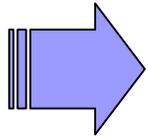


Acoustique Picoseconde dans les multicouches métalliques

Thèse présentée par **M. Stéphane LABORDE**
et dirigée par **M. Bernard PERRIN**

Axe III : Optique et acoustique des couches minces et des nanostructures
Projet 1. Acoustique, optique et thermique ultrarapides dans les nanosystèmes.



Idée :

Source ultrasonore HF pour la physique fondamentale

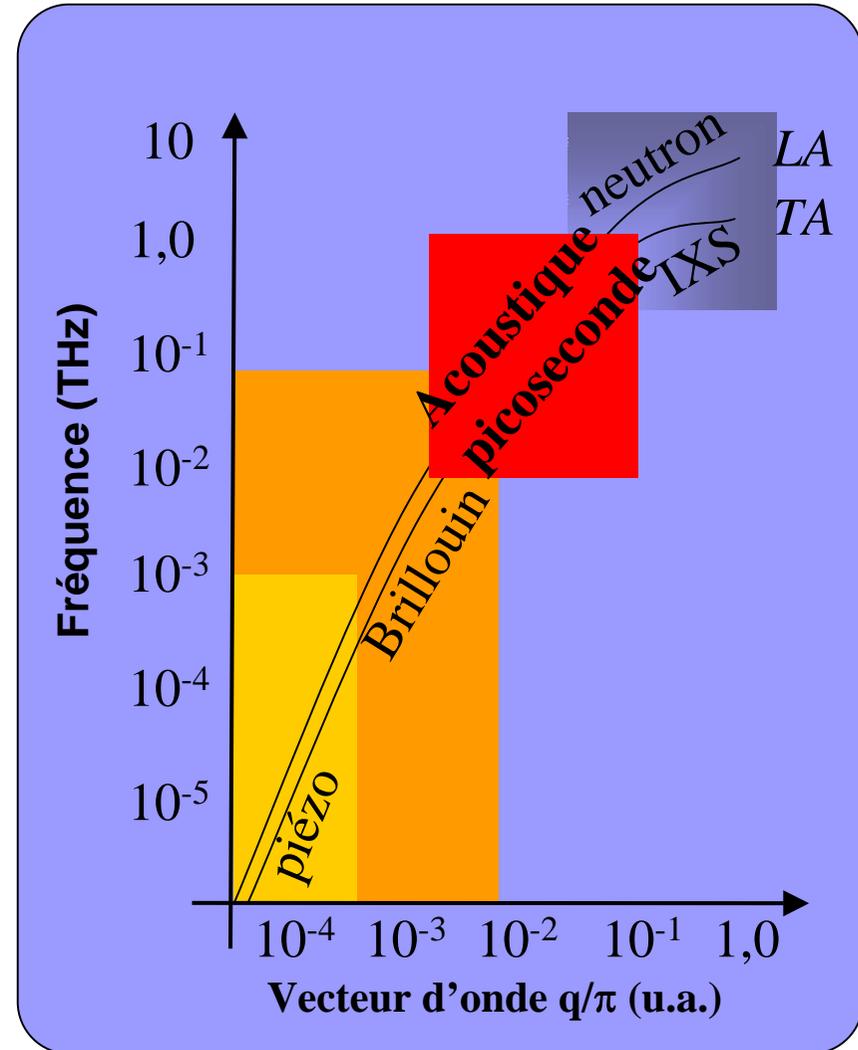
Acoustique Picoseconde en Couche mince jusqu'à 200-300 GHz

Plage de fréquence non explorée : **200 GHz → 1 THz**



Nouvelle idée :

Mettre à profit les nouvelles possibilités offertes par la **Nanostructuration.**



Acoustique Picoseconde

Historique, état de l'art
Principe, modèle théorique 1D
Dispositifs expérimentaux

Étude de films minces

Élaboration et caractérisation de solutions solides
Validation expérimentale du modèle 1D
Forme des échos, adhésion

Les systèmes multicouches

Modes localisés/résonnants
ex. des systèmes *Cu/W*
Anomalie élastique dans le système *Mo/Ni*
Influence des interfaces

Transducteurs multicouches

Vers l'émission de modes résonnants
Expérience de transmission à travers un substrat

Conclusions

perspectives

- 
- Dans les années 1960,**
- Échauffement transitoire pour engendrer des ondes acoustiques

- 
- Avant 1985,**
- Excitation d'ultrasons (\rightarrow 100 MHz) avec des impulsions laser micro ou nanoseconde
 - Bande passante limitée en réception. (capteurs piézo, capacitifs, interféromètres)

- 
- 1985 : Utilisation de la technique Pompe-Sonde**

« Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses »

C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, **H. J. Maris**, J. Tauc, and J. J. Hauser

Phys. Rev. Lett. Vol. 53 Issue 10 :p 989-992 (sept 1984)



L'acoustique picoseconde a permis l'étude de nombreux **phénomènes physiques** et de **nombreux systèmes**.

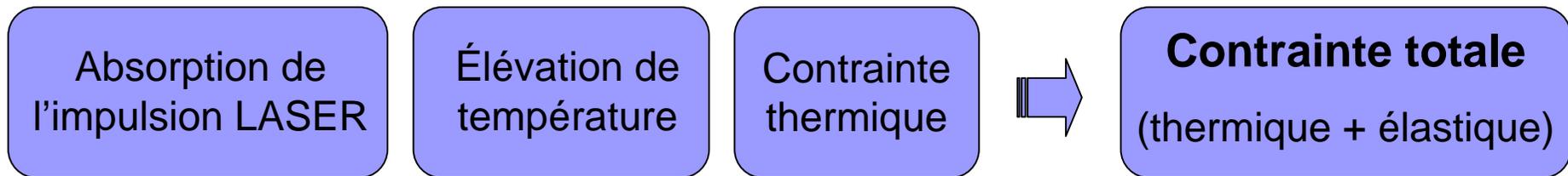
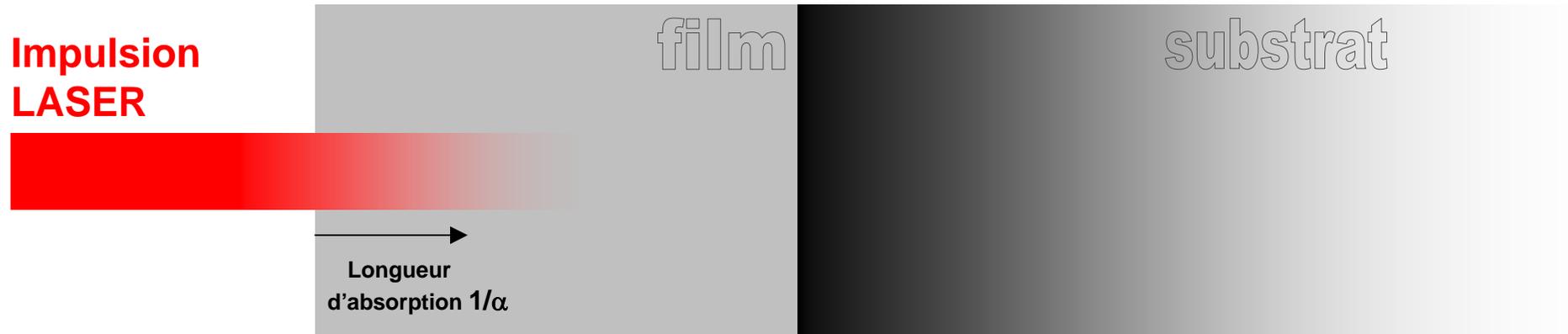
- 
- 1996 : Utilisation de l'interférométrie en Acoustique Picoseconde**

« Interferometric detection of hypersound waves in modulated structures »

B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, E. Romatet,

Prog. Nat. sci. 6, S-444, 1996

Excitation photothermique

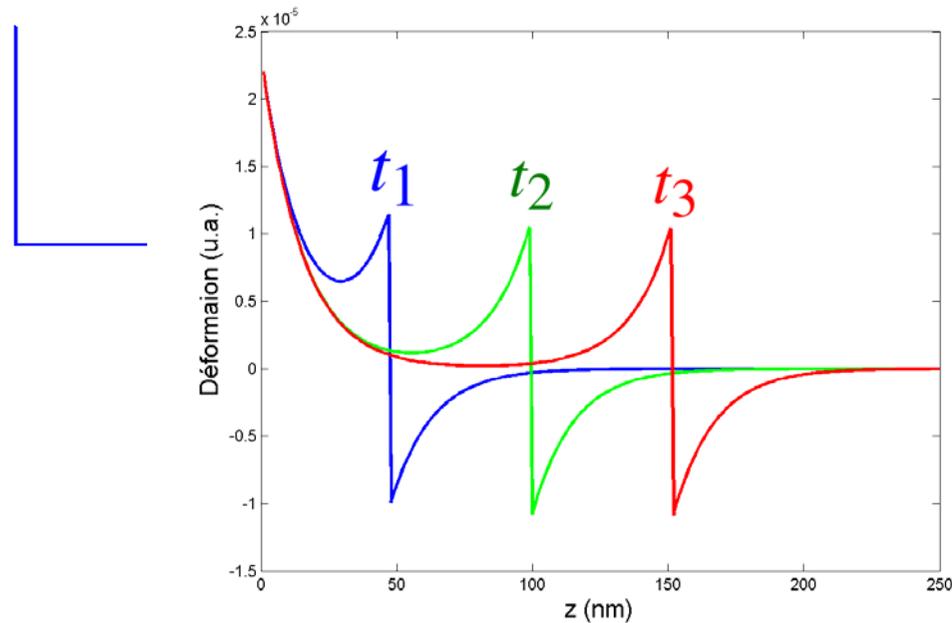


⇒ **Equation de propagation**

$$\frac{\partial^2 \eta(z,t)}{\partial z^2} - \frac{1}{v^2} \frac{\partial \eta(z,t)}{\partial t^2} = \underbrace{\alpha^2 \eta_0 e^{-\alpha z} H(t)}_{\text{Terme source Photo-thermique}}$$

* [6] H.J. Maris *et al.*, Phys. Rev. **B**, vol 34, num 6, p.4129-4138, 1986.

Modèle 1D, excitation (signaux induits)

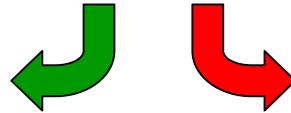


Déformation induite : $\eta(z, t) = \frac{\eta_0}{2} \left[\left(2 - e^{-t/\tau} \right) e^{-\alpha z} - \text{sgn}(z - vt) e^{-|\alpha z - t/\tau|} \right]$

Amplitude de la déformation induite : η_0 (sans dimension),
 10^{-6} à 10^{-4}

Constante de temps : $\tau = \frac{1}{\alpha v}$, qq ps

2 types d'effets



- Effet photo-élastique
- Modification des propriétés diélectriques
- Coefficient de réflexion modifié

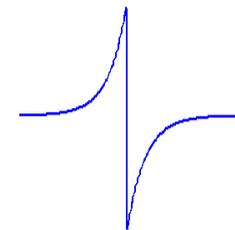
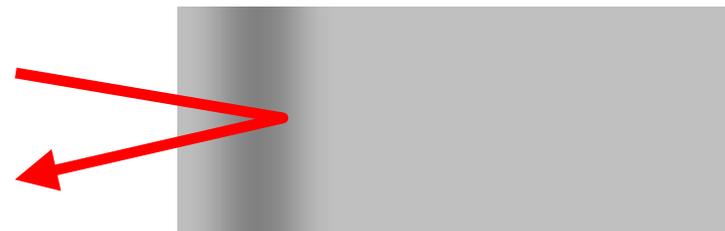
- Déplacement de la surface
- Modification de la phase de la sonde
- Différence de marche avec un bras de référence

La déformation acoustique modifie les propriétés diélectriques, l'indice optique.

