées. Cette astuce nous permet de discriminer les échos présents sur un signal enregistré.

Sur cette acquisition de 4.5 ns on distingue les deux premiers échos acoustiques, chacun d'eux est dédoublé car ils sont détectés par chacun des deux bras de l'interféromètre de Sagnac et on détecte donc quatre échos sur chacune des deux voies de la détection

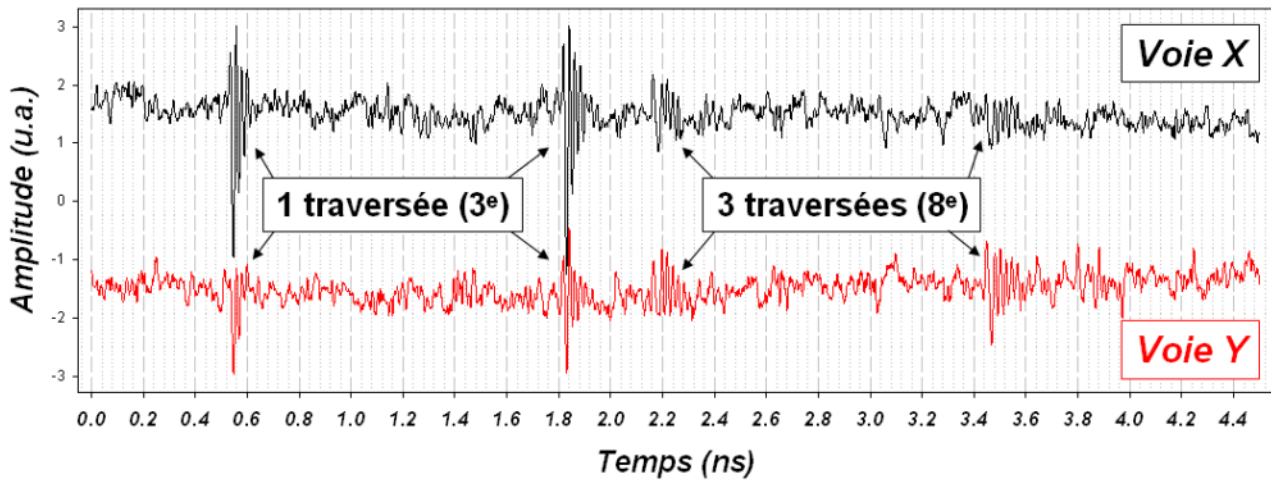


FIG. 6.17 – Signaux mesurés en transmission avec un interféromètre de Sagnac. Les ondes effectuent des aller/retour à travers un échantillon constitué d'un multicouche Cu_4/W_8 déposé sur un substrat de silicium. L'autre face du substrat est couverte d'une couche d'aluminium. Les signaux représentés sont donnés par les deux voies de la détection synchrone. chaque écho acoustique apparaît deux fois à cause des deux bras de l'interféromètre. L'écho qui a achevé une traversée est détecté par la troisième impulsion sonde et l'écho qui a effectué 3 traversées est détecté par la huitième.

synchrone. L'écho le plus intense a traversé l'échantillon une seule fois (un aller simple) et le second a effectué 3 traversées (un aller/retour et un aller). Ces échos sont respectivement détectés par la troisième et la huitième impulsion sonde, car le temps nécessaire aux ondes acoustiques pour traverser l'échantillon est de 31.37 ns ce qui excède largement la durée entre deux impulsions (12.219 ns)

En nous basant sur les distances parcourues par les différents faisceaux, nous avons pu faire des mesures plus précises avec notre seconde ligne à retard, qui offre une course beaucoup plus courte mais permet de faire des mesures beaucoup plus rapidement. La figure 6.18 présente le premier écho acoustique, c'est à dire celui qui a effectué une traversée de l'échantillon.

La transformée de Fourier de cet écho est donnée sur la figure 6.19. On peut y voir distinctement quatre pics principaux. Le plus bas de ceux-ci correspond à la composante continue du signal temporel et ne nous intéresse donc pas. Les autres pics correspondent à la résonance ("ringing") de l'ensemble de la structure multicouche. En effet, une couche unique résonne en $v/2d$, si on considère la vitesse effective des ondes acoustiques dans le multicouche ($v_{eff} = 4.61$ nm/ps) et son épaisseur ($d = 48$ nm) alors on a une fréquence de résonance $f_r = 48$ GHz.

Sur le spectre de l'écho, on observe des pics à $f = 46$ GHz, 92 et 139 GHz soient la

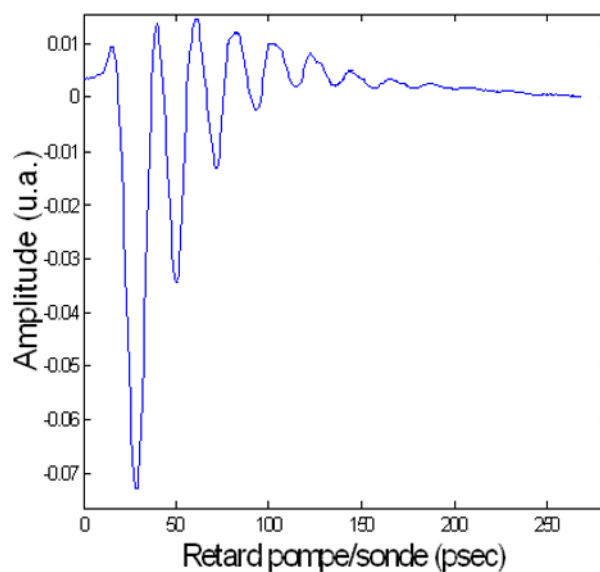


FIG. 6.18 – Echo acoustique ayant traversé le substrat de silicium. L'échantillon est constitué d'un multicouche Cu_4/W_8 déposé sur un substrat de silicium. L'autre face du substrat est couverte d'une couche d'aluminium.

