



HAL
open science

Développement d'un dispositif pompe-sonde hétérodyne : application à l'imagerie en acoustique picoseconde

Allaoua Abbas

► **To cite this version:**

Allaoua Abbas. Développement d'un dispositif pompe-sonde hétérodyne : application à l'imagerie en acoustique picoseconde. Autre. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2013. Français. NNT : 2013BOR14806 . tel-00988758

HAL Id: tel-00988758

<https://theses.hal.science/tel-00988758>

Submitted on 9 May 2014

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.

N° d'ordre : 4806

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Allaoua ABBAS**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : Mécanique

Développement d'un dispositif pompe-sonde hétérodyne - Application à l'imagerie en acoustique picoseconde.

Après avis de :

M. L. BELLIARD, Maître de Conférences à l'Université Pierre et Marie Curie	Rapporteur
M. P. VAIRAC, Professeur des Universités à l'ENSMM	Rapporteur

Devant le jury composé de :

M. P.-M. ADAM, Professeur à l'Université Technologique de Troyes	Examineur
M. P. DELAPORTE, Directeur de Recherche CNRS	Examineur
M. Y. GUILLET, Maître de Conférences à l'Université de Bordeaux	Examineur
M. J.-M. RAMPNOUX, Maître de Conférences à l'Université de Bordeaux	Examineur
M. S. DILHAIRE, Professeur à l'Université de Bordeaux	Examineur

- 2013 -

Table des matières

Remerciements	xiv
Introduction générale	1
1 Double cavité laser : assemblage et performances	5
1.1 Présentation des méthodes homodyne et hétérodyne	5
1.1.1 Principe de l'échantillonnage homodyne	7
1.1.2 Principe de l'échantillonnage hétérodyne	9
1.2 Les sources	12
1.2.1 Présentation générale des sources	12
1.2.2 Caractéristiques optiques des cavités laser	13
1.3 Synchronisation des sources	17
1.3.1 Nécessité de synchronisation	17
1.3.2 Asservissement et génération du battement de fréquence	19
1.3.3 La boucle à verrouillage de phase	21
1.4 Mesure des performances de l'asservissement	28
1.4.1 La gigue : définition et relation avec la bande passante	28
1.4.2 Présentation du banc de mesure de la gigue	30
1.4.3 Giges absolue et relative de deux cavités libres	33
1.4.4 Détermination expérimentale de la valeur de la gigue en configuration homodyne	39
1.4.5 Mesure en configuration hétérodyne	43
1.4.6 Conclusion	49
1.5 Conclusion du chapitre	50
2 Apport de l'échantillonnage hétérodyne en acoustique picoseconde dans le cadre de mesures ponctuelles	53
2.1 Principe de l'acoustique picoseconde	54
2.1.1 Description de la génération d'une onde acoustique par absorption d'une impulsion laser	54
2.1.2 Détection des perturbations physiques générées	58
2.2 Description du banc pompe-sonde hétérodyne	63
2.2.1 Montage optique globale	64

2.2.2	Voie de synchronisation	65
2.2.3	Le photodétecteur	66
2.3	Mesures réflectométriques hautes fréquences et hautes résolutions spectrales	67
2.3.1	Composantes hautes fréquences de la réponse acoustique d'une couche nanométrique de tungstène	67
2.3.2	Démonstration de la résolution fréquentielle du banc : estimation du temps de vie des phonons dans la silice	72
2.3.3	Conclusion	76
2.4	Conclusion	76
3	Imager la matière à l'aide d'ondes acoustiques picosecondes	79
3.1	Imagerie de la propagation d'ondes de surface acoustiques gigahertz	80
3.1.1	Hypothèse expérimentale : principe de réciprocité	81
3.1.2	Présentation du dispositif de balayage	81
3.1.3	Détection des déplacements de surface	83
3.1.4	Résultats expérimentaux : suivi de la propagation d'ondes acoustiques de surface	86
3.1.5	Conclusion	92
3.2	Imagerie acoustique à l'échelle submicronique	92
3.2.1	Présentation de l'échantillon	93
3.2.2	Réponse impulsionnelle d'une particule d'or déposée sur un substrat	94
3.2.3	Cartographies	98
3.2.4	Conclusion	105
3.3	Conclusion du chapitre	105
	Conclusion générale	107
	A Relation entre la gigue et la bande passante d'un banc hétérodyne	111
A.1	Effet local de la gigue sur la mesure réalisée	111
A.2	Relation entre la valeur de la gigue et la bande passante d'un système	112
	B Relation entre le spectre d'un signal mesuré et la gigue temporelle.	115
B.1	Définition des termes.	115
B.2	Relations entre la densité spectrale de signal mesuré, le bruit de phase et le bruit de fréquence	116
B.3	Relation entre la densité spectrale du bruit de fréquence et de la gigue mesurée	116
	C Mode d'adhésion de la particule au substrat : résolution linéaire.	119
	Bibliographie	121
	Résumé	132

Table des figures

1	Devise des Shadok	xv
1.1	Montage pompe-sonde homodyne pour l'acoustique picoseconde à l'I2M. Une seule impulsion est scindée en deux pour former la pompe et la sonde. La différence de longueur entre le trajet des impulsions pompes et le trajet des impulsions sondes pour arriver à l'échantillon est ajustable à l'aide d'une ligne de translation mécanique. OS : optique séparatrice, OR : optique de recombinaison, OP : optique de prélèvement, MAO : modulateur acousto-optique. . .	7
1.2	Banc d'échantillonnage hétérodyne : c'est le battement de fréquence Δf entre les trains d'impulsions pompe et sonde qui crée le retard pompe-sonde. OR : optique de recombinaison, OP : optique de prélèvement, ORe : optique de réjection.	9
1.3	Principe de l'échantillonnage hétérodyne : le battement de fréquence Δf permet au retard pompe-sonde de s'incrémenter de la quantité δ_{het} à chaque excitation de l'échantillon. Le signal obtenu en mesurant les variations de réflectivité de la sonde correspond à la dynamique de l'échantillon dilatée dans le temps.	11
1.4	Le décalage de la longueur d'onde du pic d'émission de la cavité esclave se fait grâce à l'introduction de pertes localisées dans la région de son spectre d'émission contenant les petites longueurs d'onde. L'introduction de ces pertes induit une augmentation $\Delta\lambda^+ = 12$ nm de la longueur d'onde nominale de la cavité esclave. Des pertes dissymétriques sont ensuite introduites dans la cavité maître qui voit sa longueur d'onde centrale chuter de $\Delta\lambda^- = 3$ nm. La séparation en longueur d'onde totale des deux cavités est alors de $\Delta\lambda = 15$ nm.	14
1.5	Evolution du profil d'un faisceau gaussien le long de sa direction de propagation. w_0 : rayon de pincement, z_0 : position du waist, z_r : zone de Rayleigh. . .	16
1.6	Evolution du profil des faisceaux selon la direction x et la direction y (laser maître). En insert les minima de chaque profil sont encadrés en pointillé. . .	17
1.7	Illustration de la gigue : la fluctuation de la valeur du battement de fréquence crée une erreur de positionnement relative du train sonde par rapport au train pompe. Cette erreur relative est à l'origine de la chute de la bande passante du banc.	18

1.8	Principe d'asservissement en fréquence des deux cavités lasers : la fréquence de chaque cavité est mesurée à l'aide de circuits associant photodiodes rapides et filtres passe-bas. Une PLL permet ensuite de synthétiser une fréquence voisine de celle du laser maître. Un système composé d'un comparateur de phase et d'un circuit d'asservissement contrôle la longueur de la cavité esclave pour que sa fréquence de répétition soit égale à la fréquence du signal généré par la PLL. PD : photodiode, LPF : filtre passe-bas, PLL : boucle à verrouillage de phase, PI : correcteur proportionnel/intégral, AHT : amplificateur haute tension.	19
1.9	Schéma de principe d'une PLL en grandeur de phase : cet élément permet d'asservir la phase instantanée du signal de sortie de ce composant ϕ_{sortie} à la phase instantanée d'un signal d'entrée $\phi_{\text{entrée}}$. L'introduction de diviseurs de fréquence permet de sélectionner la fréquence du signal en sortie. K_p : gain proportionnel, LPF : filtre passe-bas, VCO : oscillateur contrôlé en tension, K_v : gain du VCO, I : intégrateur. Les unités des constantes de chacun des blocs sont indiquées entre parenthèses.	22
1.10	Principe d'un accumulateur de phase : l'état de sortie s du composant est commandé par la valeur stockée dans l'accumulateur de phase. Si cette dernière est plus grande que 1 l'état s passe à 1, sinon il reste à 0. La valeur stockée dans ce registre est incrémentée à intervalle régulier d'une quantité ePh issue de la soustraction de s à la fraction $\frac{F_{\text{num}}}{F_{\text{den}}}$ défini par l'utilisateur.	24
1.11	Schéma de principe d'une PLL fractionnaire numérique : association d'une PLL classique (Fig.1.9) et d'un accumulateur de phase (Fig.1.10).	25
1.12	Erreur de phase en sortie d'une PLL fractionnaire à accumulateur de phase en fonction du numéro de séquence d'après le tableau 1.2. Les erreurs de phase induites par des ordres de modulation élevés ont de plus grandes amplitudes.	27
1.13	Erreur de phase normalisée en sortie d'une PLL fractionnaire à accumulateur de phase en fonction du numéro de séquence d'après le tableau 1.2. Le caractère périodique de l'erreur de phase s'atténue au fur et à mesure que l'ordre de modulation augmente. Pour des raisons de clarté, les différentes courbes sont décalées verticalement.	27
1.14	Schéma général de l'intercorrélateur permettant de mesurer la gigue : les impulsions issues du laser maître et esclaves sont recombinaés à l'aide du cube PBS1 avant d'être envoyées vers un intercorrélateur dont la différence des longueurs de bras est ajustable à l'aide d'une ligne à retard. PBS : cube polarisant, HWP : lame demi-onde, QWP : lame quart d'onde, DL : ligne à retard	31
1.15	Dépendance spectrale de la photosensibilité de la photodiode deux photons [34].	32
1.16	Signal de sortie du circuit de conditionnement de la photodiode deux photons pour des puissances laser incidentes de 40 mW : un pic électronique est généré à chaque coïncidence. Ce signal est envoyé vers la voie de synchronisation.	33