 C'est l'effet photo-élastique

La contribution de cet effet, intégrée sur toute l'épaisseur, est

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1-n^2} \int_0^{+\infty} \eta(z,t) e^{2ik_0nz} dz$$



2 types d'effets



- Effet photo-élastique
- Modification des propriétés diélectriques
- Coefficient de réflexion modifié

- Déplacement de la surface
- Modification de la phase de la sonde
- Différence de marche avec un bras de référence

Différence de marche induite par le déplacement de surface

$$\varphi = 2k_0 u(z = 0, t)$$

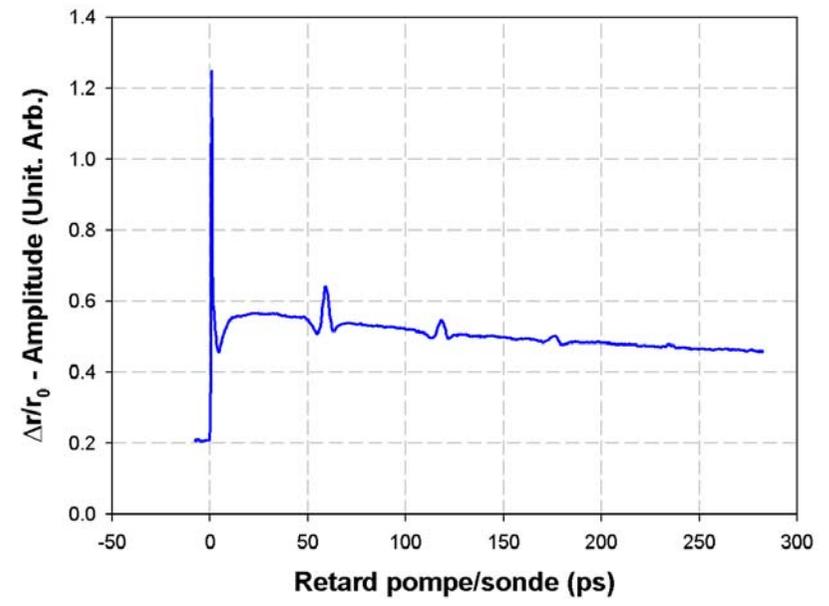
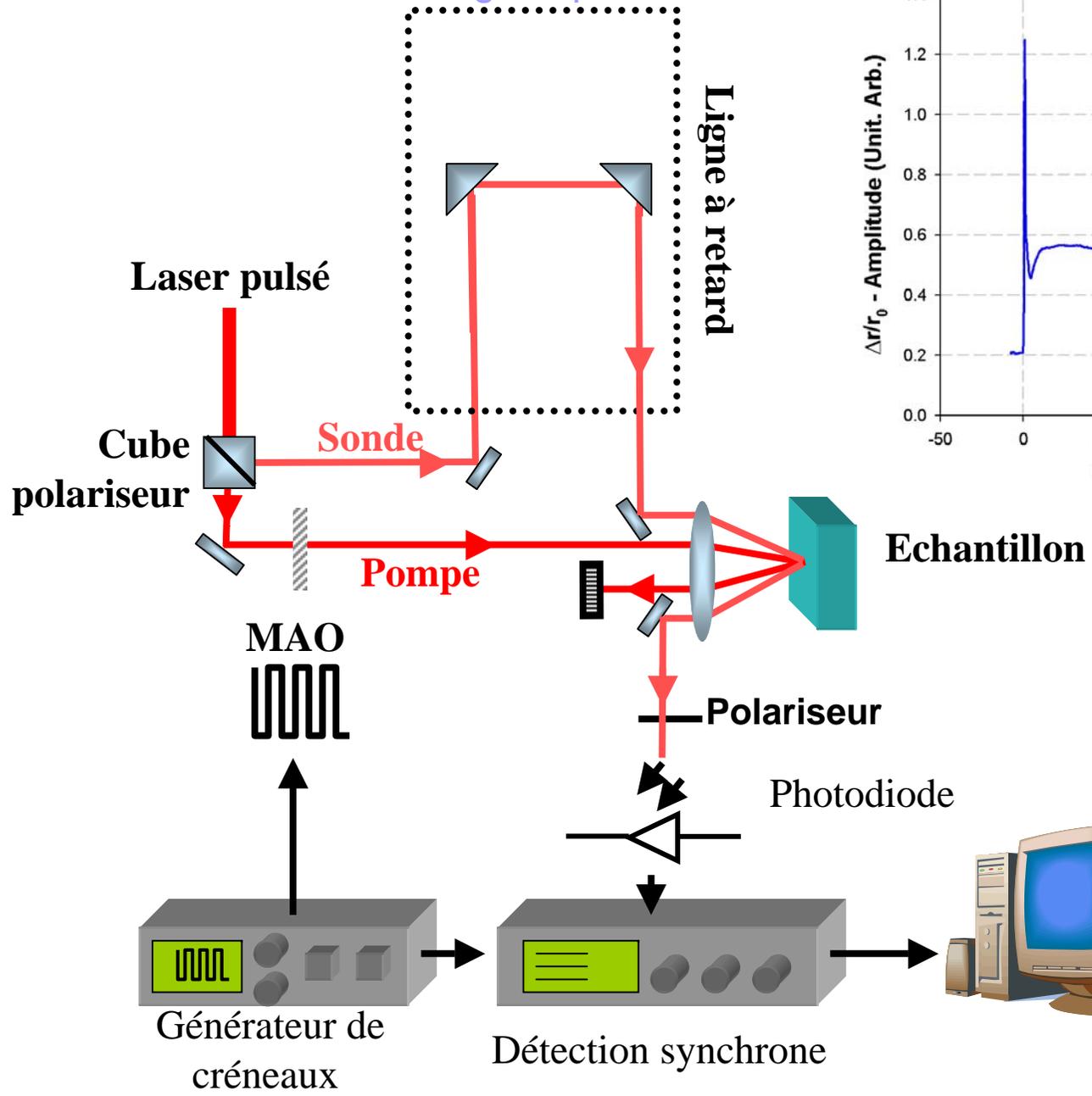
Les déplacements induits sont très faibles donc seule la **partie imaginaire** de $\Delta r(t)/r_0$ est affectée.



$$u(z = 0, t)$$

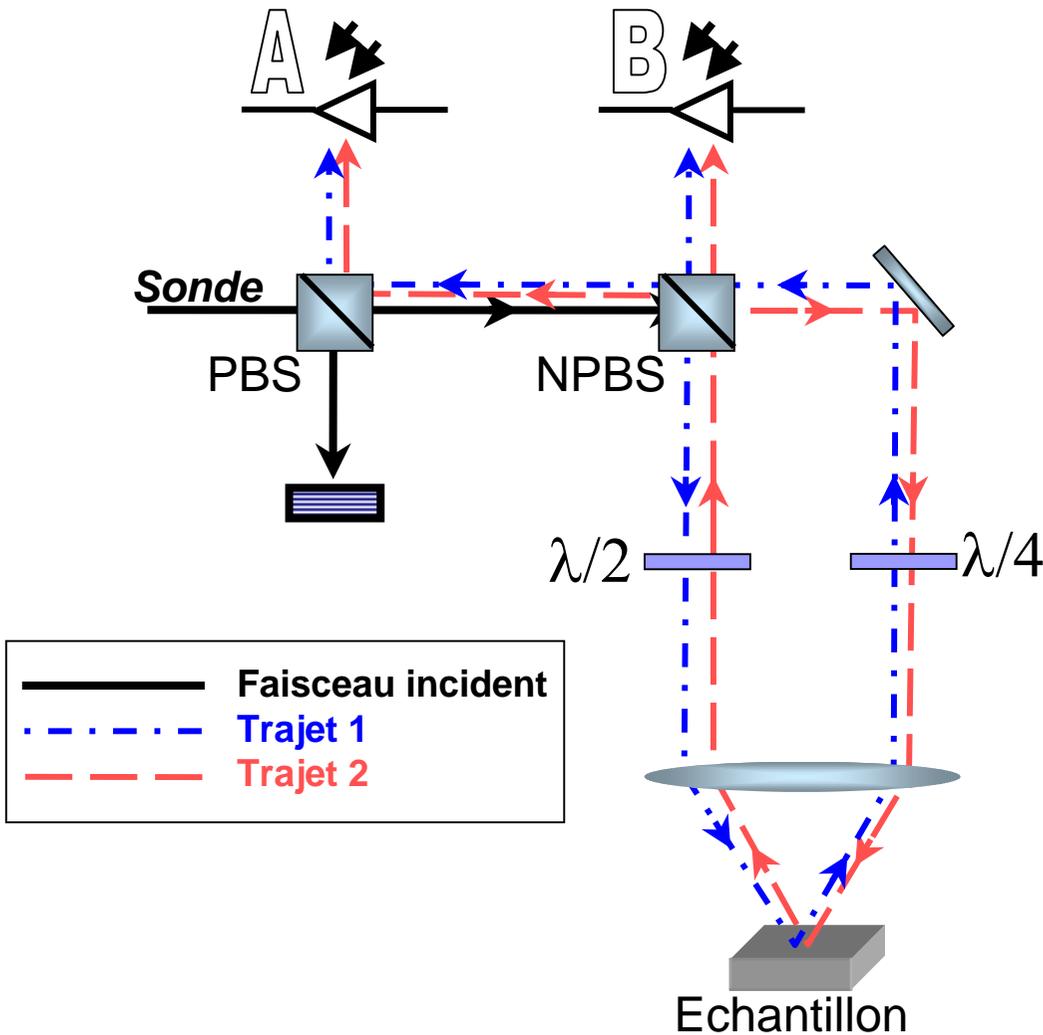
Déplacement de la surface

Réflectométrie – montage expérimental



$$I^{mod}(t) \propto \rho(t)$$

$$10^{-7} \leq \frac{\Delta r(t)}{r_0} \leq 10^{-4}$$



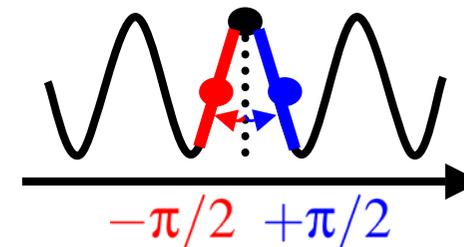
Changement de réflectivité

$$\Delta r / r_0 = \rho + i\phi$$

La partie imaginaire de $\Delta r / r_0$ est majoritairement due au déplacement de la surface

Les deux bras de l'interféromètre opèrent une mesure à deux temps différents :

$$S_A - S_B \propto \phi(t + \tau) - \phi(t)$$



Déphasage entre les deux bras de l'interféromètre

Acoustique Picoseconde

Historique, état de l'art
Principe, modèle théorique 1D
Dispositifs expérimentaux

Étude de films minces

Élaboration et caractérisation de solutions solides
Validation expérimentale du modèle 1D
Forme des échos, adhésion

Les systèmes multicouches

Modes localisés/résonnants
ex. des systèmes *Cu/W*
Anomalie élastique dans le système *Mo/Ni*
Influence des interfaces

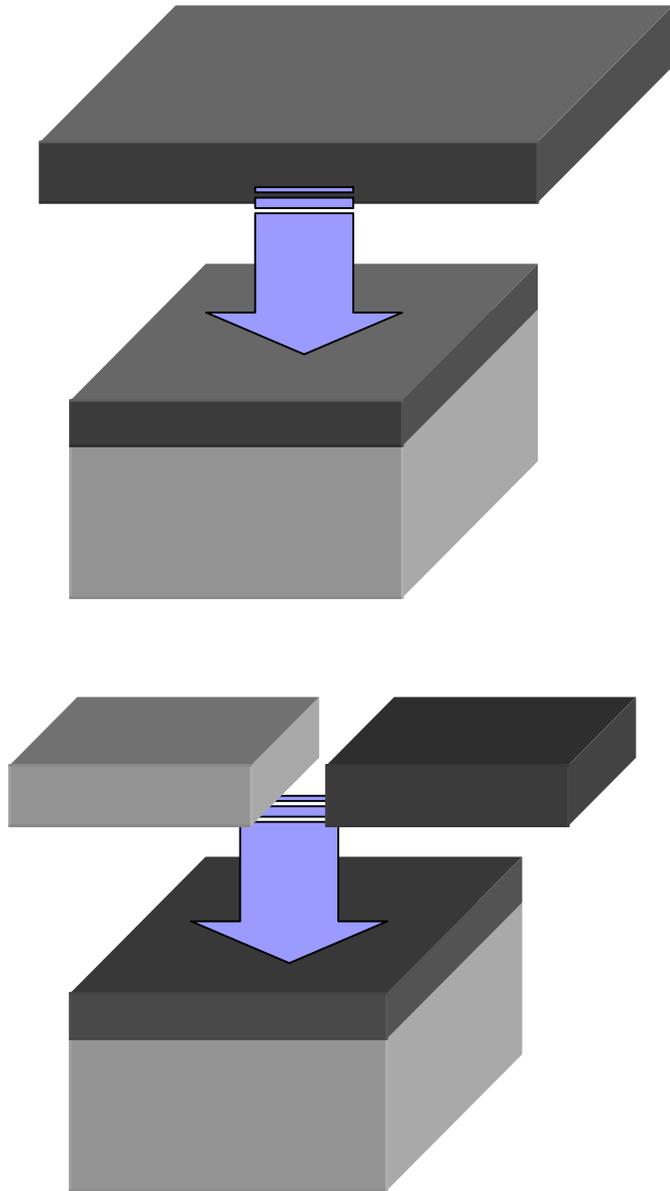
Transducteurs multicouches

Vers l'émission de modes résonnants
Expérience de transmission à travers un substrat

Conclusions

perspectives

AP dans un film mince (solutions solides)