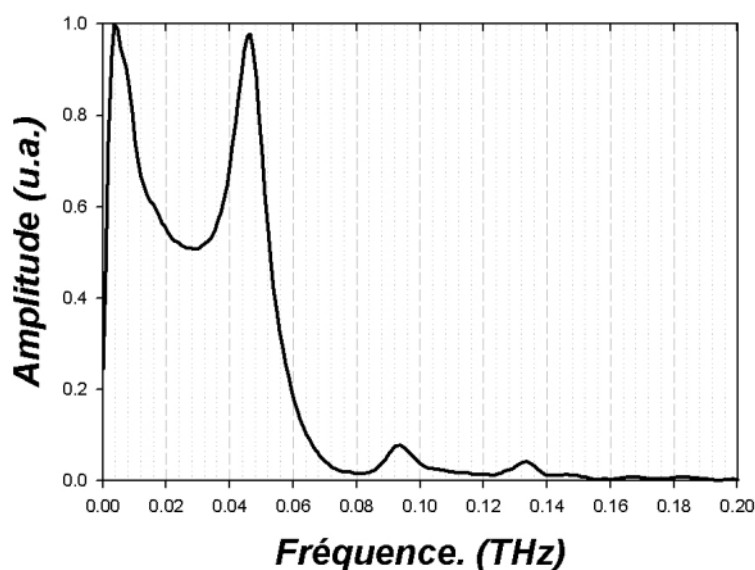


FIG. 6.19 – Transformée de Fourier de l'écho de la figure 6.18.

résonance de l'ensemble de la structure multicouche et ses deux premiers harmoniques. Aucune raie n'est observée pour les fréquences correspondant aux modes localisés de cet empilement. En fait aucune raie n'est observée au delà de 150 GHz. Il s'agit de la limite inférieure de la première bande interdite dans la relation de dispersion du multicouche

utilisé. On peut donc supposer qu'aucune fréquence n'a été émise dans cette bande interdite. Le premier mode localisé a une fréquence de 233 GHz. Cette fréquence n'est pas présente dans le spectre de l'écho acoustique car la rupture d'impédance entre la dernière couche de l'empilement (tungstène) et le substrat (silicium) est trop importante pour que ce mode ai pu être transmis. Cette expérience prouve toutefois qu'il est possible de transmettre des fréquences supérieures à 100 GHz à travers un substrat en silicium de plus de 250 μm d'épaisseur.

6.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudiés des multicouches périodiques alternées sous divers aspects. Ainsi, nous avons validé la théorie du milieu effectif, puis nous avons utilisé ce modèle pour expliquer l'origine d'une instabilité mécanique dans des multicouches *Mo/Ni* dûes à des alliages interfaciaux dont l'influence devient prépondérante lorsque la période diminue.

Une étude d'un jeu d'échantillons multicouches a permis de vérifier les règles d'existence de modes localisés en surface de l'échantillons. Nous avons aussi étudié l'évolution de la fréquence des modes localisés et tenté de dégager des règles de sélection permettant de prédire a priori quels sont les modes qui seront favorisés lors de l'excitation photo-thermique.

Enfin, nous avons mené une étude préliminaire visant à transmettre un mode localisé d'un empilement *Cu/W* à travers un substrat épais de silicium. Une rupture d'impédance trop importante a gêné la transmission des ondes acoustiques mais la transmission des harmoniques de la résonance a montré qu'il était possible de transmettre des fréquences dépassant 150 GHz. Il serait donc intéressant de procéder à une nouvelle série d'expérience avec un multicouche mieux adapté en impédance à son substrat et conçu pour que ses fréquences de modes localisés se situent autour de 150 GHz.

Conclusion et perspectives

Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse a consisté à étudier des structures multicouches métalliques en vue de procéder à la transduction ultrasonore de très haute fréquence. Pour cela, nous avons utilisé des méthodes d'acoustique picoseconde. L'utilisation conjointe d'une détection synchrone et de montages interférométriques pour détecter les ondes ultrasonores nous a permis de détecter des variations de réflectivité inférieures à 10^{-6} . Si on étudie un film mince, on peut créer des ondes élastiques dont la fréquence peut atteindre 200 GHz. Une façon de contourner les limitations intrinsèques au film mince pour l'excitation de hautes fréquences est de tirer parti de la nanostructuration. On imprime ainsi une modulation de courte période à la contrainte. De plus, un empilement périodique permet de confiner des modes résonnants localisés à la surface de l'échantillon. Afin de prévoir le comportement de milieux stratifiés, nous avons utilisé le modèle développé par Bernard PERRIN et Clément ROSSIGNOL [42] permettant de calculer théoriquement et numériquement la variation relative de réflectivité d'une structure multicouche quelconque. À partir de ces travaux, nous avons également adapté ce formalisme pour calculer les fonctions émettrices et détectrices de transducteurs subtérahertz constitués d'empilements périodiques fini de couches. Ainsi nous avons pu observer l'évolution du spectre acoustique en fonction de la profondeur de l'interface dans l'empilement. L'étude théorique d'empilements multicouches périodiques nous a permis de mettre en évidence l'ouverture de bandes interdites dans la relation de dispersion ainsi que l'existence de modes résonnants localisés principalement à la surface. De plus, l'ensemble des résultats théoriques nous ont permis de déterminer le nombre optimal de périodes pour procéder à la transduction de modes localisés à travers un substrat. L'optimisation expérimentale en intensité et en énergie des modes résonnants des multicouches métalliques se heurte à des difficultés liées aux méthodes de dépôts et notamment à l'interdiffusion entre les couches ; c'est pourquoi nous avons étudié l'influence de la formation d'alliages interfaciaux sur le comportement élastique de la structure grâce à des systèmes modèles : les solutions solides.