1.17	Dispositif expérimental pour la mesure de la gigue absolue d'une cavité laser. Schéma du banc mis en place par Jiang et al. [35] SHG. : cristal doubleur de fréquence.	34
1.18	Afin de procéder à la mesure de la gigue absolue de la cavité maître, la PLL est déconnectée et la cavité esclave asservie à un générateur de signaux ultra-stable en fréquence.	35
1.19	Principe de mesure de la gigue absolue d'un laser : après leur recombinaison par le cube PBS2 les impulsions des cavités maître et esclave arrivent superposées spatialement sur la photodiode deux photons qui génère un signal à chaque fois que ces impulsions y arrivent en même temps. Ici les deux trains d'impulsions ont été représentés côte à côte afin de faciliter la lecture de la figure. HWP. : lame demi-onde, QWP. : lame quart d'onde, PBS : cube polarisant.	36
1.20	Distribution des périodes de battement mesurées T_p pour une cavité laser libre (maître) par rapport à une cavité stabilisée (esclave). L'analyse statistique de cette distribution permet de déduire la gigue absolue d'une cavité libre $\sigma_{rms}^{maître}$, définie comme l'écart type de la distribution, qui est ici de 210 ps.	37
1.21	Distribution des périodes de battement mesurées entre les deux cavités lasers non asservies et placées dans le même boîtier. Le calcul de l'écart type de la distribution permet de conclure quant à la valeur relative de la gigue $\sigma_{rms}^{relative}$ qui est ici de 140 ps.	38
1.22	Schéma d'asservissement des cavités en configuration homodyne : la PLL n'est pas utilisée. Ainsi la fréquence de la cavité esclave est asservie à la fréquence de la cavité maître. PD : photodiode, LPF : filtre passe-bas, AHT : amplificateur haute tension, PI : correcteur proportionnel/intégral.	39
1.23	Configuration de l'intercorrélateur pour les mesures en homodyne. Les impulsions issues des lasers maître et esclave sont recombinaison avant d'être envoyées vers l'intercorrélateur. L'utilisation d'une détection synchrone permet d'améliorer le rapport S/B. PBS : cube polarisant, QWP : lame quart d'onde, HO : hacheur optique, HWP : lame demi-onde, DL : ligne à retard	40
1.24	Distances relatives des impulsions après leur réflexion et leur recombinaison par le cube PBS2 en fonction de ΔL (qui varie lors de la mesure) et $\Delta L'$ (qui reste fixe).	41
1.25	Résultat de mesure de la gigue en homodyne : l'étude des pics latéraux renseigne sur la valeur de la gigue. En insert : la mesure avec une constante d'intégration de 333 fs permet de ne pas déformer le pied du pic central.	42
1.26	Valeur de la gigue rms lorsque l'asservissement est enclenché en fonction de l'ordre de modulation de la PLL, de l'amplitude du bruit de tramage (a) et pour les configurations les plus performantes (b). OM : ordre de modulation de la PLL.	44
	(a)	44
	(b)	44

1.27	Illustration de la gigue pour un retard pompe-sonde différent de 21 ns. La gigue dans le temps dilaté correspond à la valeur de la fluctuation de la durée ΔT_{het} qui sépare la coïncidence du moment où le retard entre la sonde et la pompe sera de δ_{het}	46
1.28	Principe du banc de mesure de la gigue pour différents retards pompe-sonde. Une fois recombinaison, les impulsions pompes et sondes empruntent des chemins de longueur différentes vers le photo-détecteur deux photons lequel génère des signaux électroniques à chaque coïncidence, c'est-à-dire à chaque fois que 4 impulsions lumineuses y arrivent simultanément (cadres pointillés en noir). Entre deux coïncidences, un autre signal transitoire est aussi généré : celui-ci a lieu lorsque l'impulsion sonde, en avance au niveau du cube de recombinaison PBS2 et qui emprunte le chemin le plus long, arrive en même temps que l'impulsion pompe en retard au niveau de PBS2 et qui emprunte le chemin le plus court vers la photodiode (cadre pointillé en rouge). Le temps ΔT_{het} qui sépare ces deux événements correspond alors au retard pompe-sonde dilaté dans le temps. Le retard pour lequel ΔT_{het} est mesurée, est ajustable dans le cas présent à l'aide de la platine de translation motorisée DL2.	47
1.29	Signal électrique généré par la photodiode deux photons. Le pic de grande amplitude correspond à la somme des deux autocorrélations des impulsions maître/esclave ayant emprunté les mêmes chemins optiques alors que le second pic, de plus faible amplitude, correspond à l'intercorrélacion de l'impulsion maître ayant emprunté le trajet optique le plus court avec l'impulsion esclave ayant emprunté le chemin le plus long (figure 1.28). La durée qui sépare la génération des deux événements électriques fluctue. En gris, la fluctuation de ΔT est représentée pour 1000 mesures. Elle est ici accentuée, par souci illustratif, en laissant l'asservissement libre.	48
1.30	Evolution de la gigue en fonction du retard pompe-sonde (a) pour des fréquences de battement de 100 à 400 Hz (b) pour la fréquence de battement de 500 Hz présentant les performances optimales.	49
	(a) Gigue pour différentes fréquences de battement	49
	(b) Gigue pour la fréquence de battement la plus performante	49
1.31	Temps caractéristiques des effets produits par une impulsion laser ultracourte sur la matière d'après Callan [38]. En pointillé, la fenêtre d'observation qu'autorise le banc hétérodyne aux vues de la valeur de sa gigue et de la fréquence de répétition du train d'impulsion pompe.	51
2.1	Configuration géométrique du problème.	55
2.2	Élévation de la température dans un échantillon de tungstène : (a) alors que les longueurs caractéristiques de la surface irradiée sont de l'ordre du micron, le flux lumineux ne pénètre pas à plus de quelques dizaines de nanomètres du fait de l'absorption optique élevée de ce matériau. (b) profil de la température en fonction de la profondeur. L'illustration est réalisée en utilisant les données de l'institut IOFFE [47]	57