Dépôt d'une couche métallique
sur un substrat de Silicium

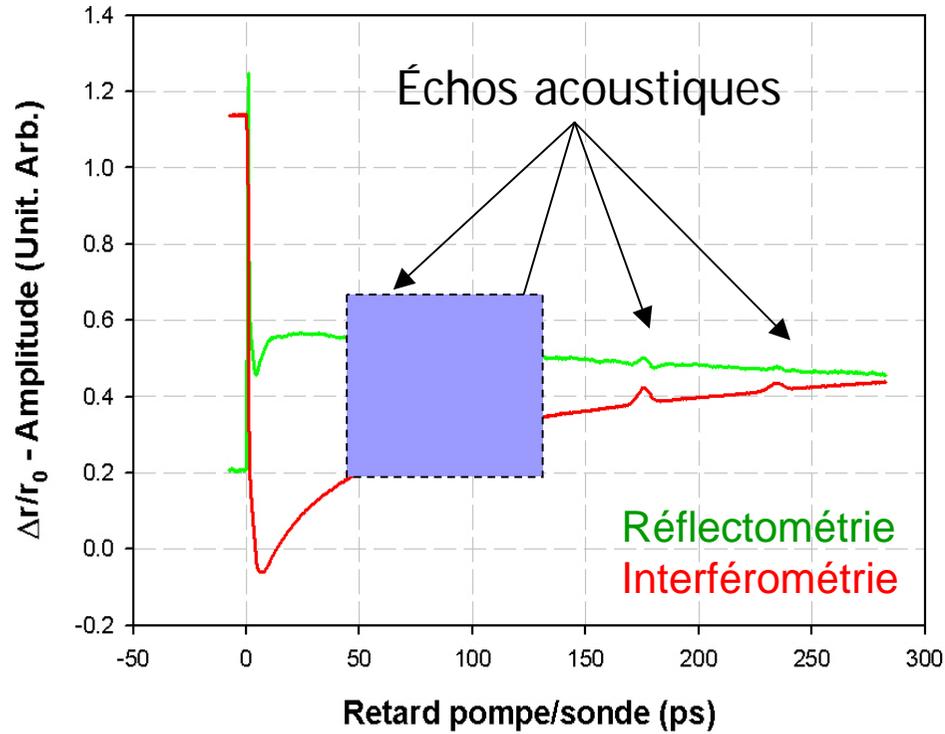
Copulvérisation
cathodique

Solutions solides
Mo/Ni

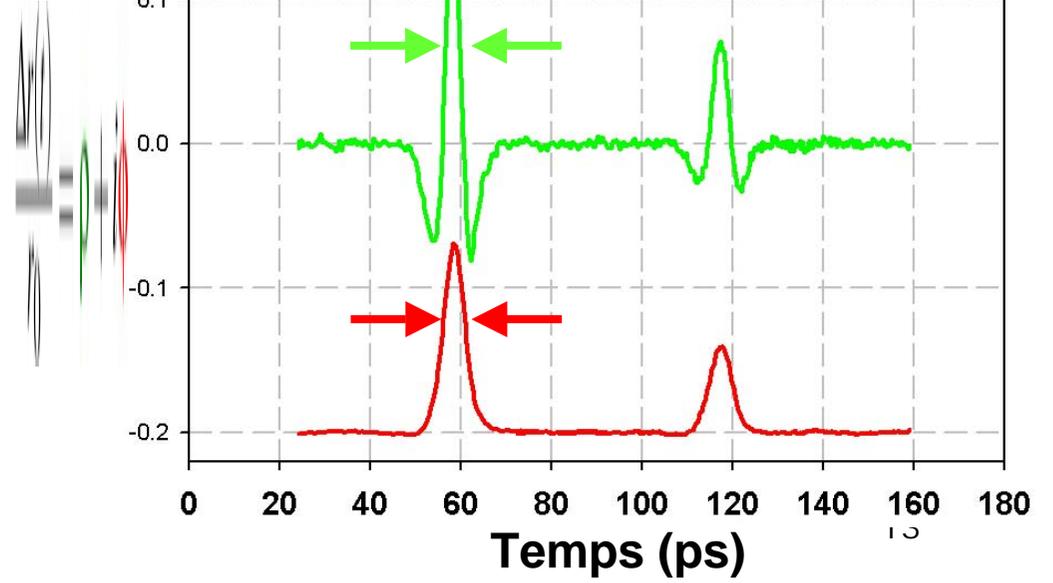
Composition
variable

Mo_xNi_{1-x}

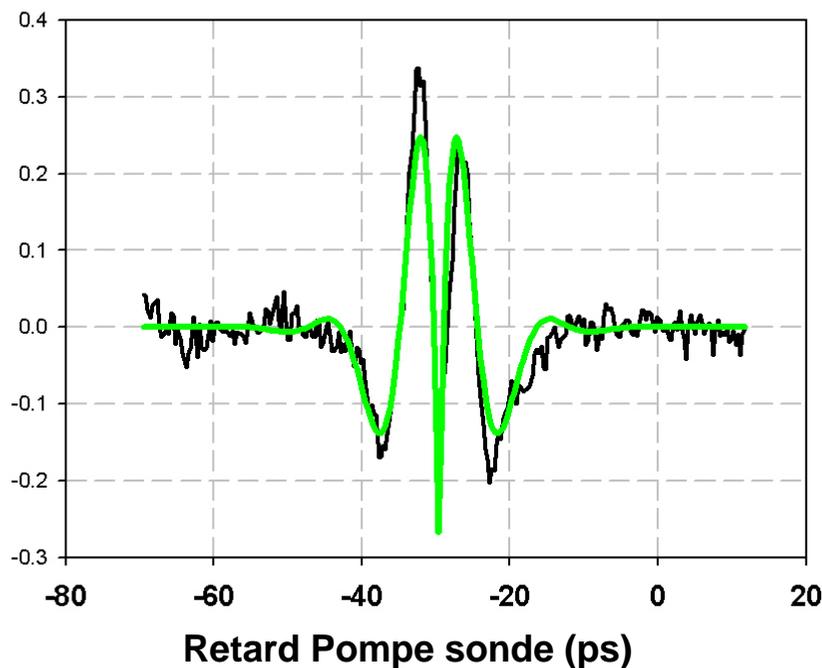
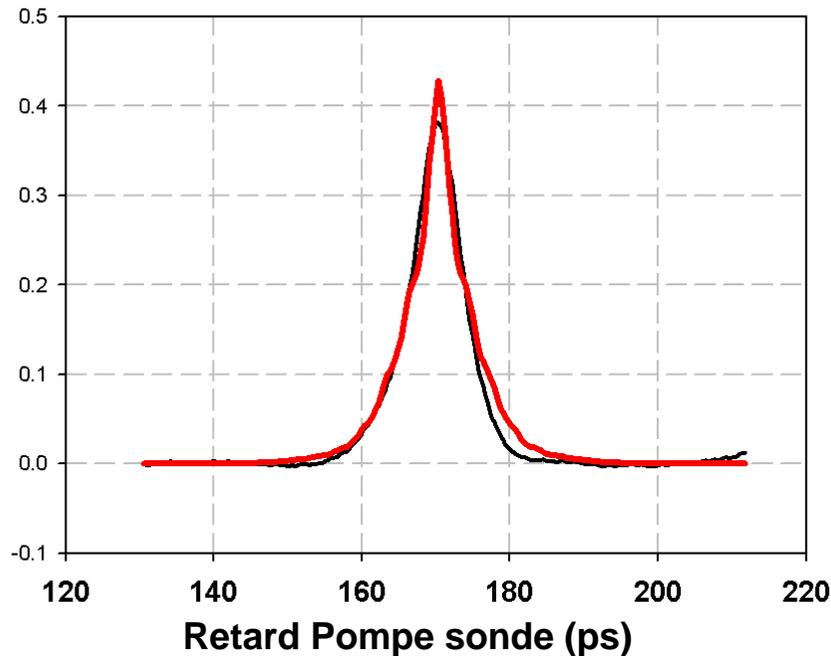
$150 \leq e \leq 300$ nm



- **Film** : Alliage $Mo_{.84}Ni_{.16}$
 $e = 184,6 \text{ nm}$
 $\rho = 9,84 \text{ g.cm}^{-3}$
- **Substrat** : Silicium (100)
 $\rho = 2,33 \text{ g.cm}^{-3}$



Ajustement des paramètres optiques



Ajustement simultané des parties réelles et imaginaires de

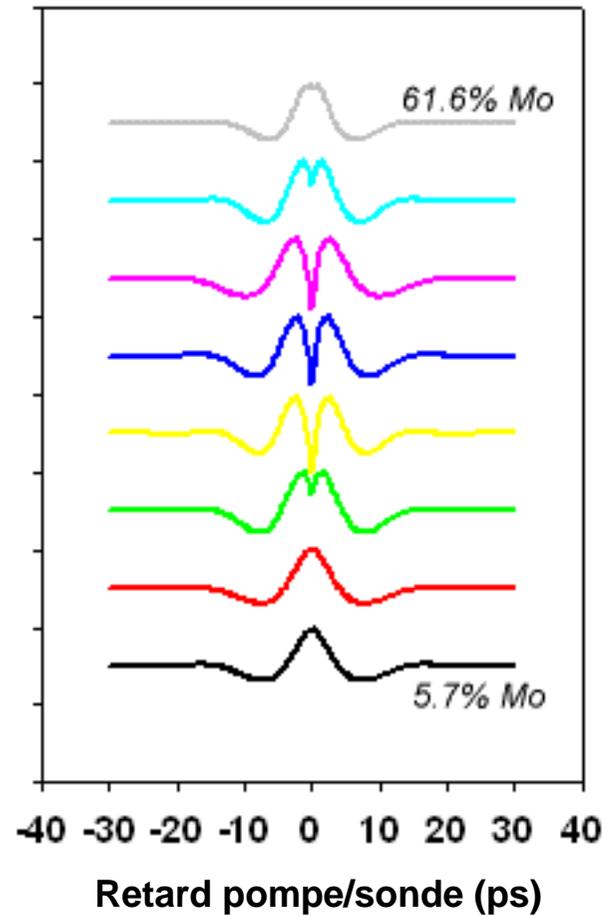
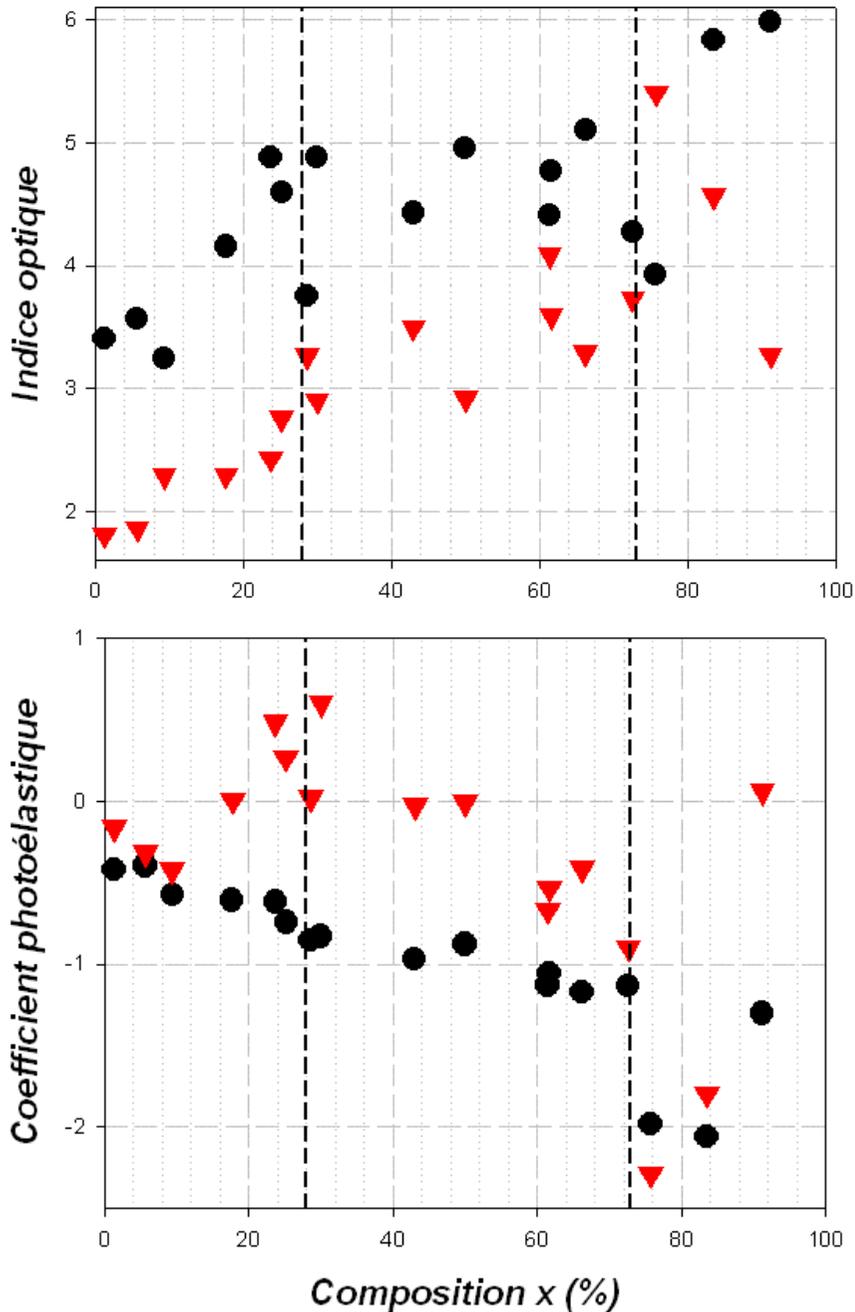
$$\Delta r / r_0 = \rho + i\phi$$