L'étude tant théorique qu'expérimentale de structures multicouches nécessite la compréhension de nombreux phénomènes et la maîtrise de techniques expérimentales avancées. Avant de considérer des empilements, il est nécessaire de comprendre et de modéliser le cas d'un film mince. Nous avons donc mis en place un modèle décrivant l'excitation

et la détection d'ondes ultrasonores avec une impulsion laser ultrabrève. Notre modèle ne tient pas compte de la diffusion thermique ni de la diffusion électronique ; il est valable pour les matériaux isotropes ou cubiques et permet d'exprimer le déplacement acoustique à la surface du film (et à chaque interface) ainsi que la variation de réflectivité induite. Par ailleurs, l'étude des empilements périodiques nous a permis de montrer qu'il existe deux conditions pour exciter des modes localisés dans les bandes interdites. Il faut qu'un terme de la matrice de transfert de la bicouche s'annule ($\tau_{a,21} = 0$) et que l'impédance acoustique de la couche de surface soit plus faible que la couche sous-jacente ($Z_1 < Z_2$). Dans ce cas, on peut calculer la fréquence des modes localisés, celle-ci varie comme l'inverse de l'épaisseur de la période de l'empilement. Puis, l'étude d'un jeu complet d'échantillons multicouches périodiques Cu/W nous a permis d'étudier plus spécifiquement les modes localisés. Ainsi, nous avons vérifié les conditions d'existence de ces modes. Nous avons observé l'évolution de la fréquence en fonction de la composition de l'empilement et validé les théories avancées pour leur détermination. Par la suite, le calcul de valeurs propres associées aux modes localisés ($|\lambda| < 1$) nous a autorisé à dégager des règles de sélection permettant de prévoir quel mode sera favorisé lors de l'excitation de la structure. Pour les bandes interdites de bord de zone, la valeur absolue de la valeur propre doit être minimale et pour les bandes interdites de centre de zone, la valeur absolue de la valeur propre doit être maximale. Enfin, nous avons procédé à des expériences de transmission à travers un substrat épais. Ces expériences sont très difficiles à mettre en oeuvre, néanmoins elles ont montré qu'il est possible de transmettre des ultrasons de fréquences supérieures à 150 GHz à travers un substrat de $269 \mu\text{m}$ à 15 K. Nous n'avons pas observé de raies spectrales correspondant aux modes localisés à cause d'une rupture d'impédance trop importante entre l'empilement et le substrat.

Dans le système *Mo/Ni*, lorsque l'épaisseur des couches diminue, on observe une anomalie élastique incarnée par une chute drastique des constantes élastiques effectives de l'échantillon. Nous avons montré que lorsque la période de multicouches *Mo/Ni* diminue la constante élastique longitudinale effective de la structure s'effondre et subit un adoucissement de 25%. L'étude de solutions solides $\text{Mo}_x\text{Ni}_{1-x}$ en couche mince nous a permis de montrer que cet adoucissement est dû à la formation d'alliages interfaciaux dont nous avons pu évaluer l'épaisseur à $1,3 \pm 0,1 \text{ nm}$. Une étude approfondie des solutions solides nous a permis de valider expérimentalement le modèle que nous avons établi pour les films minces. L'ajustement simultané de l'amplitude et de la phase de la variation relative de réflectivité a permis d'expliquer la forme des échos acoustiques et d'ajuster l'indice optique et un coefficient photoélastique pour un film mince. Une dissymétrie dans la forme des échos de certains échantillons a pu être attribuée à un défaut d'adhésion du film sur son substrat.

Les perspectives de ce travail sont nombreuses tant sur le plan expérimental que

théorique. D'un point de vue expérimental, on peut penser à quelques améliorations des protocoles de mise au point lors d'expériences en transmission, car dans ce cas l'alignement des faisceaux est délicat et nous n'avons pas encore de méthode systématique pour le réglage et l'amélioration des signaux mesurés. Les expériences seraient également plus aisées avec un cryostat permettant un accès plus facile à l'échantillon. Pour le modèle que nous avons développé, il serait intéressant de prendre en compte certains phénomènes comme la diffusion thermique et la diffusion électronique. Ceci étendrait encore le domaine de validité du modèle, notamment dans le cas des métaux nobles pour lesquels la diffusion électronique joue un rôle important. La poursuite des expériences de transmission avec les empilements métalliques mérite des mesures supplémentaires notamment avec une meilleure adaptation d'impédance entre l'empilement et le substrat. Il est également possible de s'intéresser à des empilements de semiconducteurs ou métal/semiconducteur comme *Mo/Si* qui est un système très étudié car il reste actuellement l'un des meilleurs systèmes pour réaliser des miroirs à rayons *X*. L'étude d'empilements de semiconducteurs comme *GaAs/AlAs* ouvre également des perspectives intéressantes pour réaliser des cavités acoustiques à très hautes fréquences de résonance grâce à la grande maîtrise de la croissance en épitaxie par jets moléculaires. Enfin, les aspects non linéaires conduisent également à des développements intéressants, notamment avec l'excitation de solitons acoustiques qui constituent un autre moyen pour exciter des fréquences acoustiques élevées. Ils présentent l'avantage de se propager sans se déformer et pourraient par exemple permettre l'étude de nanostructures.

Annexes

Annexe A

Expression du changement relatif de réflectivité

$$\frac{\Delta r}{r_0}(\omega) = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left\{ \frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} dz \eta_m(z, \omega) [a_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-ik_m \cos \theta_m z}]^2 + 2\varepsilon_m \cos \theta_m (u_m(\omega) - u_{m-1}(\omega)) a_m b_m \right\} \quad (\text{A.1})$$

avec $\frac{\partial \varepsilon_0}{\partial \eta} = 0$, $d_{N+1} \rightarrow +\infty$ et $u_{-1} = 0$.