(a)	57
(b)	57
2.3 Profil spatial de la déformation suivant l'axe x_1 de l'espace pour différents temps. Cette déformation possède une forme dipolaire. En insert : l'étalement spatial de l'onde acoustique généré dépend de la profondeur de pénétration optique ξ de l'impulsion pompe. Figure extraite de [39].	59
2.4 Le champs électrique $E_r(t, z)$ réfléchi par un échantillon dont la surface est au repos et le champs électrique $E'_r(t, z)$ réfléchi lorsque la surface s'est déplacée d'une quantité $u(0, t)$, sont déphasés de $\frac{4\pi}{\lambda}u(0, t)$.	61
2.5 La diffusion Brillouin peut être décrite comme un mécanisme de collision inélastique entre deux particules élémentaires : un photon et un phonon.	62
2.6 Schéma du banc pompe sonde hétérodyne. Les faisceaux pompe et sonde sont recombinaés avant d'atteindre d'une part l'échantillon étudié et d'autre part la photodiode deux photons qui génère les signaux de synchronisation. L'utilisation d'un détecteur différentiel permet de s'affranchir des fluctuations éventuelles de puissance de la sonde. Pour les légendes se référer à la figure 1.14 et VD : densité variable, NPBS : cube non polarisant.	64
2.7 Le détecteur différentiel est composé de deux photodiodes montées tête-bêche. L'intensité du signal qui résulte de ce montage est la différence des intensités issues de chaque photodiode. Ce signal est alors amplifié par un étage transimpédance puis par un étage proportionnel. Légende : OPAMP : amplificateur opérationnel, ATI : amplificateur transimpédance. Source : [54]	66
2.8 Coupe de l'échantillon étudié. La pompe et la sonde sont réfléchies sur la surface du tungstène. La longueur de pénétration optique du faisceau à 1030 nm est petite devant la tâche du faisceau ce qui a pour conséquence de rendre le problème acoustique unidimensionnel.	67
2.9 Réponse transitoire de l'échantillon de tungstène à une impulsion laser. Le pic de coïncidence électronique(1) correspond à l'augmentation de la température électronique. Cette température est ensuite cédée au réseau, puis une lente décroissance de la température de la zone qui a été excitée par la pompe est enregistrée (2) : cette lente décroissance correspond à la diffusion thermique. A cette décroissance se superposent des échos acoustiques qui, détectés à leur retour en surface par couplage photo-élastique, sont mis en valeur dans l'insert de la figure (3). t_v : temps entre deux échos successifs, v_l : célérité de l'onde acoustique et e : épaisseur de la couche de tungstène.	69
2.10 La composante acoustique des signaux (a) s'obtient par extraction du fond thermique des mesures enregistrées. L'insert permet de constater que les 8 ^e , 9 ^e , et 10 ^e échos sont observables. La transformée de Fourier (b) de la composante acoustique du signal, représentée ici en trait plein, permet de constater que le spectre du signal mesuré s'étend au delà de 130 GHz. Il est à noter que ce spectre contient l'information permettant de remonter à l'épaisseur de la couche. En trait pontillé a été représentée le spectre d'un seul écho.	70

(a)	Réponse acoustique	70
(b)	Spectre de la réponse acoustique	70
2.11	Rapport signal sur bruit d'un banc homodyne en fonction du temps de mesure pour une fenêtre d'observation de 0.7 ns (axe du bas) et 21 ns (axe du haut). En se cantonnant à une fenêtre d'observation de 0.7 ns, le temps nécessaire pour obtenir une mesure, avec un banc pompe-sonde homodyne, au rapport signal sur bruit équivalent à celui présenté (70 dB), est environ 45 min. Si l'observation doit être effectuée sur 21 ns, il faut alors plus de 24 heures. Cette étude du rapport signal sur bruit des bancs homodynes a été réalisée par Hélène Michel lors de ses travaux de doctorat[13].	72
2.12	L'échantillon étudié ici est une couche de 500 nm de titane déposée sur une lamelle de 170 μm de silice. La fine couche de titane sert à générer des ondes acoustiques qui se propagent vers la surface de l'échantillon. Du fait de la transparence de la silice, le faisceau sonde y pénètre en profondeur : une partie de ce faisceau se réfléchit sur différentes interfaces immobiles, une autre partie est rétrodiffusée par le front d'onde acoustique mobile.	73
2.13	Réflectivité transitoire de l'échantillon de silice. A la décroissance thermique dans le titane s'ajoutent des oscillations Brillouin mises en évidence dans l'insert (a) et qui sont dues aux interférences des ondes lumineuses réfléchies aux interfaces immobiles (interface silice-air, interface titane-silice) avec l'onde rétrodiffusée sur le front d'onde acoustique. L'insert (b) permet de souligner le fait que la largeur de fenêtre d'observation permet ici de visualiser la propagations des ultrasons sur toutes leurs durées de vie.	74
2.14	L'étude du temps de vie des phonons dans la silice peut se faire ici grâce à l'étude du pic central de la FFT de la réponse acoustique de l'échantillon. . .	75
3.1	Afin d'être en mesure de modifier les positions relatives des zones de l'échantillon éclairées par la pompe et par la sonde, un système afocal est inséré sur le chemin des impulsions pompes. Ce système est composé de deux lentilles de focale f : la première L1 est placée sur deux platines de translation motorisées dont les axes de déplacement orthogonaux (\updownarrow et \otimes) permettent à la pompe de balayer l'échantillon. La seconde lentille L2 est quant à elle immobile et placée à une distance $2f$ de L1 afin d'assurer au faisceau pompe une vergence nulle.	82
3.2	Principe de déviation d'un faisceaux laser par une lentille : en déplaçant légèrement la lentille L1, le faisceau se trouve dévié. Une seconde lentille L2 permet alors de rattraper la divergence du faisceau laser. Pour tout déplacement D de la lentille L1, le faisceau passe toujours par un même point, situé sur l'axe du faisceau non perturbé, à une distance $4f$ de la lentille L1. Figure adaptée de [13] et réalisée à l'aide du logiciel Optgeo.	83
3.3	Calibration du déplacement d de la tâche focale sur l'échantillon en fonction du déplacement D de la lentille L1. Pour $D = 0$, les tâches focales de la pompe et de la sonde sont superposées.	84

3.4	Principe de la BDD : le passage d'une onde de surface modifie la distance entre l'échantillon et l'objectif de microscope. Il en résulte une variation de vergence du faisceau sonde réfléchi. La différence de vergence entre le faisceau perturbé par l'onde (en traits tiretés) et le faisceau réfléchi par la surface au repos (pointillés fins) est détectée grâce à un iris inséré sur le chemin entre l'échantillon et le photodétecteur. L'effet BDD peut être amplifié en défocalisant la surface de l'échantillon vers l'objectif de microscope. Schéma d'après [93]. NPBS : cube non polarisant.	85
3.5	Le passage d'une onde de surface modifie l'angle d'incidence du faisceau sonde. De ce fait, la direction du faisceaux sonde réfléchi par une surface au repos (ici en noir) est légèrement différente de celle réfléchi par une surface perturbée par une onde (ici en rouge). Cette différence peut être détectée en insérant un couteau sur le trajet entre l'échantillon et le phototecteur. Au final, la variation d'intensité collectée par la photodiode est proportionnelle au gradient de déplacement de la surface.D'après [93]. NPBS : cube non polarisant.	86
3.6	La propagation d'ondes de surface est étudiée sur un échantillon composé d'une fine couche de 255 nm de tungstène déposée sur un substrat de silicium orienté (100). La distance d qui sépare la tâche focale du laser pompe et du laser sonde sur l'échantillon est contrôlée en translatant la lentille L1 (se référer aux explications de la sous-section 3.1.2).	87
3.7	Évolution, en unité arbitraire, du changement du coefficient de réflexion de l'échantillon suite à l'absorption d'une impulsion laser pour des retards pompe-sonde de (a) 6 ps, (b) 26 ps, (c) 136 ps et (d) 505 ps.	88
3.8	L'analyse des mesures permet de rendre compte de l'existence de deux ondes se propageant à la surface du tungstène. La propagation de ces ondes est figée sur cette figure (a)1930 ps,(b) 3760 ps, (c) 8760 ps et (d) 13380 ps après la coïncidence optique. La nature quasi-circulaire des fronts d'onde montre une propagation isotrope des ondes de surface.	89
3.9	Courbes de dispersion des ondes observées. Deux ondes sont clairement distinguables : l'onde longitudinale rasante et la pseudo-onde de Rayleigh qui exhibe un caractère dispersif. Ici la fréquence a été représentée en fonction du vecteur d'onde k (échelle du bas) et du produit ke (échelle du haut) où e est l'épaisseur de la couche de tungstène.	90
3.10	Signaux temporels enregistrés en différents points portés par la flèche rouge de la figure 3.8 (d). L'étude de la déformation de la surface de l'échantillon permet de constater que deux ondes s'y propagent : la première à une célérité d'environ $5 \mu m/s$ et la seconde, de dispersion positive, à une célérité comprise entre 2 et $3 \mu m/s$. En traits noirs : résultats des mesures. En traits rouges : résultats du code de calcul développé par Mathieu Perton[96].	91
3.11	Les particules d'or se présentent sous la forme d'agglomérats dont le diamètre moyen est d'environ 500 nm. Chacun de ces agglomérats est composé de plusieurs grains d'or d'environ 30 nm de diamètre. Figure extraite de [115]	94