On détermine l'indice et un coefficient photo-élastique

$$n = 4,89 + 2,43i$$

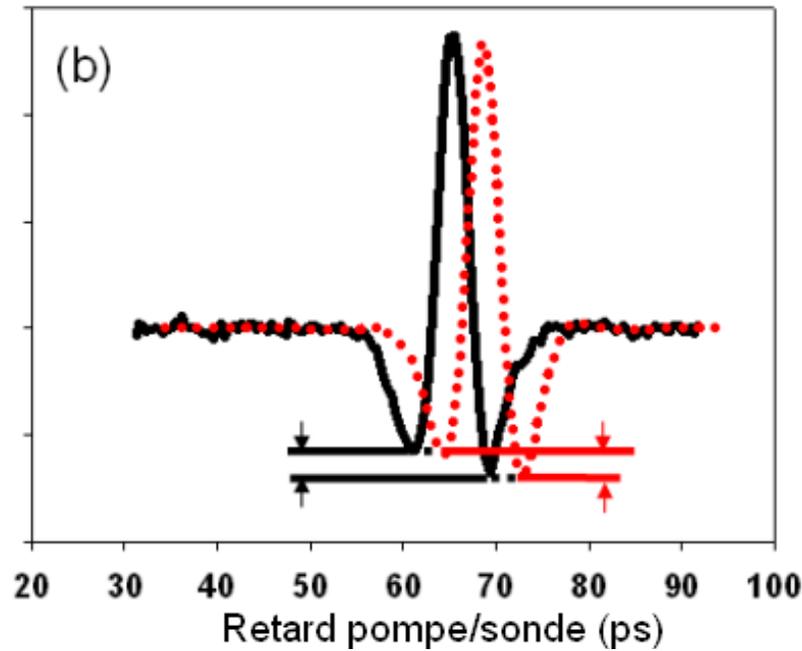
$$\frac{\partial n}{\partial \eta} = -0,62 + 0,49i$$

Évolution de la forme des échos

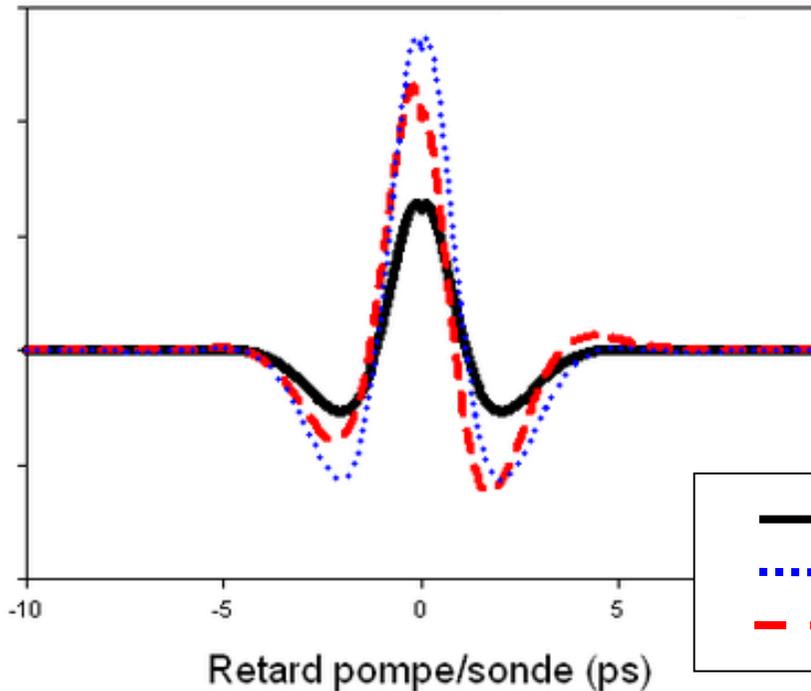
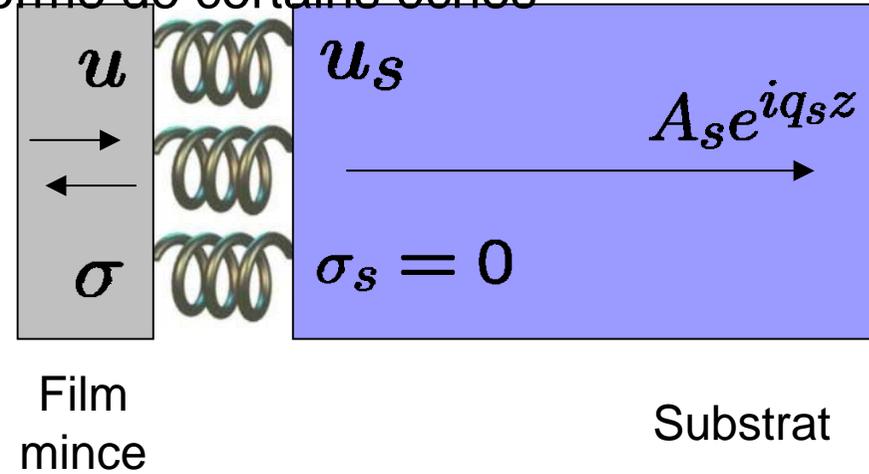


● Partie réelle
▼ Partie imaginaire

De faibles variations des paramètres optiques entraînent de grandes variations de forme des échos.



Constante de couplage ϵ_1
 légère dissymétrie dans
 a forme de certains échos



- Interface rigide
- ⋯ Interface décollée
- - - Cas intermédiaire

$$\sigma = \epsilon^{-1} (u_{film} - u_{substrate})$$

$$r_{ac} = \frac{r_{ac0} + i\omega\xi}{1 - i\omega\xi}$$

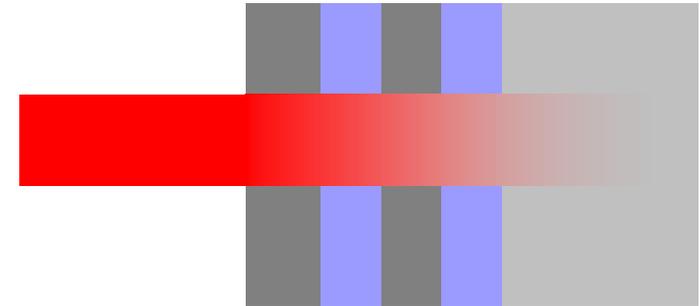
avec

$$r_{ac0} = \frac{Z - Z_s}{Z + Z_s}$$

$$\xi = \epsilon \frac{ZZ_s}{Z + Z_s}$$

Acoustique Picoseconde

Historique, état de l'art
Principe, modèle théorique 1D
Dispositifs expérimentaux



Étude de films minces

Élaboration et caractérisation de solutions solides
Validation expérimentale du modèle 1D
Forme des échos, adhésion

Les systèmes multicouches

Modes localisés/résonnants
ex. des systèmes *Cu/W*
Anomalie élastique dans le système *Mo/Ni*
Influence des interfaces

Transducteurs multicouches

Vers l'émission de modes résonnants
Expérience de transmission à travers un substrat

Conclusions

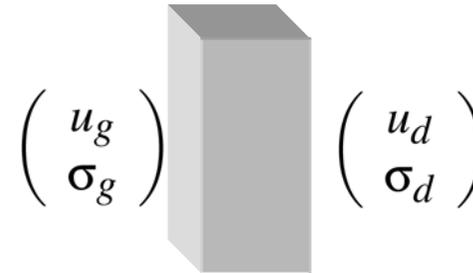
perspectives

Excitation d'ondes élastiques dans les systèmes multicouches

Un multicouche est une « somme » de monocouches

Pour une couche donnée :

On exprime les champs acoustiques à gauche et à droite de la couche.

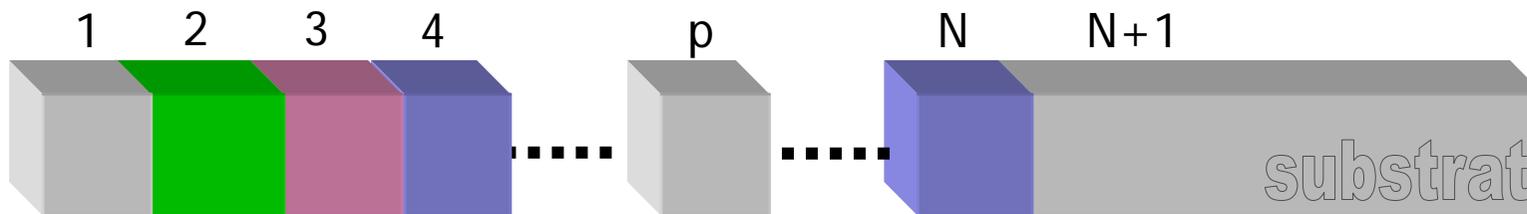


$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = \tau \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x' \\ y' \end{pmatrix}$$

Matrice de transfert

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

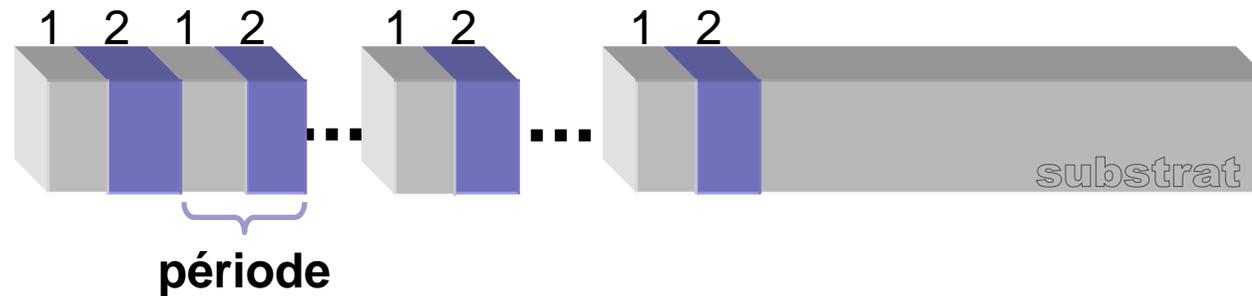
Terme source thermo-acoustique



$$\begin{pmatrix} u_p \\ \sigma_p \end{pmatrix} = \tau_p \dots \tau_2 \tau_1 \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} + \tau_{a,p} \begin{pmatrix} X_{p-1} \\ Y_{p-1} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} x'_p \\ y'_p \end{pmatrix}$$