Nous allons expliciter les variations relatives du changement de réflectivité en fonction des expressions du déplacement et des déformations acoustiques exprimés dans la partie précédente :

$$u_m(z, \omega) = \left[\begin{array}{c} A_m(\omega) e^{iq_m z} + B_m(\omega) e^{-iq_m z} \\ -\alpha_m D_{\alpha_m}(\omega) (E_{1;m} e^{-\alpha_m z} - E_{2;m} e^{\alpha_m z}) - i\kappa_m D_{\kappa_m}(\omega) (-E_{3;m} e^{i\kappa_m z} + E_{4;m} e^{-i\kappa_m z}) \end{array} \right]$$

$$\eta_m(z, \omega) = \left[\begin{array}{c} iq_m (A_m(\omega) e^{iq_m z} - B_m(\omega) e^{-iq_m z}) \\ +\alpha_m^2 D_{\alpha_m}(\omega) (E_{1;m} e^{-\alpha_m z} + E_{2;m} e^{\alpha_m z}) - \kappa_m^2 D_{\kappa_m}(\omega) (E_{3;m} e^{i\kappa_m z} + E_{4;m} e^{-i\kappa_m z}) \end{array} \right]$$

A.1 Expression de l'intégrale photoélastique

On pose :

$$I_m(\omega) = \int_0^{d_m} dz \eta_m(z, \omega) [a_m e^{2ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-2ik_m \cos \theta_m z} + 2a_m b_m] \quad (\text{A.2})$$

$$I_m(\omega) = \quad (\text{A.3})$$

$$\begin{aligned}
& iq_m A_m \left[\begin{array}{l} \frac{a_m^2}{i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)} \left(e^{i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{b_m^2}{i(q_m - 2k_m \cos \theta_m)} \left(e^{i(q_m - 2k_m \cos \theta_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{2a_m b_m}{iq_m} \left(e^{iq_m d_m} - 1 \right) \end{array} \right] \\
& - iq_m B_m \left[\begin{array}{l} \frac{a_m^2}{i(2k_m \cos \theta_m - q_m)} \left(e^{i(2k_m \cos \theta_m - q_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{b_m^2}{-i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)} \left(e^{-i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{2a_m b_m}{-iq_m} \left(e^{-iq_m d_m} - 1 \right) \end{array} \right] \\
& + \alpha_m^2 D_{\alpha_m} E_{1;m} \left[\begin{array}{l} \frac{a_m^2}{2ik_m \cos \theta_m - \alpha_m} \left(e^{(2ik_m \cos \theta_m - \alpha_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{b_m^2}{-(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)} \left(e^{-(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{2a_m b_m}{-\alpha_m} \left(e^{-\alpha_m d_m} - 1 \right) \end{array} \right] \\
& + \alpha_m^2 D_{\alpha_m} E_{2;m} \left[\begin{array}{l} \frac{a_m^2}{2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m} \left(e^{(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{b_m^2}{-2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m} \left(e^{-(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{2a_m b_m}{\alpha_m} \left(e^{\alpha_m d_m} - 1 \right) \end{array} \right] \\
& - \kappa_m^2 D_{\kappa_m} E_{3;m} \left[\begin{array}{l} \frac{a_m^2}{i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)} \left(e^{i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{b_m^2}{i(-2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)} \left(e^{i(-2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{2a_m b_m}{i\kappa_m} \left(e^{i\kappa_m d_m} - 1 \right) \end{array} \right] \\
& - \kappa_m^2 D_{\kappa_m} E_{4;m} \left[\begin{array}{l} \frac{a_m^2}{i(2k_m \cos \theta_m - \kappa_m)} \left(e^{i(2k_m \cos \theta_m - \kappa_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{b_m^2}{-i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)} \left(e^{-i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)d_m} - 1 \right) \\ + \frac{2a_m b_m}{-i\kappa_m} \left(e^{-i\kappa_m d_m} - 1 \right) \end{array} \right]
\end{aligned}$$

A.2 Expression de la variation de déplacements

$$U_m(\omega) = u_m(\omega) - u_{m-1}(\omega) \quad (\text{A.4})$$

$$U_m(\omega) = \left\{ \begin{array}{l} A_m + B_m - \alpha_m D_{\alpha_m} (E_{1;m} - E_{2;m}) - i\kappa_m D_{\kappa_m} (-E_{3;m} + E_{4;m}) \\ - (A_{m-1} + B_{m-1} - \alpha_{m-1} D_{\alpha_{m-1}} (E_{1;m-1} - E_{2;m-1}) - i\kappa_{m-1} D_{\kappa_{m-1}} (-E_{3;m-1} + E_{4;m-1})) \end{array} \right\} \quad (\text{A.5})$$

A.3 Somme des 2 contributions

$$\frac{\Delta r}{r_0}(\omega) = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left\{ \frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} I_m(\omega) + 2\varepsilon_m \cos \theta_m U_m(\omega) a_m b_m \right\} \quad (\text{A.6})$$

$$\frac{\Delta r}{r_0}(\omega) = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \quad (\text{A.7})$$