3.12	Illustrations des premiers modes de vibration d'une sphère. Les modes de torsion (a) et (b) sont caractérisés par un déplacement radial nul. Les modes sphéroïdaux (c) et (d) se caractérisent quant à eux par un déplacement de la surface de la sphère. Figure d'après [121].	95
3.13	Le contact entre une particule de masse m posée sur un substrat peut être modélisé par un système masse-ressort. Ce dernier exhibe alors une fréquence propre $f_a = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m}}$ où k est la raideur du ressort.	96
3.14	Pour des particules dont le diamètre est inférieur à celui de la tâche focale du laser sonde, la détection du mouvement de surface peut se faire par interférométrie. En effet (i) une partie du faisceau se réfléchit sur le substrat et (ii) l'autre sur la particule. La différence de marche entre les deux faisceaux réfléchis conduit alors à des interférences constructives ou destructives qui permettent de mesurer le déplacement vertical de la particule étudiée.	97
3.15	Lors de l'excitation d'une particule d'or déposée sur un substrat, la réponse acoustique exhibe deux fréquences : la première, notée ici f_0 et mise en évidence dans l'insert, est inversement proportionnelle au rayon de la particule. La seconde fréquence, de valeur plus faible et notée ici f_a est propre au contact entre la particule et le substrat.	98
3.16	Image optique de la surface de l'échantillon. Cette image a été obtenue à l'aide d'un microscope à coefficient de grossissement $\times 50$. Sur cette image, il est difficile de faire la distinction et de donner une taille aux particules A, B et C.	99
3.17	Détection des particules par contraste interférométrique. Pour cette mesure, seul le laser sonde est utilisé. Celui-ci balaye l'échantillon et se réfléchit vers le photo-détecteur. Le balayage s'effectue en déplaçant l'échantillon à l'aide d'une platine motorisée.	100
3.18	Image par contraste interférométrique de la surface de l'échantillon balayée. A chaque tâche de couleur correspond une particule. Les positions des trois particules sont bien corrélées avec celles de la figure 3.16.	100
3.19	Le balayage de l'échantillon par les tâches focales pompe et sonde est réalisé en le déplaçant à l'aide d'une platine xy motorisée. Ce balayage permet de faire l'acquisition des réponses transitoires du matériau en différents points de l'espace. L'étude de ces réponses permet alors de mettre en évidence des hétérogénéités acoustiques.	101

3.20	L'excitation de particules submicroniques déposées sur un substrat se manifeste par un déplacement de surface selon les fréquences de respiration et d'adhésion respectivement notées f_0 et f_a . Pour mettre en évidence ces fréquences, deux échelles de temps sont à considérer : la première de l'ordre de la centaine de picosecondes permet de mettre en évidence le mouvement de respiration de la particule en représentant cette dernière 345 ps, 480 ps et 700 ps après qu'elle ait absorbé l'impulsion pompe (insert du haut). Une seconde échelle de temps, de l'ordre de la nanoseconde, permet quant à elle d'observer le mouvement d'adhésion de la particule (insert du bas). En représentant cette dernière aux temps 2.3 ns, 4 ns, 5.2 ns et enfin 7.5 ns, une période apparaît clairement.	102
3.21	Cartographie des fréquences de respiration (a) et des fréquences axiales (b) détectées lors du balayage de l'échantillon par la pompe et la sonde.	104
	(a)	104
	(b)	104
A.1	L'estimation de la réponse transitoire d'un matériau, dans le cadre d'une expérience pompe-sonde, se fait en calculant la variance de N acquisitions. En supposant que l'échantillon possède une réponse parfaitement reproductible et que la gigue du système soit nulle, c'est à dire que le temps d'échantillonnage T_e soit parfait, l'estimateur final reproduira parfaitement la réponse de l'échantillon. Si en revanche T_e présente une fluctuations aléatoires $\Delta T(i, j)$ qui varie non seulement pour différents points d'un même signal mais aussi pour les points de signaux différents qui doivent être sommés, alors l'estimateur final sera dégradé. Cette dégradation se manifestera par un lissage temporel de la dynamique enregistrée.	113
C.1	La position d'équilibre de la particule ne se situe pas en surface du substrat mais à une profondeur h_0 , là où le potentiel d'interaction U est minimal. Lorsque la particule se met en mouvement, suite à une excitation, la seule translation d'ensemble qu'elle puisse avoir, à l'étude de la symétrie du problème est un mouvement porté par la normale à la surface sur laquelle elle est déposée.	120
C.2	La position d'équilibre de la particule ne se situe pas en surface du substrat mais à une profondeur h_0 , là où le potentiel d'interaction U entre la particule et le substrat est minimal. Lorsque la particule se met en mouvement, suite à une excitation, la seule translation d'ensemble qu'elle puisse avoir, à l'étude de la symétrie du problème est un mouvement porté par la normale à la surface sur laquelle elle est déposée.	121

Liste des tableaux

1.1	Evolution temporelle des différentes variables de l'accumulateur de phase pour $\frac{F_{\text{num}}}{F_{\text{den}}} = \frac{1}{3}$: l'erreur de phase e_{Ph} , qui correspond à la soustraction de l'état de sortie à la valeur de $\frac{f_{\text{num}}}{f_{\text{den}}}$ est intégrée au cours du temps. Le résultat de cette intégration $\Sigma_{e_{\text{Ph}}}$ est stocké dans un registre : l'accumulateur. L'état de sortie passe à 1 si $\Sigma_{e_{\text{Ph}}} \geq 1$. La valeur initiale de l'état de sortie a été choisie comme étant nulle ici.	24
1.2	Séquence de génération du nombre $773+1/3$ en fonction de l'ordre de modulation de la PLL d'après [25]. Les ordres de modulations élevés permettent de synthétiser des nombres grâce au parcours de plages plus élevées.	26
1.3	Détail des neuf configurations de PLL étudiées.	43
3.1	Résumé des propriétés physiques des particules cartographiées. La connaissance des réponses acoustiques des nanoparticules et l'exploitation de ces dernières permet de donner une estimation de leur diamètre avec une incertitude de quelques dizaines de nanomètres.	105

Remerciements

La thèse, dont ce manuscrit constitue le mémoire, s'est inscrite dans un contexte de collaboration entre la société Amplitude Systèmes (AS), l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie (I2M ex. Laboratoire de Mécanique Physique) et le Laboratoire d'Ondes et Matière d'Aquitaine (LOMA ex Centre de Physique Moléculaire et Hertzienne). Le travail décrit ici a été réalisé en partie à AS et en partie à l'I2M.

Je remercie Eric Mottay de m'avoir accordé sa confiance pour mener à bien les travaux décrits dans cette thèse. Mes remerciements vont aussi à Eric Freyz directeur du LOMA et Marc Deschamps directeur du LMP pour m'avoir accueilli au sein de leurs laboratoires.

Je remercie aussi Messieurs Laurent Belliard de l'université Pierre et Marie Curie et Pascal Vairac de l'Ecole Supérieure de Mécanique et des Microtechniques de Besançon de l'attention qu'ils ont portée à mes travaux de thèse en acceptant d'examiner ce manuscrit.

Mes remerciements vont également à Pierre-Michel Adam de l'Université Technologique de Troyes et à Philippe Delaporte directeur de recherche CNRS de m'avoir fait l'honneur de faire partie de mon jury de thèse.

Je tiens aussi à remercier mes directeurs de thèse, Bertrand Audoin et Stefan Dilhaire, lesquels m'ont accordé leur confiance afin de mener à bien le montage et l'optimisation du banc décrit dans ce manuscrit. Je tiens aussi à les remercier pour leur disponibilité et pour la proximité dont ils ont su faire preuve pendant ces trois années.

Je remercie aussi Jean Michel Rampoux pour les discussions diverses et variées que j'ai eu la chance d'avoir avec lui. Il est certain que dorénavant, je ne regarderai plus le laser mégajoule de la même façon « puisqu'un mégajoule c'est juste un yahourt... »

Il faut savoir que (sic) cette thèse aurait été beaucoup plus difficile à mener à bien sans l'encadrement de Yannick Guillet, grand maître de la double virgule, dont l'aide et la patience dont il a su faire preuve m'ont permis de mener à bien ce travail. Quand Yannick n'était pas là pour répondre à des questions urgentes, Thomas Dehoux répondait toujours présent : je l'en remercie !

Je remercie Pierre Rigail, d'une part pour m'avoir fait l'honneur d'être l'un des membres de mon jury et d'autre part pour l'attention qu'il a portée aux problèmes que l'on a rencontrés lors des premières utilisations de la source laser. J'en profite au passage de saluer Tony Pinal (qui s'appelle en fait Anthony) et Lucie Béron pour l'aide qu'ils m'ont apportée à mes débuts au sein d'Amplitude Systèmes.

Une pensée va aussi aux doctorants que j'ai été amené à rencontrer durant mes travaux. Évidemment ceux de mon équipe, Samuel Raetz, Maroun Abi Ghanem, Gaëtan Calbris et

Mathieu Ducouso : travailler avec vous ces dernières années a vraiment été agréable et motivant. Les mêmes commentaires vont à Julien Higuët, Salvo Minissale, Gilles Pernot, Jonah Sahver, et Atef Gadalla Abdalla.

Je dois aussi remercier les gens que j'ai rencontrés lors de ma thèse et avec lesquels je ne sais pas vraiment pourquoi je suis devenu ami... Tony Menth à L'eau (nouvel adepte du Constantinople... il faudra trouver le même vers chez toi), Xavier Tridon (grand mangeur de... chocolat?), les JUs, Joe le berbère et Mattieu du chnord à qui je n'ai cessé de rappeler l'importance des sessions verrouillées...