Matrice de transfert globale

Terme source



⇒ Matrice de transfert globale pour un milieu périodique alterné (n périodes) :

$$T = (\tau_2 \tau_1)^n$$

Matrice de transfert d'une période

Les valeurs propres sont $\lambda_{1,2} = t_a \pm \sqrt{t_a^2 - 1}$

Suivant la valeur de la trace de la matrice,

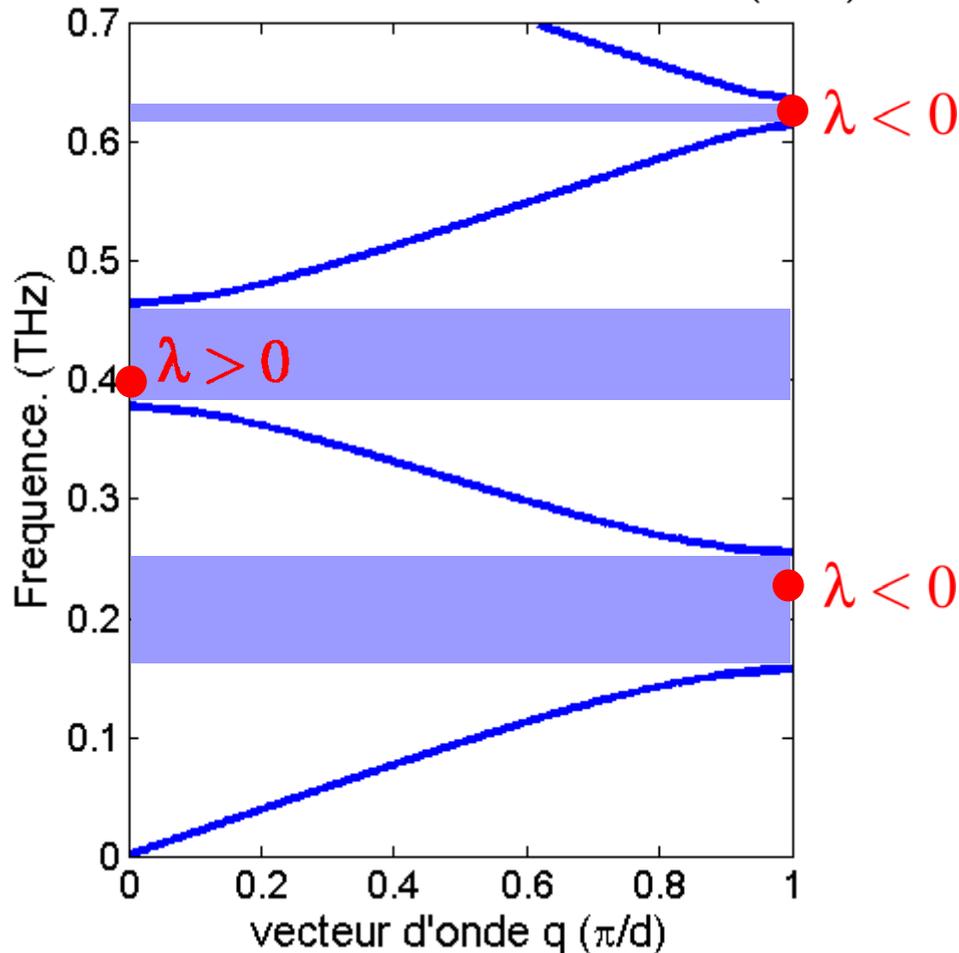
⇒ Les valeurs propres sont complexes conjuguées $\lambda_{1,2} = e^{\pm iqd}$
• Onde plane de vecteur d'onde q

⇒ Les valeurs propres sont réelles.
• Définition de bandes interdites (**stopbands**)

Relation de dispersion et bandes interdites

Relation de dispersion $\cos(qd) = \frac{1}{2} (\lambda + \lambda^{-1})$
 Formule de Rytov (1956)

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



Échantillon : $(Cu_4/W_8)_{\times 15}$ sur $Si(100)$
 15 périodes, $d_{Cu} = 4$ nm, $d_W = 8$ nm

Périodicité \Rightarrow bandes interdites
 Miroir acoustique pour ces fréquences

Il existe des modes résonnants dans les gaps si (*)

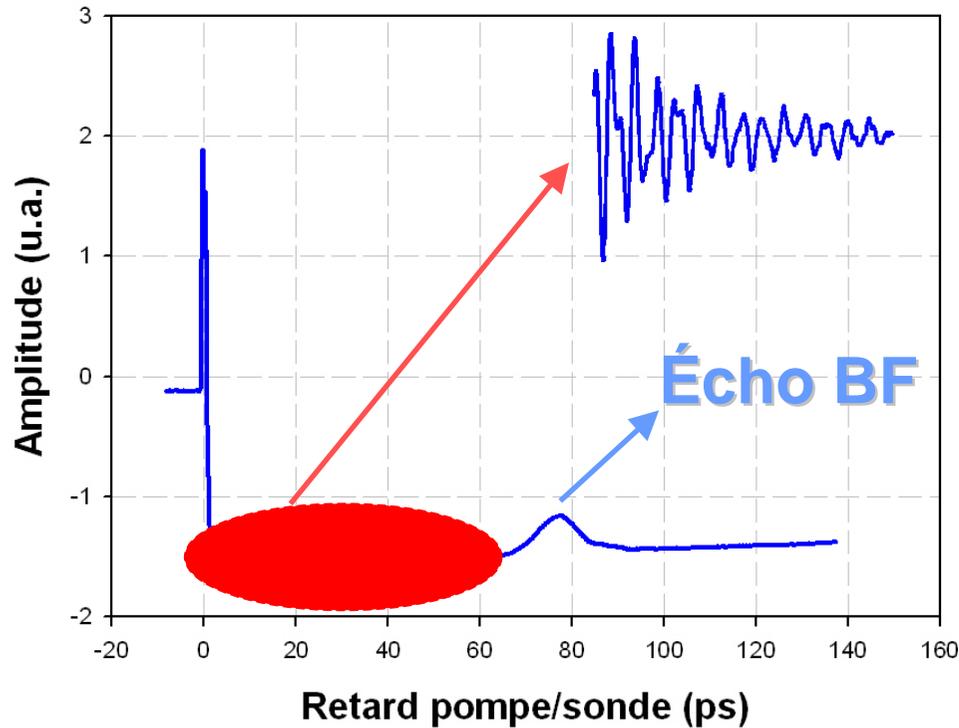
$$Z_1 < Z_2$$

$$\tau_{21}(\omega_l) = 0$$

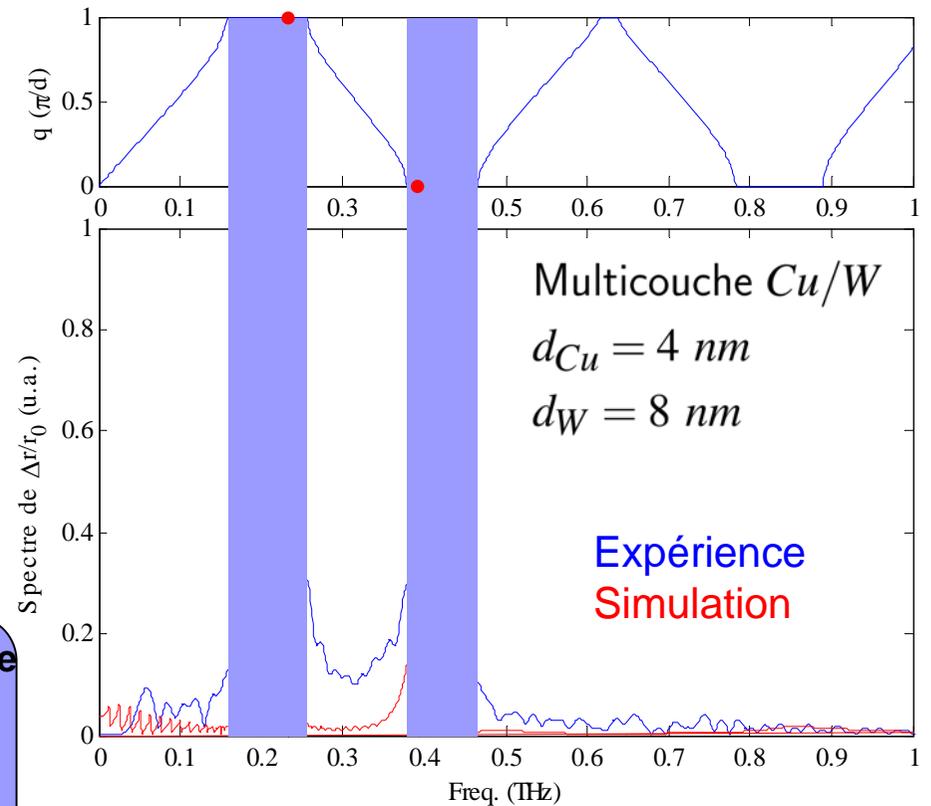
Confinement des modes résonnants entre la surface et les couches profondes (comme dans une cavité)

(*) H.J. Maris dans systèmes Ge/Si
 (Phys. Rev. **B**, vol 38, num 9, p. 6066-6074.), 1988

Échantillon : $(Cu_4/W_8)_{\times 15}$ sur $Si(100)$
 15 périodes, $e_{Cu} = 4 \text{ nm}$, $e_W = 8 \text{ nm}$



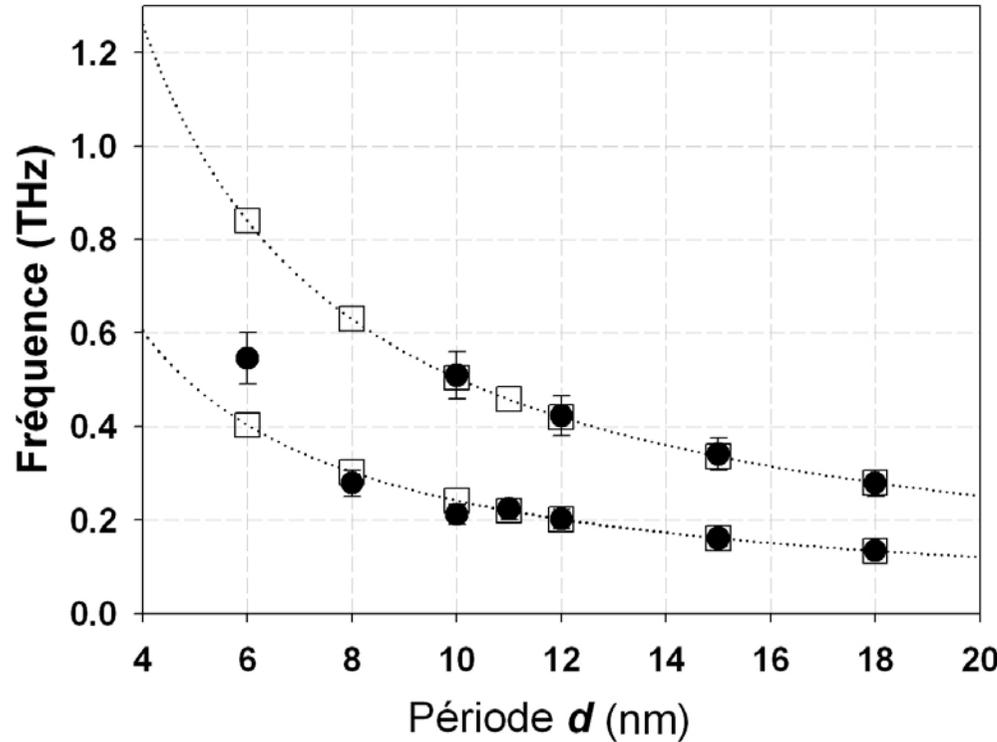
Oscillations HF



La fréquence des modes résonnants ne dépend que de 2 paramètres :

- la nature des deux matériaux, $Z(\rho, v)$
- l'épaisseur des couches de chaque matériau, d_1, d_2 et de leur rapport

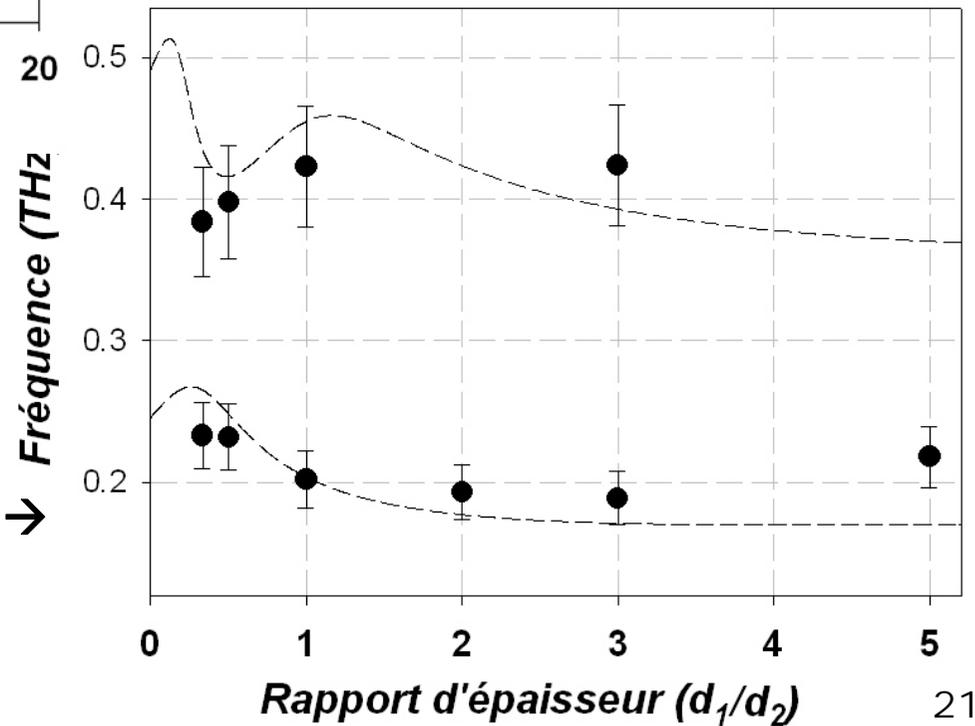
Résultats expérimentaux (fréquence des modes localisés)