$$\begin{aligned}
& + A_m \left\{ i q_m \frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \left[\frac{a_m^2}{i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)} \left(e^{i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{b_m^2}{i(q_m - 2k_m \cos \theta_m)} \left(e^{i(q_m - 2k_m \cos \theta_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{2a_m b_m}{i q_m} \left(e^{i q_m d_m} - 1 \right) \right] + 2\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m \right\} \\
& + B_m \left\{ -i q_m \frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \left[\frac{a_m^2}{i(2k_m \cos \theta_m - q_m)} \left(e^{i(2k_m \cos \theta_m - q_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{b_m^2}{-i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)} \left(e^{-i(q_m + 2k_m \cos \theta_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{2a_m b_m}{-i q_m} \left(e^{-i q_m d_m} - 1 \right) \right] + 2\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m \right\} \\
& + \alpha_m D_{\alpha_m} E_{1;m} \left\{ \alpha_m \left[\frac{a_m^2}{2ik_m \cos \theta_m - \alpha_m} \left(e^{i(2ik_m \cos \theta_m - \alpha_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{b_m^2}{-(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)} \left(e^{-i(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{2a_m b_m}{-\alpha_m} \left(e^{-\alpha_m d_m} - 1 \right) \right] - 2\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m \right\} \\
& + \alpha_m D_{\alpha_m} E_{2;m} \left\{ \alpha_m \left[\frac{a_m^2}{2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m} \left(e^{i(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{b_m^2}{-2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m} \left(e^{-i(2ik_m \cos \theta_m + \alpha_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{2a_m b_m}{\alpha_m} \left(e^{\alpha_m d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + 2\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m \right] \right\} \\
& + \kappa_m D_{\kappa_m} E_{3;m} \left\{ -\kappa_m \left[\frac{a_m^2}{i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)} \left(e^{i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{b_m^2}{i(-2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)} \left(e^{i(-2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{2a_m b_m}{i \kappa_m} \left(e^{i \kappa_m d_m} - 1 \right) \right] + 2i\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m \right\} \\
& + \kappa_m D_{\kappa_m} E_{4;m} \left\{ -\kappa_m \left[\frac{a_m^2}{i(2k_m \cos \theta_m - \kappa_m)} \left(e^{i(2k_m \cos \theta_m - \kappa_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{b_m^2}{-i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)} \left(e^{-i(2k_m \cos \theta_m + \kappa_m)d_m} - 1 \right) \right. \right. \\
& \quad \left. \left. + \frac{2a_m b_m}{-i \kappa_m} \left(e^{-i \kappa_m d_m} - 1 \right) \right] - 2i\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m \right\} \\
& - \left(\begin{array}{l} A_{m-1} + B_{m-1} - \alpha_{m-1} D_{\alpha_{m-1}} (E_{1;m-1} - E_{2;m-1}) \\ -i \kappa_{m-1} D_{\kappa_{m-1}} (-E_{3;m-1} + E_{4;m-1}) \end{array} \right) 2\varepsilon_m \cos \theta_m a_m b_m
\end{aligned}$$

Annexe B

Données utiles sur les métaux en acoustique picoseconde

L'indice optique $n = n' + in''$ et l'absorption optique ξ sont données pour une longueur d'onde optique de 750 nm.

Eléments	β $10^{-6}K^{-1}$	C_v $J.K^{-1}$	n'	n''	ξ (nm)
Ag	19.1	235	0.146	4.9	12.2
Al	23.5	207	2.40	8.62	7.0
Au	14.1	129	0.170	4.58	13.0
Co	12.5	421	2.750	4.67	12.8
Cr	6.5	449	4.0	4.36	13.7
Cu	17	385	0.23	4.67	12.8
Fe	12.1	449	2.99	3.56	16.8
Mo	5.1	251	3.81	3.46	17.3
Ni	13.3	444	2.35	4.25	14.0
Pt	9	133	2.695	4.74	12.6
Ta	6.5	140	1.195	3.126	19.1
Ti	8.9	523	2.64	3.265	18.3
W	4.5	132	3.78	2.72	22.0
C		709			
Si	7.6	705	3.733	0.009	6631.5

TAB. B.1 – Données optiques et thermodynamiques pour les métaux.

Eléments unités	C_{11}	C_{12}	C_{44}	ρ	B	Z_{100}	Z_{110}	Z_{111}	V_{100}	V_{110}	V_{111}
		(GPa)		($g.cm^{-3}$)	(GPa)	($10^6 kg.m^{-2}.s^{-1}$)	($10^6 kg.m^{-2}.s^{-1}$)	($10^6 kg.m^{-2}.s^{-1}$)		(nm/ps)	
Ag	123	92	45.3	10.5	102.33	35.937	40.055	41.336	3.423	3.815	3.937
Al	108	62	28.3	2.699	77.33	17.073	17.487	17.623	6.326	6.479	6.529
Au	190	161	42.3	19.32	170.667	60.587	64.868	66.234	3.136	3.358	3.428
C	1040	170	550	3.51	460	60.419	63.671	64.719	17.213	18.140	18.439
Co	260	110	160	8.9	160	48.104	55.412	57.643	5.405	6.226	6.477
Cr	346	66	100	7.1	159.33	49.564	46.611	45.584	6.981	6.565	6.420
Cu	169	122	75.3	8.93	137.667	38.848	44.404	46.108	4.350	4.973	5.163
Fe	230	135	117	7.85	166.667	42.491	48.488	50.328	5.413	6.177	6.411
Mo	459	168	111	10.20	265	68.424	65.802	64.905	6.708	6.451	6.363
Ni	247	153	122	8.90	184.33	46.886	53.533	55.573	5.268	6.015	6.244
Pt	347	251	76.5	21.37	283	86.113	89.579	90.705	4.030	4.192	4.245
Si	165	64	79.2	2.33	97.667	19.607	21.244	21.763	8.4152	9.118	9.340
Ta	262	156	82.6	16.6	191.33	65.949	69.574	70.741	3.973	4.191	4.262
Ti				4.48		27.3			6.1		
W	517	203	157	19.3	307.67	99.89	99.89	99.890	5.176	5.176	5.176

TAB. B.2 – Données mécaniques et acoustiques pour les métaux.