Enfin une pensée (mais pas de remerciements, il ne faut pas exagérer) à tous les soutiens : Zalamet et Dynamite, Jonny John Do, Guillaume, Kassie Kasse, Nelma, Bryan, Thomas (hus), Anne-SoSoo, Sandra, JiPi, Damien et Audrey, Bash, Celine de la colloc.

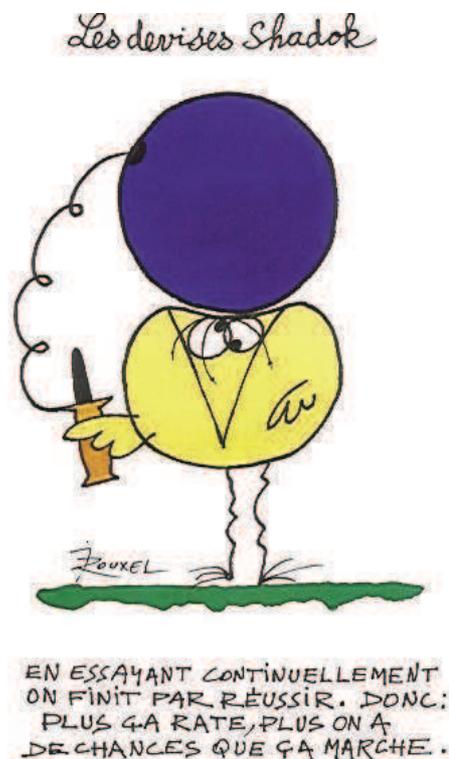


FIGURE 1: *Devise des Shadok*

*A mon père, à ma mère
et à ma sœur*

Introduction générale

L'imagerie des ondes acoustiques se propageant dans une structure donne accès aux propriétés élastiques des matériaux étudiés. Ces ondes, non ionisantes, ont la capacité d'imager des structures optiquement opaques. Les ondes acoustiques ont donc très vite trouvé des applications dans divers domaines comme l'évaluation ou le contrôle non destructif de matériaux ou l'imagerie d'organismes vivants.

L'imagerie à l'aide d'ondes acoustiques suppose de pouvoir générer et détecter ce type d'onde. Cette génération est traditionnellement obtenue avec des matériaux piézoélectriques[1]. A la fin des années 1930, Sokoloff introduit le concept d'imagerie acoustique[2] à l'aide d'ultrasons hautes fréquences. Dans un second temps, Sokoloff introduit aussi le principe de la microscopie acoustique[3], promettant d'imager des hétérogénéités avec des résolutions proches de celles des microscopes optiques dès lors que des ondes acoustiques de fréquences supérieures à 3 GHz pourraient être générées. A cause des limitations techniques de l'époque, il ne peut démontrer la faisabilité de son invention qu'avec des fréquences relativement basses (quelques mégahertz). Ces ondes permettent alors d'obtenir des résolutions de quelques fractions de millimètre. De nos jours encore, malgré les progrès qui ont été faits dans la fabrication des transducteurs piézoélectriques, ces derniers atteignent très difficilement les fréquences espérées par Sokoloff.

De nouveaux moyens de génération et de détection d'ondes devaient alors voir le jour pour que l'acoustique reste un moyen de contrôle de structures de plus en plus petites et dont l'auscultation nécessite l'utilisation d'ondes aux fréquences de plus en plus élevées. C'est dans ce contexte qu'en 1984[4], lors d'expériences de spectroscopie mettant en jeu un laser produisant des impulsions ultracourtes, H. Maris et son équipe se rendent compte que la couche mince qu'ils analysent est parcourue d'ondes acoustiques dont le spectre contient des fréquences de plusieurs dizaines de gigahertz. La photo-génération, formulée en 1963 par R.M. White[5], venait d'être expérimentalement démontrée dans des couches minces. Cette découverte donnait naissance à l'acoustique picoseconde, domaine qui permet d'accéder aux propriétés élastiques de la matière structurée à une échelle nanométrique. Le protocole expérimental proposé historiquement, dit homodyne, faisait appel à un seul laser pour générer et détecter les ondes acoustiques. L'utilisation de bancs homodynes en acoustique picoseconde nécessite des temps d'acquisition qui peuvent être de l'ordre de l'heure pour pouvoir visualiser avec un bon rapport signal sur bruit, une résolution et une largeur de fenêtre temporelles suffisantes, des

signaux qui permettent d'extraire, en un point, les propriétés élastiques de la matière. Ces longues durées d'acquisition rendent alors difficilement envisageable une cartographie des propriétés élastiques de structures à ces échelles.

En 2005, afin de réduire les temps de mesure et d'ouvrir ainsi l'acoustique picoseconde au domaine de l'imagerie, le Laboratoire d'Ondes et Matière d'Aquitaine (LOMA, ex-CPMOH) et l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie (I2M, ex-LMP) proposent un dispositif dit hétérodyne qui fait appel à deux lasers aux taux de répétition légèrement différents. Pour effectuer la mesure de la réponse acoustique, thermique ou optique d'un matériau avec une grande précision, les différents acteurs proposent d'asservir les cavités en fréquence de répétition. Ce dispositif, qui a fait l'objet d'un dépôt de brevet[6], doit théoriquement permettre un gain de plusieurs ordres de grandeur dans les temps d'acquisition. La société Amplitude-Systèmes (AS) propose de développer deux sources lasers synchronisables qui puissent répondre aux besoins des expériences d'acoustique picoseconde. Le travail présenté dans ce manuscrit se situe dans ce contexte de collaboration entre trois acteurs. La première partie de ce travail a consisté à assembler la source laser et à l'adapter pour qu'elle puisse répondre aux besoins d'un banc de mesure orienté vers une utilisation en acoustique picoseconde. Cette première étape a été effectuée dans les locaux d'AS. S'en est alors suivie l'évaluation des performances de la source, le montage du banc d'acoustique picoseconde hétérodyne et la réalisation des premières mesures avec le banc assemblé à l'I2M. Tout au long du manuscrit, un accent particulier sera mis sur l'apport de l'échantillonnage hétérodyne en acoustique picoseconde. Cette apport sera illustré par la richesse spectrale des signaux présentés, qui s'étend sur plusieurs ordres de grandeur, par les résolutions temporelles et fréquentielles élevées accessibles simultanément par le procédé hétérodyne, et par les faibles temps d'acquisition nécessaires pour obtenir des mesures avec un bon rapport signal sur bruit.

Ce manuscrit, qui constitue le mémoire de mes travaux de thèse, développe la description de ces travaux. Il s'articule autour de trois chapitres :

1. Le premier chapitre expose les différences de principe entre les bancs dits homodynes et ceux dits hétérodynes. Le chapitre présente ensuite les deux cavités lasers et les moyens qui ont été mis en œuvre pour les adapter en vue de leur intégration dans un banc destiné à l'acoustique picoseconde. Puis est décrit l'asservissement électronique entre les deux cavités lasers qui a été mis en place afin d'optimiser la résolution temporelle du banc. L'influence des performances de cet asservissement sur la résolution temporelle des mesures y est ensuite analysée.
2. Le second chapitre présente quant à lui brièvement la théorie de la photo-génération et de la photo-détection d'ondes acoustiques. Cette présentation permet d'expliquer la forme des premiers signaux obtenus à l'aide du banc pompe-sonde hétérodyne. Les échantillons choisis afin d'obtenir ces signaux permettront, entre autres, d'illustrer l'apport de l'échantillonnage hétérodyne en terme de gain de temps d'acquisition, de résolution spectrale et de rapport signal-sur-bruit des mesures.
3. Le troisième chapitre montre comment la vitesse d'acquisition du banc hétérodyne

ouvre la voie à l'imagerie acoustique de la matière à l'aide d'ondes acoustiques picosecondes. Pour ce faire deux séries de mesures y sont présentées. La première suit la propagation d'une onde acoustique à la surface d'une couche mince de tungstène déposée sur un substrat de silicium. Il est alors montré que ces ondes de surface de très haute fréquence sont sensibles à la présence de la couche mince de tungstène dont l'épaisseur est de l'ordre de la centaine de nanomètres. La seconde série de mesure montre, quant à elle, l'aptitude du banc à détecter, à imager et à caractériser des hétérogénéités élastiques submicroniques.

Chapitre 1

Double cavité laser : assemblage et performances

La mise en place d'un banc d'échantillonnage hétérodyne nécessite l'utilisation de deux sources lasers aux impulsions ultracourtes. Le premier travail effectué lors de cette thèse a consisté à assembler et à adapter le premier exemplaire d'une double cavité synchronisable proposée par la société Amplitude-Systèmes. Il a fallu assembler et adapter ce prototype de produit industriel à un usage orienté vers l'acoustique picoseconde et la nanothermie. Dans un second temps, les performances de ce prototype ont été caractérisées et sa compatibilité avec les applications visées a été démontrée.