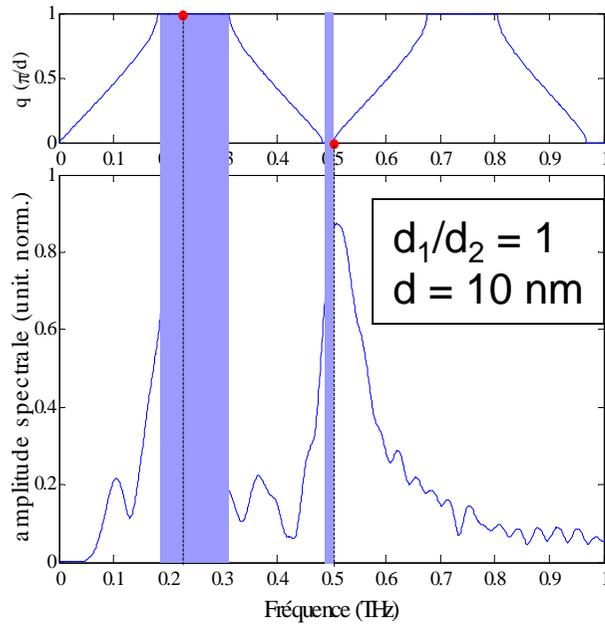


← Jeu d'échantillons à rapport d'épaisseur constant,

$$r = \frac{d_1}{d_2} = 1$$

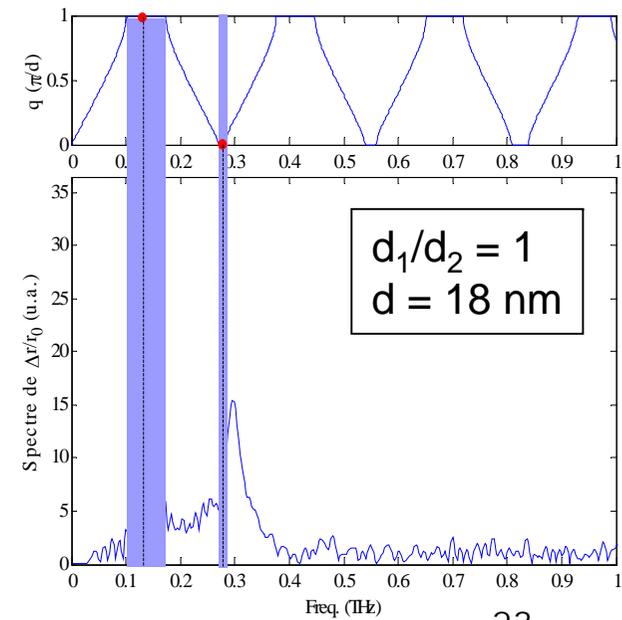
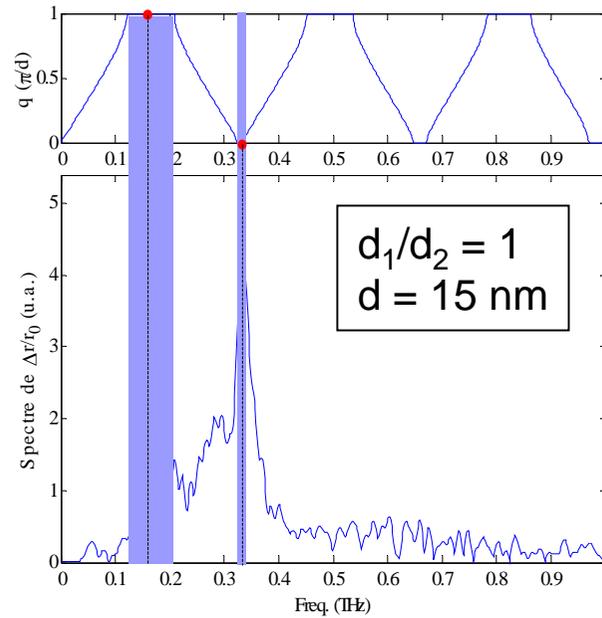
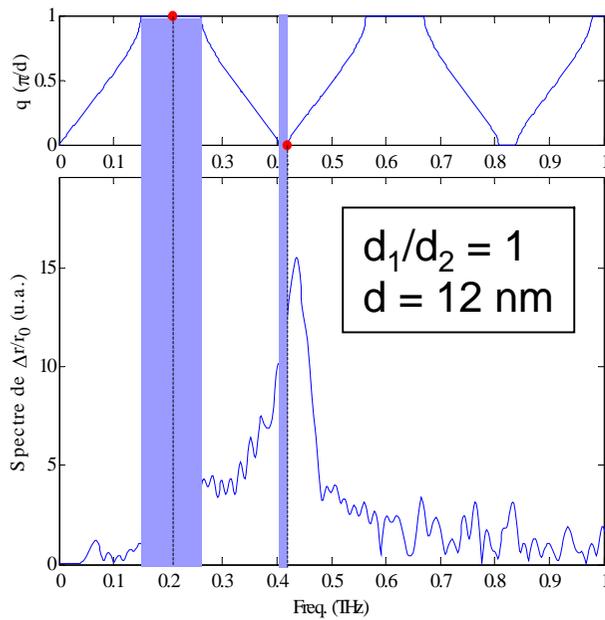
Jeu d'échantillons à période constante →
 $d = 12$ nm





Jeu d'échantillon à rapport
d'épaisseur constant, $r = \frac{d_1}{d_2} = 1$

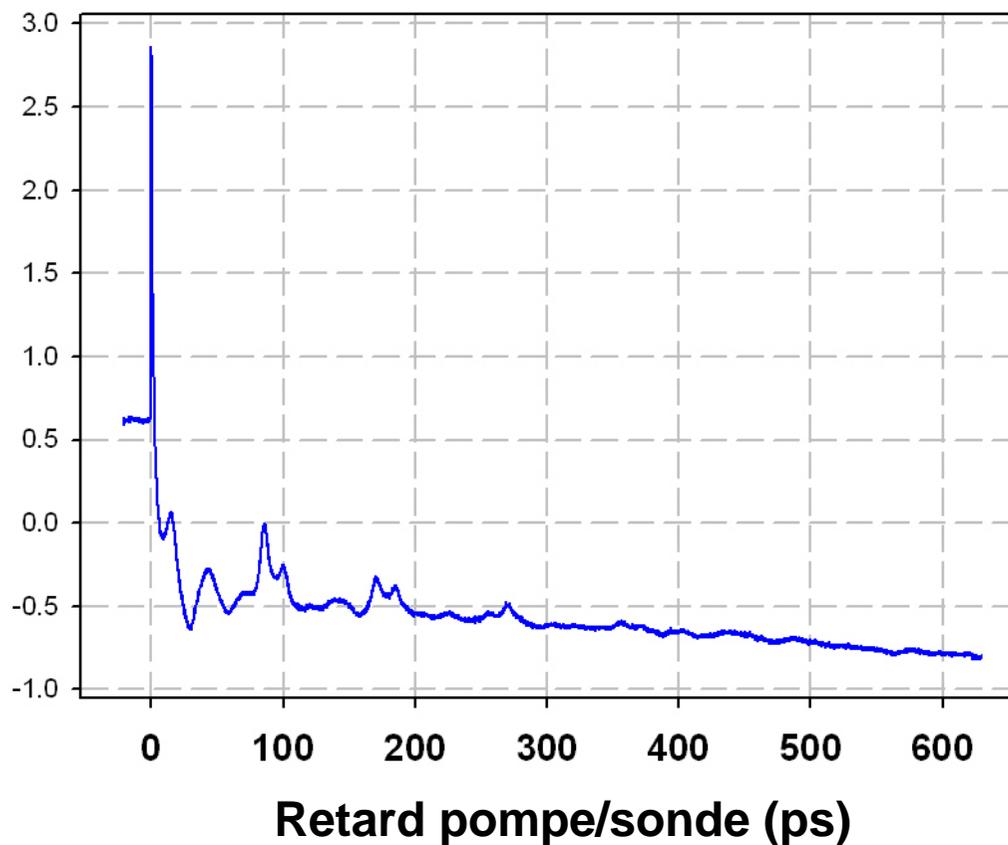
$$u_0(\omega_l) = \frac{1}{\omega_l} \frac{1-\lambda^2}{1-\lambda e^{-\alpha d}} \frac{\tilde{\sigma}(\omega_l)}{\rho_1 d_1 \lambda^{-1} + \rho_2 d_2 \lambda}$$



Certains systèmes ne présentent pas les caractéristiques attendues

Échantillon : $(Ni_{7,1}/Mo_{3,6}) \times 26$

26 périodes, $e_{Ni} = 7,1$ nm, $e_{Mo} = 3,6$ nm



On observe pas de modes résonnants mais des échos

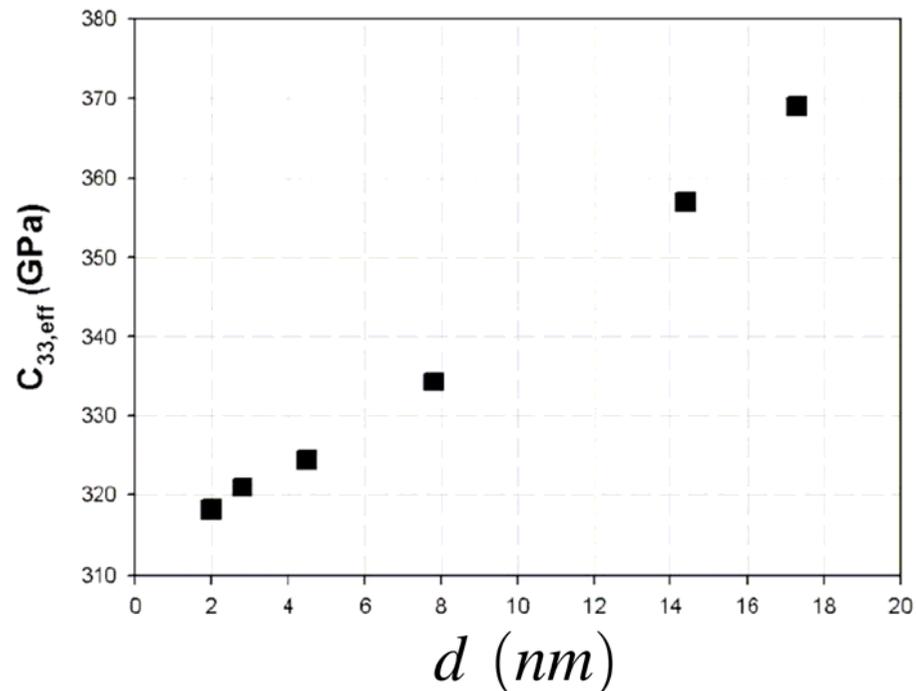
Pour les basses fréquences, on traite l'échantillon comme un milieu effectif.

$$qd \ll 1$$

Dans un multicouche périodique, si les épaisseurs varient homothétiquement, la constante effective ne doit pas changer.

$$\frac{d}{C_{33}^{eff}} = \frac{d_{Mo}}{C_{33}^{Mo}} + \frac{d_{Ni}}{C_{33}^{Ni}}$$

Et pourtant...

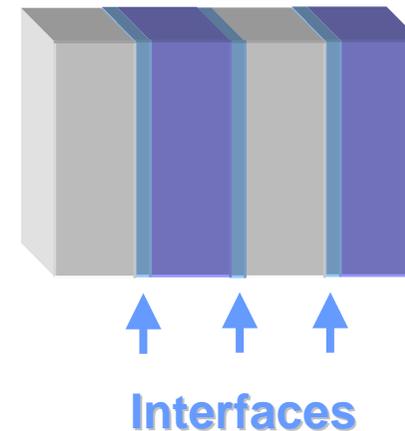


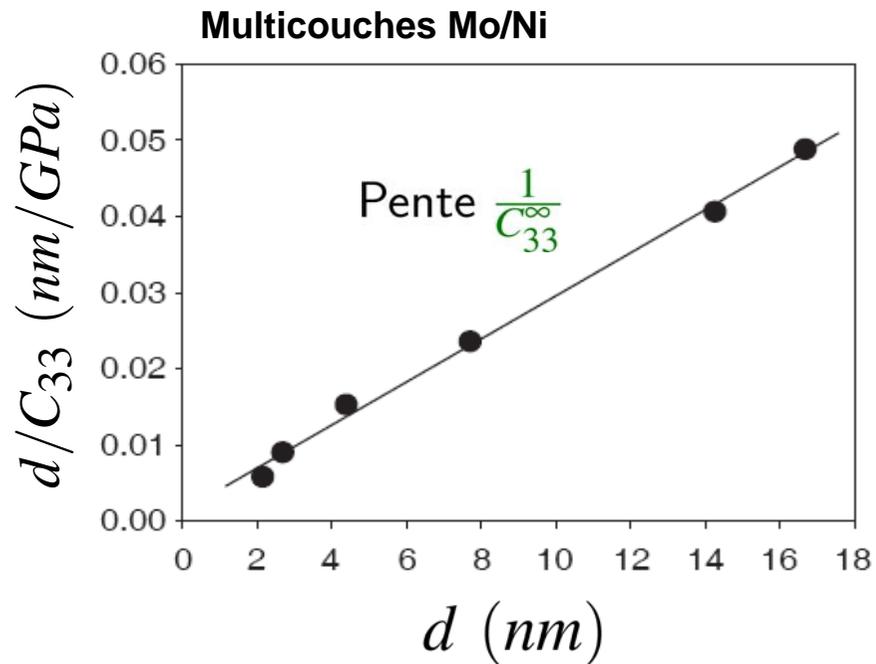
Adoucissement des Constantes élastiques effectives

EFFET AUX INTERFACES ?