Bibliographie

- [1] R.M. White, "Generation of elastic waves by transient surface heating", J. Appl. Phys. Vol 34, Num 12, p.3559, 1963.
- [2] J.H. Bechtel, "Heating of solid targets with laser pulses", J. Appl. Phys., vol 46, num 4, p. 1585-1593, 1975.
- [3] C.B. Scruby, R.J. Dewhurst, D.A. Hutchins, S.B. Palmer, "Quantitative studies of thermally generated elastic waves in laser-irradiated metals", J. Appl. Phys. vol 51, num 12, p. 6210, 1980.
- [4] C.B. Scruby and L.E. Drain, "Laser Ultrasonics : techniques and applications", Adam Hilger, New York, 1990.
- [5] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H.J. Maris, J. Tauc and J.J. Hauser, "Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses", Phys. Rev. Lett., vol 53, num 10, p.989-992, 1984.
- [6] C. Thomsen, H.T. Grahn, H.J. Maris and J. Tauc , "Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses", Phys. Rev. B, vol 34, num 6, p. 4129-4138, 1986.
- [7] Rudolph Technologies Inc, <http://www.rudolphtech.com/>
- [8] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, E. Romatet, "Interferometric detection of hypersonic waves in modulated structures", Prog. Nat. sci. 6, S-444, 1996.
- [9] B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, J.-C. Jeannet, "Interferometric detection in picosecond ultrasonics", Physica B, 263-264, p. 571-573, 1999.
- [10] M. Nikoonahad, S. Lee and H. Wang, "Picosecond photoacoustics using common-path interferometry", Appl. Phys. Lett. vol 76, num 4, p. 514, 2000.
- [11] R.M. Slayton et K.A. Nelson, "Picosecond acoustic transmission measurements. I. Transient grating generation and detection of acoustic responses in thin metal films", J. Chem. Physics, Vol 120, Num 8, p. 3908, 2004.
- [12] E. Péronne, S. Zhang, B. Perrin, "Generation and detection of acoustic solitons in crystalline slabs by laser ultrasonics", Actes du 6ème World Congress on Ultrasonics (WCU), Pekin, 2005.
- [13] B. Perrin, "Systèmes Femtosecondes", édité par P. Laporte et F. Salin, Publications de l'Université de Saint-Etienne, p. 65 ,2001.

- [14] D.H. Hurley, O.B. Wright, O. Matsuda, V.E. Gusev, O.V. Kolosov, "Laser picosecond acoustics in isotropic and anisotropic materials", *Ultrasonics* 38, p. 470-474, 2000.
- [15] O. Matsuda and O.B. Wright, "Theory of Detection of Shear Strain Pulses with Laser Picosecond Acoustics", *Analytical Sciences*, vol.17 Special Issue, s216, 2001.
- [16] K. E. O'Hara, Xiaoyuan Hu, and David G. Cahill, "Characterization of nanostructured metal films by picosecond acoustics and interferometry", *J. Appl. Phys.* vol 90, num 9, p. 4852, 2001.
- [17] 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", *J. Appl. Phys.*, Vol 95, Num 8, p. 4157, 2004.
- [18] Takashi Aono, Yukihiro Tanaka et Shin-ichiro Tamura, "Surface phonons in one-dimensional periodic superlattices", *Physica B* 263-264, 1999.
- [19] O. Matsuda, O.B. Wright, "Laser picosecond acoustics in multilayer structures", *Ultrasonics*, vol 40, p. 753-756, 2002.
- [20] S. Laborde, B. Perrin, G. Abadias et C. Jaouen, "Picosecond ultrasonics study of Mo_xNi_{1-x} solid solutions", *Acte de congrès pour le WCU 2003*, Paris, 7-10 septembre 2003.
- [21] C.J. Morath and H.J. Maris, "Phonon attenuation in amorphous solids studied by picosecond ultrasonics", *Phys. Rev. B.*, vol 54, num 1, p. 203-213, 1996.
- [22] K.C. Bretz, Y.-C. Lee, T.D. Krauss, F.W. Wise, W.H. Sachse, "Picosecond acoustics for the characterization of sub-micron polymeric films", *Ultrasonics* 34, p. 513-515, 1996.
- [23] J.-Y. Duquesne and B. Perrin, "Interaction of collinear transverse acoustic waves in cubic crystals", *Phys. Rev. B*, Vol 63, p. 064303, 2001.
- [24] B.M. Clemens and G.L. Eesley, "Relationship between interfacial strain and the elastic response of multilayer metal films", *Phys. Rev. Lett.*, vol 61, num 20, p. 2356, 1988.
- [25] W. Chen, Y. Lu, H.J. Maris and G. Xiao, "Picosecond ultrasonic study of localized phonon surface modes in Al/Ag superlattices", *Phys. Rev. B*, vol 50, num 19, p. 14506, 1994.
- [26] E. Romatet B. Bonello, R. Gohier, J.-C. Jeannet, and B. Perrin. "Etude des propriétés élastiques de multicouches métalliques par une méthode d'acoustique picoseconde." *J. Phys. IV*, 6, p. C7-143, 1996.
- [27] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, E. Romatet, "Picosecond ultrasonics study of metallic multilayers", *Physica B*, 219-220, p. 681-683, 1996.