Ce premier chapitre de thèse va donc décrire, après avoir brièvement rappelé les principes de l'échantillonnage optique, les moyens qui ont été mis en œuvre pour assembler et adapter les sources lasers pour que leurs caractéristiques techniques soient compatibles avec les applications d'acoustique picoseconde et nanothermie visées. Puis, les méthodes de caractérisation des performances optiques et électroniques des sources seront décrites. Enfin, le chapitre se terminera en confrontant les performances mesurées aux temps caractéristiques des phénomènes susceptibles d'être étudiés à l'aide de la méthode dite d'échantillonnage hétérodyne pour conclure quant à la possibilité d'observer tel ou tel phénomène.

1.1 Présentation des méthodes homodyne et hétérodyne

L'association de lasers impulsions sub-picosecondes et des techniques dites « pompe-sonde » est maintenant couramment utilisée pour détecter des phénomènes transitoires dont le contenu spectral peut s'étendre jusqu'à plusieurs dizaines de terahertz[7]. Ces expériences, qui seront nommées expériences pompe-sonde tout au long de ce manuscrit, nécessitent l'utilisation de deux impulsions laser ultracourtes. La première impulsion, dite impulsion pompe, a pour rôle de perturber l'échantillon et d'y générer les effets à étudier. Ces effets, qu'ils soient électroniques, thermiques ou acoustiques, engendrent une modification transitoire de

la réponse optique du milieu qui est détectée à l'aide d'une seconde impulsion ultracourte : l'impulsion sonde. En modifiant l'écart séparant les instants d'arrivée de la pompe et de la sonde sur l'échantillon, la réponse transitoire de celui-ci peut être reconstruite. Dans la suite de ce manuscrit l'écart temporel entre la pompe et la sonde sera appelé « retard pompe-sonde ». L'étude de la réponse transitoire obtenue renseigne alors sur l'évolution temporelle de quantités comme la température ou la déformation de l'échantillon ce qui permet de déterminer ses paramètres physiques intrinsèques comme sa conductivité thermique, ses propriétés élastiques, sa masse volumique. . .

Parmi les différentes méthodes permettant de contrôler un retard pompe-sonde compatible avec l'observation de phénomènes transitoires à l'échelle de la picoseconde, deux méthodes sont couramment employées :

- La méthode historique, qui donna naissance à la femtochimie, a été mise au point par Ahmed Zewail dans les années 70 lors de ses travaux de thèse. Ce protocole de mesure permettra au chimiste d'écrire une série de trois articles en 1987 [8, 9, 10], articles qui donneront naissance à la femtochimie et qui lui vaudront le prix Nobel en 1999. Dans ces expériences, une seule source laser est nécessaire, le retard pompe-sonde étant généré à l'aide d'une ligne à retard mécanique. Dans la suite de ce manuscrit, le terme homodyne sera employé pour décrire cette méthode¹.
- La méthode mise en œuvre par Elzinga et al. afin d'étudier le temps de vie de la fluorescence de la rhodamine B [12]. Le retard pompe-sonde est généré en utilisant deux sources aux taux de répétition légèrement différents. Dans la suite de ce manuscrit, le terme hétérodyne sera employé pour décrire cette méthode.

En 1984, à l'aide d'un banc pompe-sonde homodyne, H. Marris et al. mettent en évidence l'existence d'ondes acoustiques dont le spectre contient des composantes qui avoisinent la centaine de gigahertz. L'étude de la propagation de ces ondes permet alors de renseigner sur les propriétés élastiques de la matière à des échelles nanométriques. Cette méthode laisse alors entrevoir à l'acoustique de nouvelles applications potentielles comme l'évaluation ou le contrôle non destructif en microélectronique ou l'imagerie biologique à une échelle sub-cellulaire. Dès lors, de nombreuses équipes dans le monde font de l'acoustique picoseconde leur sujet d'étude en employant des bancs pompe-sonde homodynes.

À Bordeaux en 2005, afin de diminuer le temps de mesure de leurs expériences en acoustique picoseconde et en nanothermie, l'I2M et le LOMA décident de mettre en place un banc pompe-sonde hétérodyne. Afin d'obtenir des signaux avec une résolution temporelle optimale, les deux équipes proposent d'utiliser deux cavités lasers asservies en fréquence. La technique d'asservissement fait alors l'objet d'un dépôt de brevet[6].

1. Il est à noter l'avènement récent de bancs pompe-sonde homodynes, utilisant deux lasers aux taux de répétition identiques, ayant recours à un déphaseur électronique pour générer le retard pompe-sonde[11].

1.1.1 Principe de l'échantillonnage homodyne

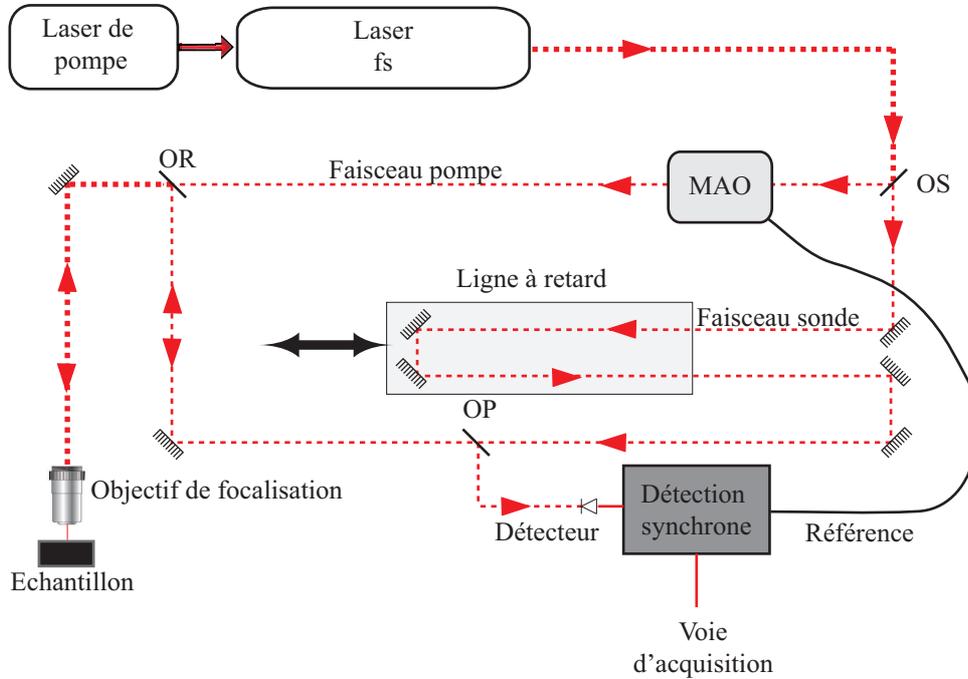


FIGURE 1.1: Montage pompe-sonde homodyne pour l'acoustique picoseconde à l'I2M. Une seule impulsion est scindée en deux pour former la pompe et la sonde. La différence de longueur entre le trajet des impulsions pompes et le trajet des impulsions sondes pour arriver à l'échantillon est ajustable à l'aide d'une ligne de translation mécanique. OS : optique séparatrice, OR : optique de recombinaison, OP : optique de prélèvement, MAO : modulateur acousto-optique.

Le principe d'un banc de mesure pompe-sonde homodyne est représenté sur la figure 1.1. Dans ce type de montage, une impulsion laser ultracourte est scindée en deux à l'aide d'une optique séparatrice (OS) pour former l'impulsion pompe et l'impulsion sonde. Ces deux impulsions parcourent alors deux chemins optiques, dont la différence est ajustable à l'aide d'une ligne à retard mécanique, jusqu'à une optique de recombinaison (OR) où elles sont recombinées. Les impulsions pompe et sonde sont alors focalisées sur l'échantillon à étudier à l'aide d'un objectif de microscope. Après sa réflexion sur l'échantillon, l'impulsion sonde est orientée vers le photodétecteur à l'aide d'une optique de prélèvement (OP), qui génère un signal proportionnel à l'intensité de la sonde, c'est-à-dire à la quantité de sonde réfléchiée par l'échantillon. Afin d'accroître le rapport signal sur bruit (S/B) des signaux, une détection synchrone est utilisée : un élément acousto-optique (MAO) module le faisceau pompe à une fréquence ajustable. Cette fréquence sert de référence à une détection synchrone qui démodule le signal, lequel est ensuite numérisé par le système d'acquisition.