Pour le milieu effectif, on a :

$$\frac{d}{C_{33}^{eff}} = \frac{d_{Mo}}{C_{33}^{Mo}} + \frac{d_{Ni}}{C_{33}^{Ni}} + 2 \frac{d_{int}}{C_{33}^{int}}$$





$$\frac{d}{C_{33}^{eff}} = \frac{d}{C_{33}^{\infty}} + 2d_{int} \left[\frac{1}{C_{33}^{int}} - \left(\frac{x}{C_{33}^{Mo}} + \frac{1-x}{C_{33}^{Ni}} \right) \right]$$

L'ajustement linéaire nous donne

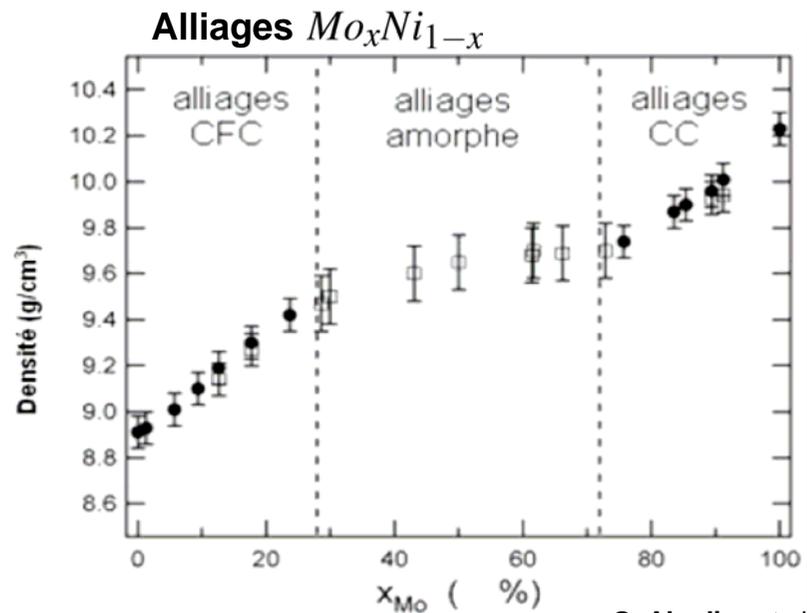
$$C_{33}^{\infty} = 354 \pm 16 \text{ GPa}$$

L'ordonnée à l'origine ne permet pas d'obtenir à la fois d_{int} , C_{33}^{int} et x

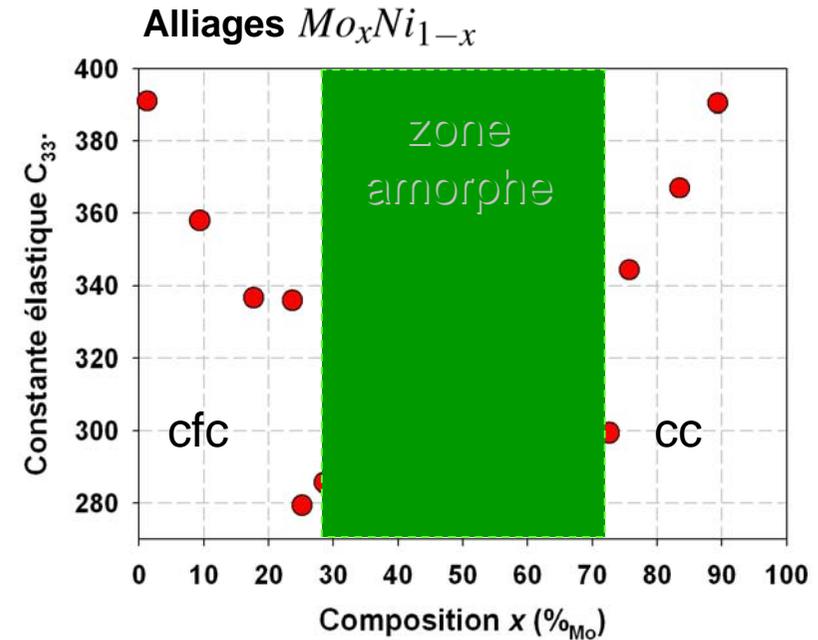
La valeur théorique obtenue avec une moyenne harmonique est

$$C_{33}^{\infty} = 356 \text{ GPa}$$

Quelles sont les caractéristiques de l'interface ?



G. Abadias et al.
Phys. Rev. B, Vol 65, p.212105, 2002.



On observe une **zone amorphe** entre **28 et 73% de Mo**

Dans cette zone, la constante élastique est plus faible (25%)

$$C_{33}^{int} = 285 \text{ GPa}$$

$$0.28 \leq x \leq 0.73$$

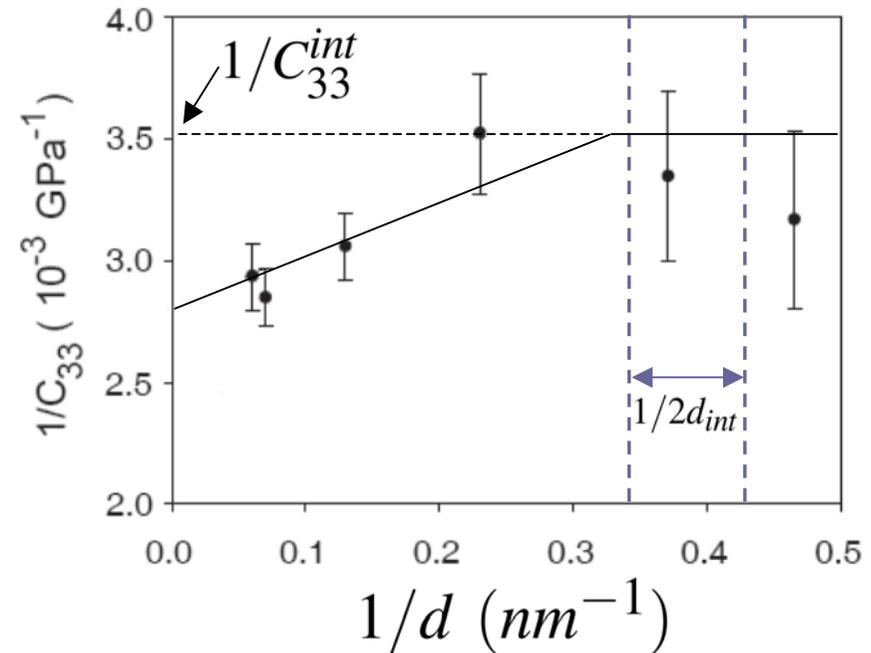
Étude élastique de solutions solides Mo_xNi_{1-x} en fonction de la composition

Avec $C_{33}^{int} = 285 \text{ GPa}$

et $0,28 \leq x \leq 0,73$ (zone amorphe)

On trouve :

$$1,17 \leq d_{int} \leq 1,39 \text{ nm}$$



L'adoucissement élastique dans les multicouches Mo/Ni est attribué à la formation d'alliages interfaciaux amorphes

Acoustique Picoseconde

Historique, état de l'art
Principe, modèle théorique 1D
Dispositifs expérimentaux

Étude de films minces

Élaboration et caractérisation de solutions solides
Validation expérimentale du modèle 1D
Forme des échos, adhésion

Les systèmes multicouches

Modes localisés/résonnants
ex. des systèmes *Cu/W*
Anomalie élastique dans le système *Mo/Ni*
Influence des interfaces

Transducteurs multicouches

Vers l'émission de modes résonnants
Expérience de transmission à travers un substrat

Conclusions

perspectives

L'énergie acoustique à la fréquence du mode résonnant doit être maximale

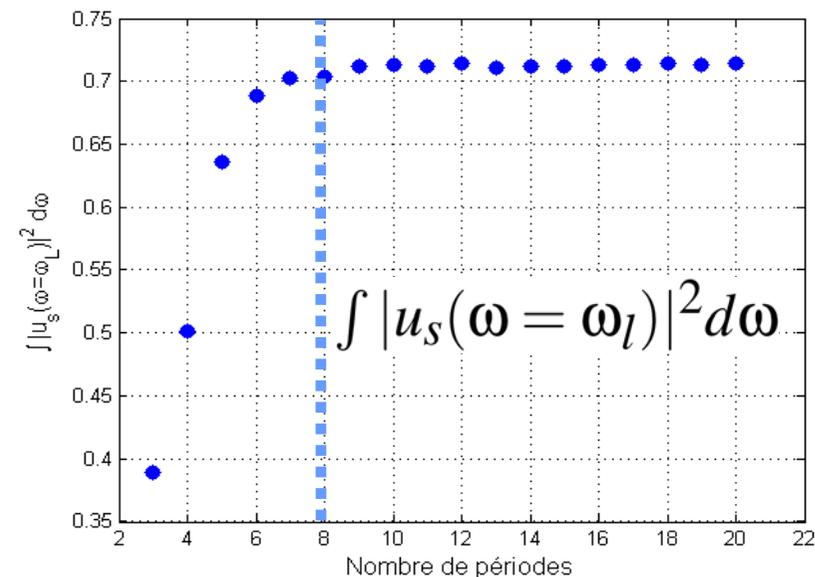
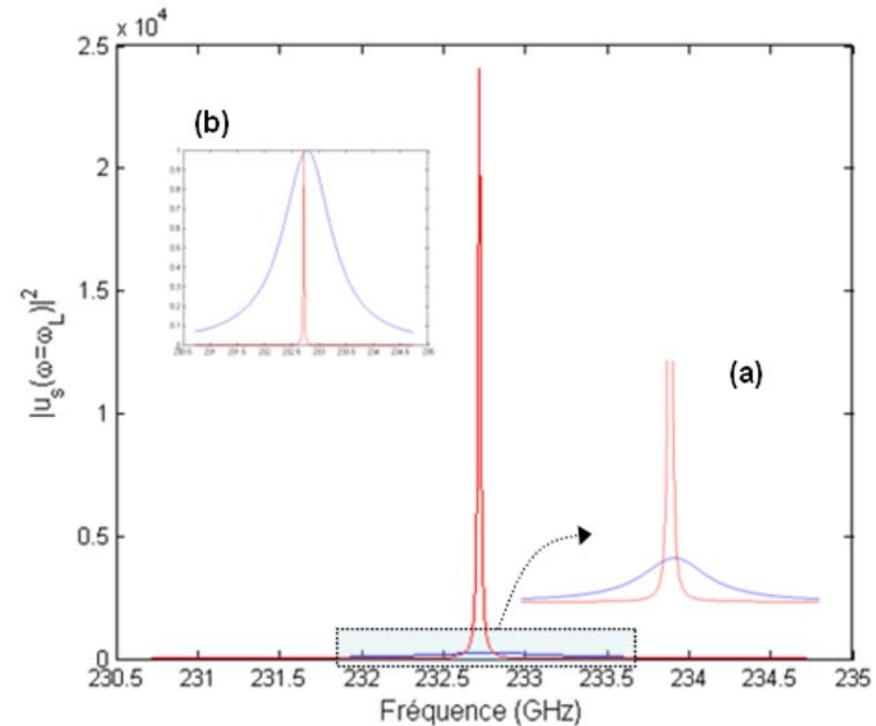
Pour n périodes, le déplacement acoustique à l'interface multicouche/substrat est :