- [28] Nen-Wen Pu et Jeffrey Bokor, "Study of Surface and Bulk Acoustic Phonon Excitations in Superlattices using Picosecond Ultrasonics", *Phys. Rev. Lett.*, vol 91, num 7, p. 076101, 2003.
- [29] H.T. Grahn, H.J. Maris, J. Tauc and B. Abeles, "Time-resolved study of vibrations of a-Ge :H/a-Si :H multilayers", *Phys. Rev. B*, vol 38, num 9, p. 6066-6074, 1988.
- [30] P. Basséras, S.M. Gracewski, G.W. Wicks, R.J.D. Miller, "Optical generation of high-frequency acoustic waves in GaAs/Al_xGa_{1-x}As periodic multilayer structures", *J. Appl. Phys.*, vol 75, num 6, p. 2761-2768, 1994.
- [31] J.J. Baumberg et D.A. Williams, "Coherent phonon-plasmon modes in *GaAs* : Al_xGa_{1-x}As heterostructures", *Phys. Rev. B* Vol 53, Num 24, p. 16140, 1996.
- [32] J.J. Baumberg, D.A. Williams et K. Köhler, "Ultrafast Acoustic Phonon Ballistics in Semiconductor Heterostructures", *Phys. Rev. Lett.* Vol 78, Num 17, p. 3328, 1997.
- [33] K. Mizoguchi, M. Hase, and S. Nakashima et M. Nakayama, "Observation of coherent folded acoustic phonons propagating in a GaAs/AlAs superlattice by two-color pump-probe spectroscopy", *Phys. Rev. B*, Vol 60, num 11, p. 8262 ,2003.
- [34] A.J. Kent, N.M. Stanton, L.J. Challis et M. Henini, "Generation and propagation of monochromatic acoustic phonons in gallium arsenide", *Appl. Phys. Lett.* Volume 81, Issue 18, p. 3497, 2002.
- [35] O. Matsuda, I. Ishii, T. Fukui, J.J. Baumberg, O.B. Wright, "Wavelength selective photoexcitation of picosecond acoustic-phonon pulses in a triple *GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As* quantum well structure", *Physica B*, vol 316-317, p. 205-208, 2002.
- [36] C.J. Morath, H. J. Maris, J.J. Cuomo, D.L. Pappas, A. Grill, V.V. Patel, J.P. Doyle, and K.L. Saenger. "Picosecond optical studies of amorphous diamond and diamond-like carbon : thermal conductivity and longitudinal sound velocity". *J. Appl. Phys.*, 76, p. 2636, 1994.
- [37] B. Bonello, B. Perrin, E. Romatet, J.-C. Jeannet, "Application of the picosecond ultrasonic technique to the study of elastic and time-resolved thermal properties of materials ", *Ultrasonics* 35, p. 223-231, 1997.
- [38] B. Bonello, B. Perrin, and C. Rossignol. Photothermal properties of bulk and layered materials by the picosecond acoustics technique. *J. Appl. Phys.*, 83, p. 3081, 1998.
- [39] G. Tas and H.J. Maris, "Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics", *Phys. Rev. B*, vol 49, num 21, p. 15046, 1994.
- [40] O.B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda and V.E. Gusev, "Ultrafast carrier diffusion in gallium arsenide probed with picosecond ultrasonic pulses", *Phys. Rev. B*, vol 64 081202(R), 2001.
- [41] T. Saito, O. Matsuda, and O. B. Wright, "Picosecond acoustic phonon pulse generation in nickel and chromium", *Phys. Rev. B* 67, p.205421 ,2003.

- [42] C. Rossignol "Étude théorique et numérique d'expériences d'acoustique picoseconde", thèse de doctorat de l'université Paris 6, 2000.
- [43] H.-Y. Hao and H. J. Maris, "Study of Phonon Dispersion in Silicon and Germanium at Long Wavelengths Using Picosecond Ultrasonics", *Phys. Rev. Lett.*, vol 84, num 24, p. 5556, 2000.
- [44] G. Tas, J.J. Loomis H.J. Maris, A.A. Bailes III and L.E. Seiberling, "Picosecond ultrasonics study of the modification of interfacial bonding by ion implantation" *Appl. Phys. Lett.*, vol 72, num 18, p. 2235-2237, 1998.
- [45] H.-Y. Hao and H. J. Maris, "Experiments with acoustic solitons in crystalline solids", *Phys. Rev. B*, vol 64 p. 064302, 2001.
- [46] O.L. Muskens and J.I. Dijkhuis, "High Amplitude, Ultrashort, Longitudinal Strain Solitons in Sapphire", *Phys. Rev. Lett.* Vol 89, Num 28, p.285504, 2002.
- [47] B. Perrin, E. Peronne, Non publié.
- [48] O.B. Wright et K. Kawashima, "Coherent phonon detection from ultrafast surface vibrations", *Phys. Rev. Lett.*, vol 69, num 11, p. 1668, 1992.
- [49] W.S. Capinski, H. J. Maris, E. Bauser, I. Silier, M. Asen-Palmer, T. Ruf, M. Cardona, and E. Gmelin. Thermal conductivity of isotopically enriched Si. *Appl. Phys. Lett.*, 71, p. 2109, 1997.
- [50] E. Romatet "Réalisation et applications d'un dispositif d'acoustique picoseconde", thèse de doctorat de l'université Paris 6, 1996.
- [51] M. Garfinkel, J.J. Tiemann and W.E. Engeler, "Piezorefectivity of noble metals", *Phys. Rev.* vol 148, num 2, p. 695-706, 1966.
- [52] O.B. Wright, "Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver", *Phys. Rev. B*, vol 49, num 14, p. 9985, 1994.
- [53] Oliver B. Wright and Vitalyi E. Gusev, "Ultrafast Generation of Acoustic Waves in Copper", *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, Vol 42, num 3, p. 331, 1995.
- [54] V.E. Gusev et O.B. Wright, "Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals", *Phys. Rev. B*, vol 57, num 5, p. 2878, 1998.
- [55] H.-Y. Hao and H. J. Maris, "Study of Phonon Dispersion in Silicon and Germanium at Long Wavelengths Using Picosecond Ultrasonics", *Phys. Rev. Lett.*, vol 84, num 24, p. 5556, 2000.
- [56] A. Devos, C. Lerouge, "Evidence of Laser-Wavelength Effect in Picosecond Ultrasonics : Possible Connection With Interband Transitions", *Phys. Rev. Lett.* Vol 86, Num 12, p.2669, 2001.
- [57] G. Abadias, C. Jaouen, F. Martin, J. Pacaud, Ph. Djemia, and F. Ganot, "Experimental evidence for the role of supersaturated interfacial alloys on the shear elastic softening of Ni/Mo superlattices", *Phys. Rev. B*, Vol 65, p.212105, 2002.