Le retard pompe-sonde δ_{hom} contrôlé à l'aide de la ligne de translation mécanique placée

sur le chemin de la sonde a pour valeur :

$$\delta_{\text{hom}} = \frac{\Delta D}{c}, \quad (1.1)$$

où c est la célérité de la lumière et ΔD représente la différence de longueur des chemins optiques de la pompe et de la sonde vers l'échantillon. La réponse transitoire de l'échantillon est reconstruite en augmentant progressivement la valeur de ΔD . Chaque différence de chemin optique de 0.9 mm génère un retard de 3 ps.

En général, la dynamique des signaux est observée entre deux excitations successives. La largeur temporelle des fenêtres accessibles est donc donnée par l'inverse du taux de répétition de la cavité laser employée². En acoustique picoseconde et en nanothermie, les cavités lasers utilisées ont des cadences habituellement comprises entre la dizaine de mégahertz et le gigahertz. De ce fait, la différence de chemin optique ΔL qu'il faut être en mesure de générer peut facilement s'étendre au delà de plusieurs mètres si l'expérimentateur veut pouvoir avoir accès à la totalité de la fenêtre temporelle considérée. A titre d'exemple, pour un laser cadencé à 50 MHz, le temps entre deux impulsions est de 20 ns. Pour pouvoir observer la totalité de la dynamique d'un signal sur cette fenêtre, il faut pouvoir, d'après la relation (1.1), générer une différence de chemin optique de 6 m.

L'avantage de l'échantillonnage homodyne est qu'il permet de générer des retards pompe-sonde avec une résolution de l'ordre de la femtoseconde grâce à la résolution des platines de translation disponibles actuellement sur le marché. La résolution temporelle de ces bancs n'est donc limitée que par les durées des impulsions pompe et sonde. Cependant, l'utilisation de platines de translation n'est pas sans conséquences sur la qualité des signaux acquis et peut être la source de nombreux artefacts de mesure :

- Lors d'une expérience pompe-sonde, le rapport des distances entre (i) la sortie du laser et l'objectif de microscope et (ii) l'objectif de microscope et l'échantillon à étudier doit être parfaitement ajusté de façon à maximiser les fluences des lasers sur l'échantillon et à optimiser les effets de génération et de détection des phénomènes physiques engendrés. Lorsqu'une platine de translation, insérée sur le trajet des impulsions sonde, se déplace afin d'augmenter ou de diminuer le retard pompe-sonde, elle modifie le rapport entre les distances (i) et (ii). Ce dernier point est à l'origine d'une défocalisation du spot sonde sur l'échantillon, défocalisation responsable d'une évolution du signal mesuré sans rapport avec la réponse transitoire de l'échantillon.
- Les défauts d'alignement des optiques de la platine de translation ainsi que les défauts intrinsèques à celle-ci (lacet, tangage ...) provoquent des changements de pointé du faisceau et par conséquent modifient la quantité d'énergie collectée par le détecteur, ainsi que la focalisation et la position de la zone de l'échantillon irradiée par le laser.
- Par leur nature mécanique, les platines de translation induisent des vibrations. La vitesse de déplacement des platines ne peut donc pas être trop élevée ($\lesssim 1$ cm/s) pendant

2. Il arrive cependant que des expérimentateurs choisissent d'étudier des signaux qui s'étendent au delà de cette limite mais ce cas ne sera pas traité ici.

la phase de mesure, car alors le rapport S/B des acquisitions s'en trouverait dégradé. De ce fait, le temps nécessaire pour effectuer une mesure qui nécessite de moyennner plusieurs acquisitions afin d'améliorer le rapport S/B peut facilement s'étendre au-delà de l'heure. Par conséquent, les bancs homodynes sont difficilement exploitables à des fins d'imagerie résolues en temps qui nécessitent des mesures en de nombreux points.

1.1.2 Principe de l'échantillonnage hétérodyne

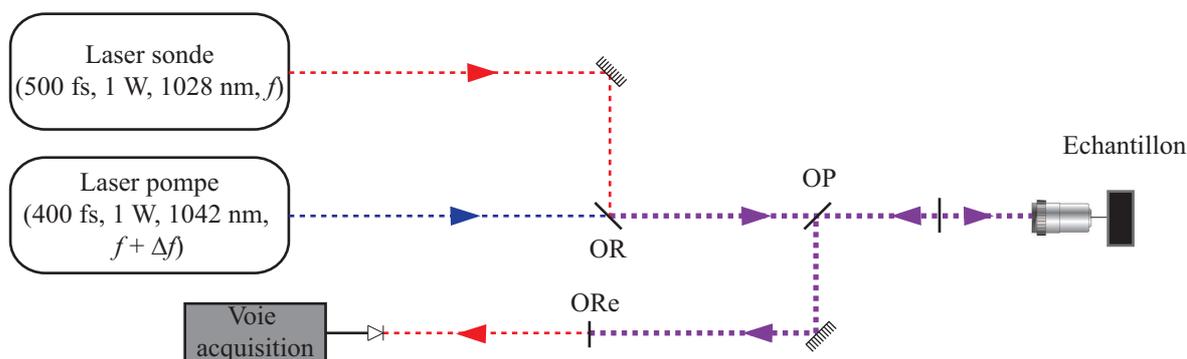


FIGURE 1.2: Banc d'échantillonnage hétérodyne : c'est le battement de fréquence Δf entre les trains d'impulsions pompe et sonde qui crée le retard pompe-sonde. OR : optique de recombinaison, OP : optique de prélèvement, ORe : optique de réjection.

Les bancs hétérodynes nécessitent l'utilisation de deux lasers dont les fréquences de répétition sont légèrement décalées. Ces bancs s'affranchissent des inconvénients qui ont pour origine l'utilisation d'un élément mécanique pour générer le retard pompe-sonde.

La figure 1.2 illustre le principe de fonctionnement d'un banc hétérodyne : les deux trains d'impulsion pompe et sonde, issus de lasers différents, sont combinés (OR) avant d'être focalisés sur l'échantillon étudié par lequel ils sont réfléchis puis dirigés vers le photodétecteur à l'aide d'une optique adaptée (OP)³. La réjection du signal pompe diffusé par l'échantillon (ORe) peut être faite soit à l'aide de polariseurs si les polarisations des faisceaux ont été maintenues croisées, soit à l'aide d'un filtre interférométrique si les longueurs d'onde de la pompe et de la sonde sont assez séparées.

La différence Δf , appelée fréquence de battement, entre la fréquence de répétition des trains sonde f_{sonde} et pompe $f_{sonde} + \Delta f$, retarde de plus en plus les impulsions sonde par rapport aux impulsions pompe comme l'illustre la figure 1.3. A chaque excitation pompe, le retard pompe-sonde s'incrémente de la quantité δ_{het} dont la valeur est donnée par la relation :

3. De façon générale, cette optique est soit un cube polarisant, soit une lame de dichroïque.

$$\delta_{\text{het}} = T_{\text{sonde}} - T_{\text{pompe}} , \quad (1.2)$$

où T_{sonde} et T_{pompe} sont respectivement les périodes des lasers sonde et pompe. δ_{het} peut aussi s'exprimer en fonction de f_{sonde} et Δf à l'aide de la formule :

$$\delta_{\text{het}} = \frac{\Delta f}{f_{\text{sonde}}(f_{\text{sonde}} + \Delta f)} . \quad (1.3)$$

Le retard augmente jusqu'à ce que les impulsions pompe et sonde arrivent de nouveau au même instant sur l'échantillon (traits pointillés en gras sur la figure). Ce moment précis est appelé coïncidence. Le temps entre deux coïncidences est le temps qu'il faut à la sonde pour parcourir tous les retards pompe-sonde. Ce temps est appelé période de battement et sa valeur est donnée par l'inverse de la fréquence de battement Δf . Le signal transitoire obtenu en étudiant la variation de l'intensité de sonde collectée par le photodétecteur pendant une période de battement correspond alors à la réponse de l'échantillon dilatée dans le temps. Cette dilatation de l'échelle des temps s'apparente à l'effet stroboscopique, observable à l'échelle macroscopique, et qui, sous certaines conditions, permet de figer ou de ralentir des mouvements de nature périodique.

La relation qui lie l'échelle temporelle du temps dilaté $T_{\text{dilaté}}$, qui correspond à l'échelle temporelle des acquisitions, et l'échelle du temps physique T_{physique} , qui correspond à la véritable dynamique de l'échantillon, est :

$$T_{\text{physique}} = T_{\text{dilaté}} \frac{\Delta f}{f_{\text{pompe}}} . \quad (1.4)$$

Il semble important de souligner ici que deux retards peuvent être définis :

- Le premier dans le temps dilaté, ΔT_{het} , correspond à la durée qui sépare la coïncidence et le moment où la valeur de réflectivité de la sonde est lue.
- Le second dans le temps physique, δT_{het} , correspond à la durée qu'il y a entre la sonde et l'excitation pompe qui la précède.

Au final, les expériences hétérodynes sont environ 10 à 100 fois plus rapides que les expériences homodynes pour acquérir des signaux présentant les mêmes niveaux de bruit [13].