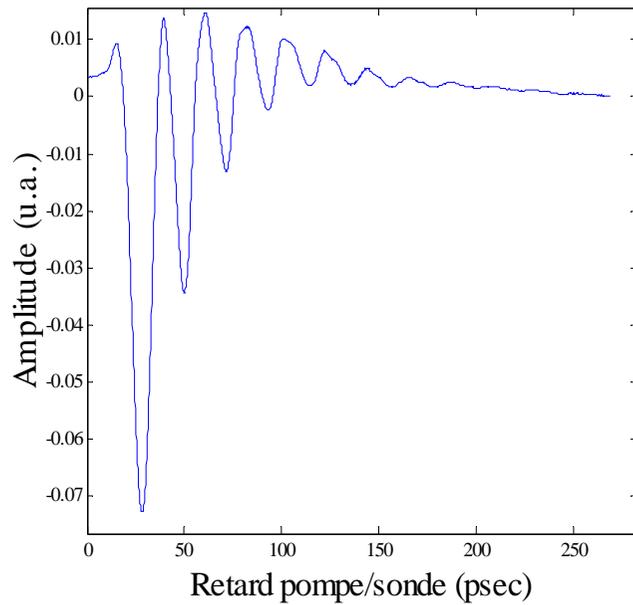
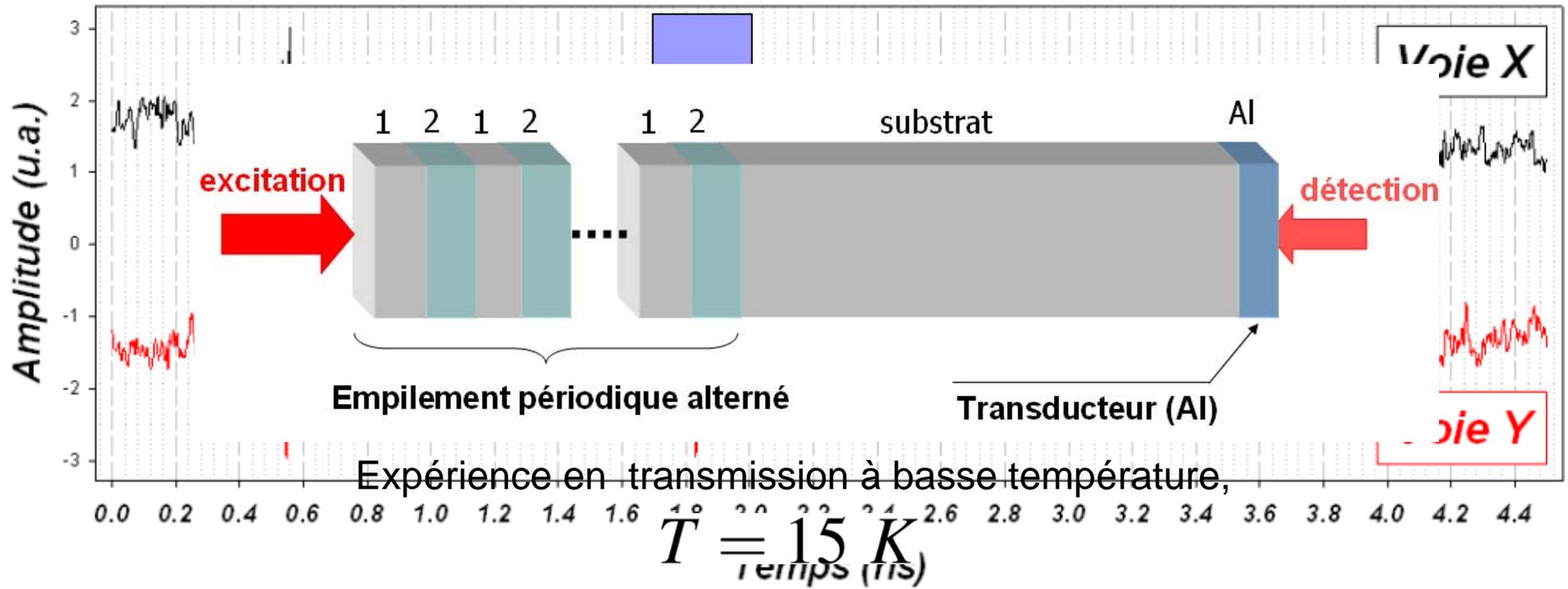
$$u_S = \frac{y' (1 - \lambda^n e^{-n\alpha d})}{i\omega Z_S \lambda^n}$$

Pour un grand nombre de couches, u_S semble diverger ($|\lambda| < 1$)

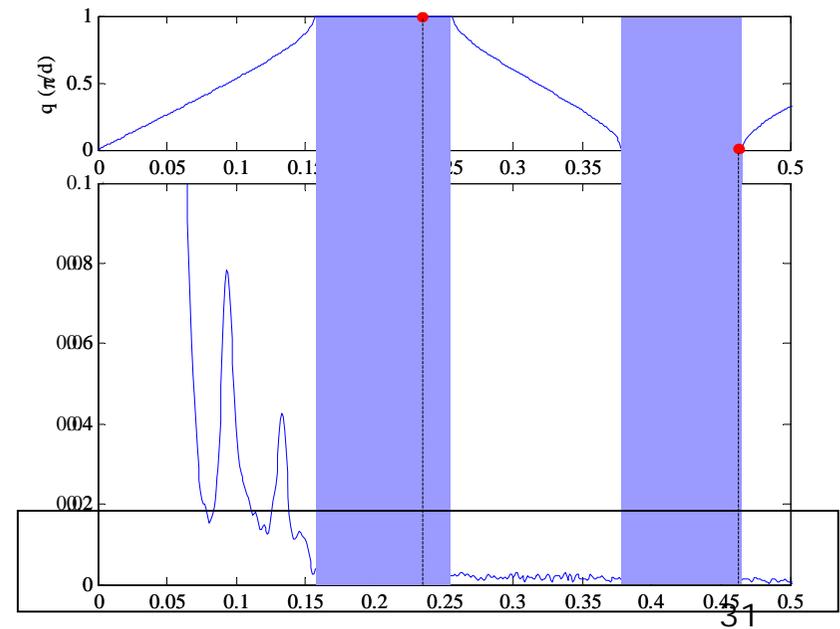
$$u_S = \lambda^{-n} \frac{y'}{i\omega Z_S}$$

Il existe un nombre de périodes à partir duquel l'énergie acoustique émise n'augmente plus

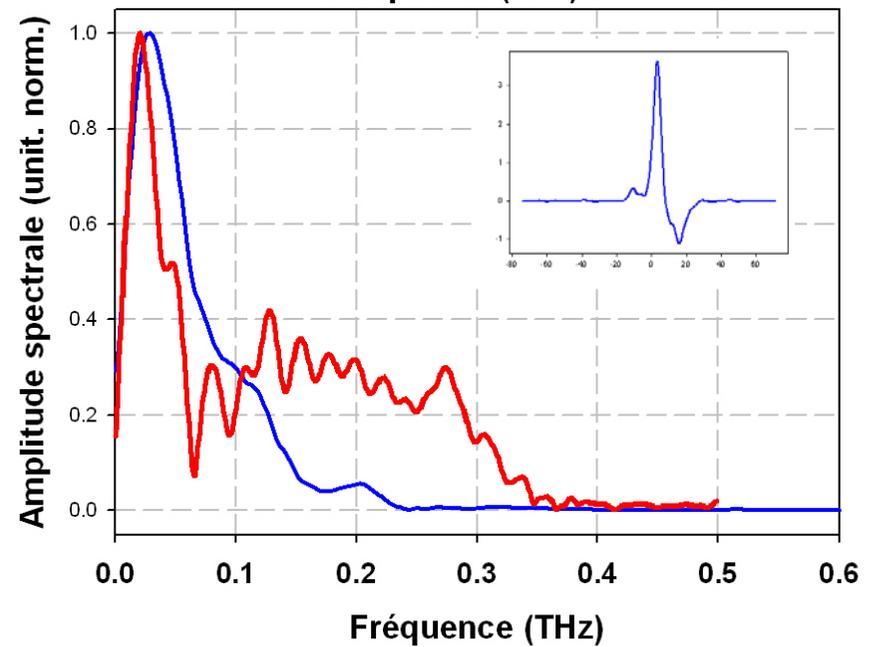
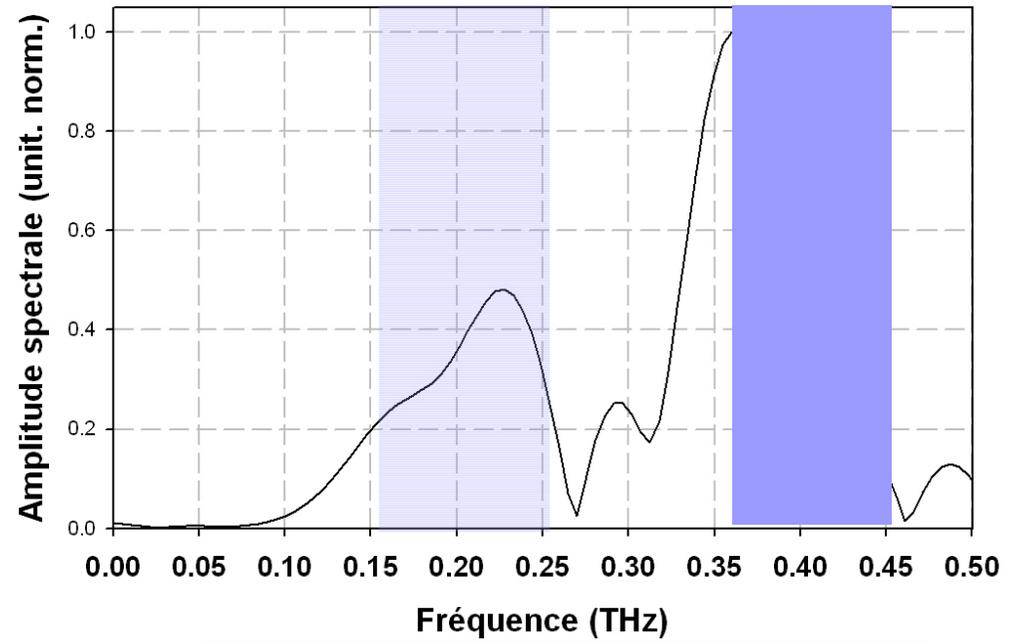
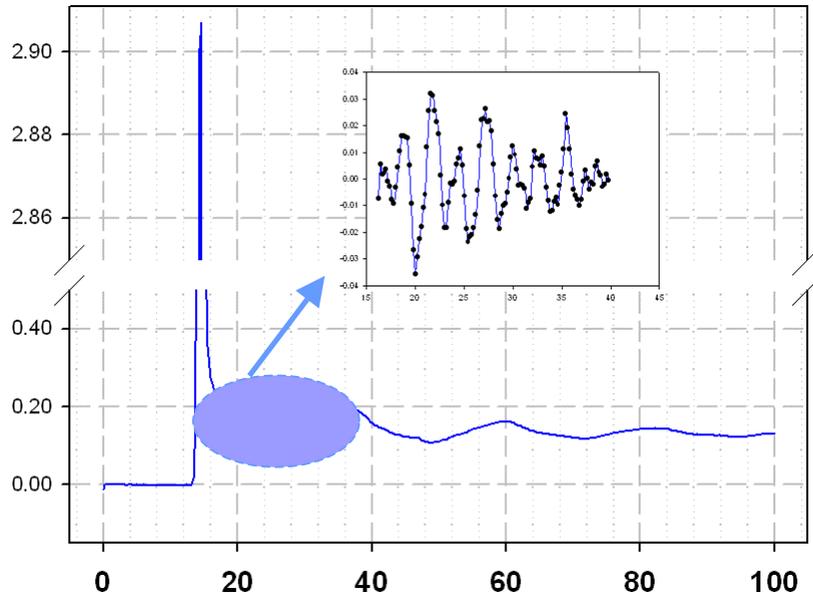


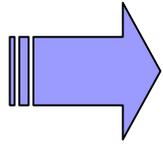


FFT



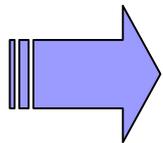
Expérience de transmission (II)





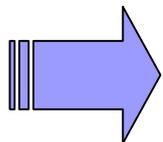
Pour les films minces

- validation complète du modèle 1D sur les alliages
 - **système modèle idéal : échos très fins (2 ps)**
- détermination des paramètres optiques (n et $\frac{\partial n}{\partial \eta}$)
- forme d'échos, adhésion, etc.



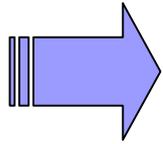
Pour les multicouches

- observations des modes résonnants dans systèmes **Cu/W**
 - évolution en fonction de la période
 - et du rapport d'épaisseur
- meilleure compréhension des problèmes liés aux interfaces dans **Mo/Ni**
 - détermination de l'épaisseur d'alliage interfacial



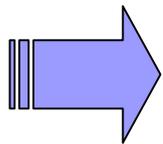
Transducteurs multicouches

- détermination du nombre optimal de périodes pour l'émission,
- premières expériences de transmission



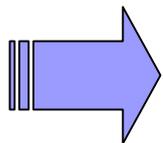
Nouvelles expériences de transmission

- Meilleure adaptation d'impédance acoustique,
- Substrat de haute qualité
 - Haute pureté
 - Faible rugosité
 - Parallélisme des faces



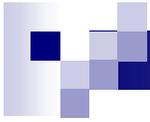
Nouveaux systèmes

- échantillons *Mo/Si*
- semiconducteurs (*GaAs*, *AlAs*, etc.)
- cavités



Utilisation des propriétés non linéaires

- Excitation et détection de **solitons acoustiques**
(Thèse de Shuo ZHANG avec Bernard PERRIN)



Merci de votre attention.