- [58] F. Martin, C. Jaouen, J. Pacaud, G. Abadias, Ph. Djemia and F. Ganot, "Strain, interdiffusion, and microstructural evolution under ion irradiation in Ni(111)/Mo(110) multilayers : Interdependence with elastic properties", *Phys. Rev. B* 71, 045422, 2005.
- [59] M. Grimsditch and F. Nizzoli, "Effective elastic constants of superlattices of any symmetry", *Phys. Rev. B* 33, p. 5891, 1986.
- [60] D. Lide, "CRC Handbook of Chemistry and Physics", CRC Press, Boca Raton Boston New York Washington, 1999.
- [61] Site web de la société "Spectra Physics", <http://www.spectra-physics.com/>
- [62] Site web de la société "SOPRA", <http://www.sopra-sa.com/>
- [63] Site web de la société "ODL",
- [64] Site web du Laboratoire de Métallurgie, <http://lmp.sp2mi.univ-poitiers.fr/>
- [65] Site web de l'IEMN, <http://www.iemn.univ-lille1.fr/>
- [66] I.C. Noyan and J.B. Cohen, "Residual Stress, Measurement by Diffraction and Interpretation" (Springer-Verlag, New-York, 1987)
- [67] G. Abadias and Y.Y. Tse, "Diffraction stress analysis in fiber-textured TiN thin films grown by ion-beam sputtering : Application to (001) and mixed (001)+(111) texture", *J. Appl. Phys.* 95 Issue 5, p. 2414-2428, 2004.
- [68] A. Arya, G.P. Das, S. Banerjee and M.J. Patni, "First-principles calculations of the electronic structure and phase stability of Ni-Mo alloys", *J. Phys. Condens. Matter* 10, p. 8459-8475, 1998.
- [69] Z. J. Zhang and B. X. Liu, "Solid-state reaction to synthesize Ni-Mo metastable alloys", *J. Appl. Phys.* 76 (S), p. 3351, 1994.
- [70] Q. Zhang, Z.C. Li, C. Lin, B. X. Liu, E. Ma, "Glass-forming range of the Ni-Mo system derived from molecular dynamics simulation and generalized Lindemann criterion", *J. Appl. Phys.* 87 p. 4147, 2000.
- [71] Q. Zhang, Z.C. Li, C. Lin, B.X. Liu, E. Ma, "Glass-forming range of the Ni-Mo system derived from molecular dynamics simulation and generalized Lindemann criterion", *J. Appl. Phys.* 87 p. 4147, 2000.
- [72] B.X. Liu, W. L. Johnson, M. A. Nicolet, S.S. Lau, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* 209/210, p. 229, 1983
- [73] A. Debelle, G. Abadias, A. Michel and C. Jaouen, "Stress field in sputtered thin films : Ion irradiation as a tool to induce relaxation and investigate the origin of growth stress", *Appl. Phys. Lett.* Volume 84, Issue 24, p. 5034-5036, 2004.
- [74] L.G. Parrat, "Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays", *Phys. Rev.* 95, p. 359, 1954.
- [75] L. Maillé, C. Sant, P. Garnier, "A nanometer scale surface morphology study of W thin films", *Mat. Sci. Eng. C*, vol 23, p. 913-918, 2003.

Index

Index

- écho, 4
- absorption, 34
 - photothermique, 63
- acoustique
 - picoseconde, 23
- adhésion, 117
- alliage, 104, 111, 125
- amorphe, 107
- bande interdite, 86, 87, 127
- changement relatif de réflectivité, 73, 76
- co-déposition, 104
- contrainte, 35, 64, 107
- couche
 - interfaciale, 93, 124
- courbe de dispersion, 87, 91
- déformation, 36, 37
- déplacement
 - interfaces, 74
 - surface, 39, 84
- détection, 38, 73
- détection synchrone, 48
- densité
 - alliage, 109
- diffraction
 - rayons X, 106
- diffusion
 - électronique, 34, 117, 124
 - thermique, 34
- dissymétrie, 117
- effet
 - photo-élastique, 39, 73
- equation
 - propagation, 36
- evaporation, 104
- excitation, 34, 62, 95, 98
- film
 - interfacial, 93, 124
- film mince, 34
- forme
 - écho, 113, 116
- fortran, 77
- fréquence
 - modes, 88
- frange
 - Kiessig, 108
- interdiffusion, 93
- interférences, 51, 63
- interférométrie, 51
- interféromètre, 46
 - Mach-Zehnder, 52
 - Sagnac, 52, 55
- isotrope, 34
- Kiessig, 108
- LASER, 47
- ligne à retard, 46, 48
- méthode
 - pompe/sonde, 46
- matlab, 77
- matrice de transfert, 68

- électromagnétique, 71, 82
- acoustique, 69, 83
- bicouche, 83
- optique, 82
- période, 83
- milieu effectif, 90, 122
- mode
 - bord de bande, 86
 - localisé, 85, 128
- modulation, 46, 48
 - acousto-optique, 48
- multicouche, 68
 - métallique, 62
 - périodique alterné, 79, 122
- onde
 - stationnaire, 63
- périodicité, 81
- phonon, 62
- photo-élastique, 39
- polynôme
 - caractéristique, 85
- pompe/sonde, 46
- réflectométrie, 49
- règle
 - sélection, 135
- reflexion de rayons X, 105
- relation de dispersion, 85
- rugosité, 107, 109
- simulation numérique, 76
- solution solide, 103, 111
- spectroscopie de rayons X, 105
- sursaturé, 126
- tenseur
 - de Pockels, 73
- transducteur, 95
- transduction, 94
- transmission, 98, 140
- ultrasons, 34
- valeur propre, 83, 86
- vecteur
 - électromagnétique, 64
 - acoustique, 64
 - propre, 83
 - thermo-acoustique, 68