L'utilisation de deux lasers synchronisés à deux fréquences de répétition légèrement différentes nécessite la mise en œuvre d'une électronique complexe d'asservissement. Le but de cette dernière est de diminuer la valeur moyenne des fluctuations de Δf responsables d'un décalage aléatoire des impulsions sonde par rapport aux impulsions pompe, ce décalage induisant une dégradation de la résolution temporelle du banc. Une étude plus approfondie et une quantification de ces fluctuations seront présentées dans la partie 1.3.

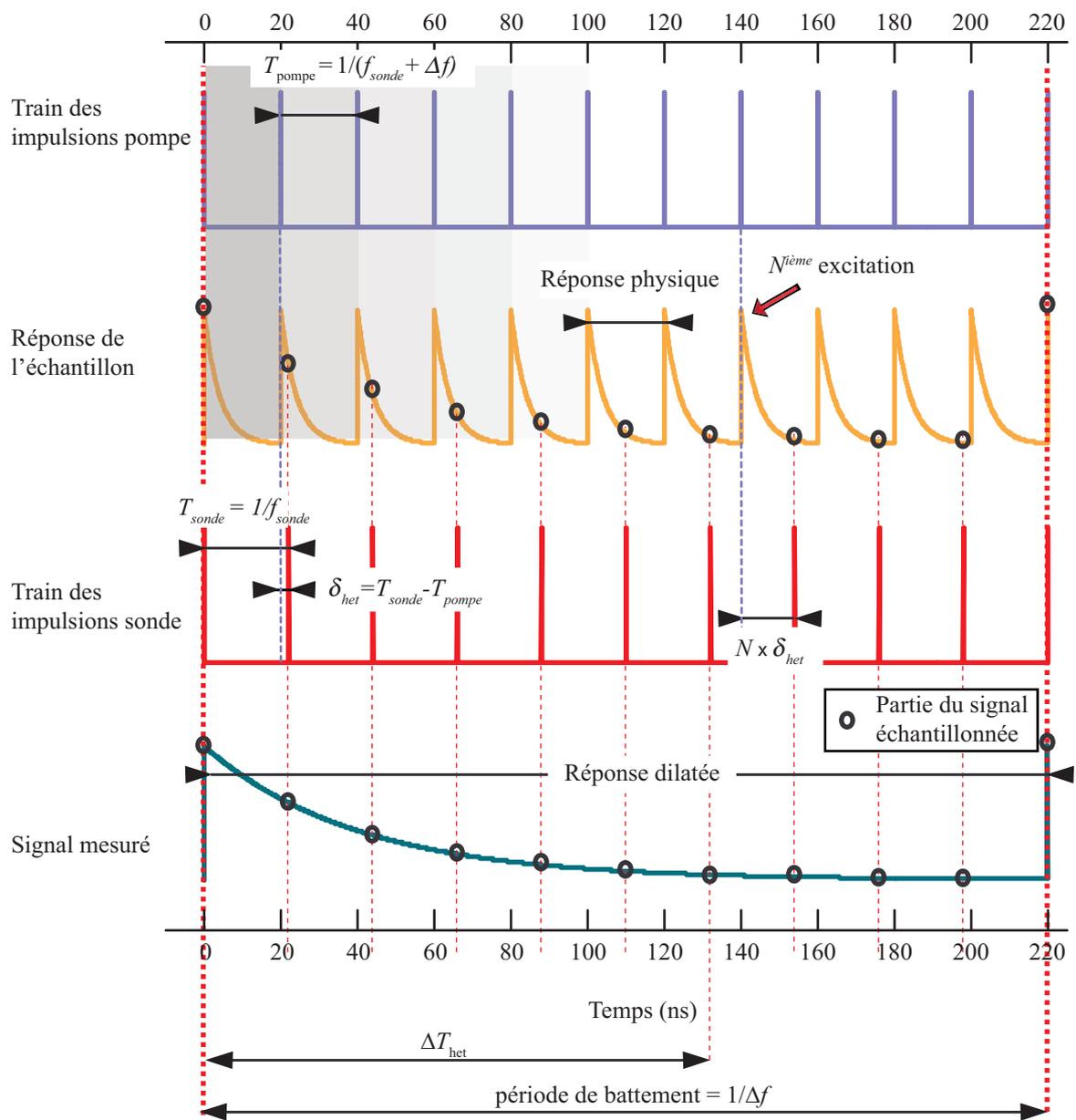


FIGURE 1.3: Principe de l'échantillonnage hétérodyne : le battement de fréquence Δf permet au retard pompe-sonde de s'incrémenter de la quantité δ_{het} à chaque excitation de l'échantillon. Le signal obtenu en mesurant les variations de réflectivité de la sonde correspond à la dynamique de l'échantillon dilatée dans le temps.

1.2 Les sources

1.2.1 Présentation générale des sources

La double source t-Pulse Duo utilisée pour réaliser le banc hétérodyne a été développée par la société Amplitude-Systèmes. La première étape de la thèse a consisté à assembler et à optimiser cette source pour l'application visée.

Le t-Pulse Duo est constitué de deux cavités placées dans le même boîtier pour un gain de place mais aussi pour diminuer passivement leurs fluctuations de fréquences relatives comme il sera vu dans la partie 1.3. Les deux cavités, à la géométrie identique, possèdent le même milieu amplificateur Yb:KYW émettant dans le proche infrarouge (1030 nm). Le pompage des cavités se fait par des diodes à 975 nm refroidies à l'eau. Cette méthode de génération permet d'avoir des sources femtosecondes relativement compactes. Elle est rendue possible d'une part grâce au rendement très élevé du milieu amplificateur [14] et d'autre part grâce à l'apparition de diodes assez performantes dans les années 80-90 [15]. Les fréquences de répétition des deux cavités laser sont voisines de 47.77 MHz, ce qui correspond à une période d'environ 21 ns. Le verrouillage de modes, ou mode-locking, est assuré par des miroirs à absorbant saturable semi-conducteur (SESAM). La dispersion de la phase de l'impulsion intracavité est compensée à l'aide de miroirs GTI (Gires-Tournois Interferometer) : ces miroirs à dispersion de phase négative compensent les dispersions positives induites par les optiques présentes dans la cavité.

Le battement de fréquence des deux cavités Δf est stabilisé grâce à un asservissement sur les longueurs L de celles-ci. En effet, le taux de répétition est donné par la relation :

$$f = \frac{c}{2L}, \quad (1.5)$$

où c est la célérité de la lumière dans la cavité.

La maîtrise de la longueur d'une cavité laser permet donc d'avoir le contrôle de son taux de répétition. Il a été choisi durant la phase de recherche d'asservir la fréquence de répétition $f + \Delta f$ d'une des deux cavités (la cavité esclave) à la fréquence de répétition f d'une cavité libre (la cavité maître). Pour ce faire, deux miroirs de la cavité esclave sont mobiles : celui de fond de cavité, placé sur une platine de translation actionnée par un servomoteur à courant continu, et un autre miroir, collé sur un cristal piézoélectrique. Le miroir mobile de fond de cavité permet de modifier grossièrement la longueur de la cavité de façon à ce que la fréquence de répétition de celle-ci soit voisine de $f + \Delta f$ à une dizaine de Hertz près. Le miroir monté sur le cristal piézoélectrique permet quant à lui d'asservir finement la cavité à la fréquence $f + \Delta f$.

1.2.2 Caractéristiques optiques des cavités laser

1.2.2.1 Durée des impulsions

Trois phénomènes peuvent être à l'origine de la chute de la résolution temporelle d'un banc pompe-sonde hétérodyne. La première est la bande passante du photo-détecteur utilisé. La seconde est la fluctuation relative de la fréquence de répétition du train d'impulsions sonde par rapport au train d'impulsions pompe. La troisième est la durée des impulsions pompe et sonde employées. Ces deux dernières causes dépendent respectivement (i) des performances de l'électronique d'asservissement utilisée pour générer et contrôler le battement de fréquence Δf et (ii) des propriétés optiques des cavités lasers. Les durées des impulsions sont mesurées à l'aide d'un autocorrélateur commercial (APE) et sont de 330 fs et de 430 fs respectivement pour la sonde et la pompe. La fluctuation relative des deux trains de répétition sera quant à elle quantifiée dans la section 1.4.

1.2.2.2 Séparation des longueurs d'ondes centrales des cavités esclave et maître

1.2.2.2.1 Principe de séparation

Si aucune précaution n'est prise, le faisceau pompe réfléchi par l'échantillon est aussi collecté par la photodiode de mesure. Il faut donc mettre en place une stratégie de réjection du faisceau pompe. Trois méthodes peuvent être employées :

- Une réjection en utilisant des polariseurs : pour ce faire, il faut s'assurer de maintenir les polarisations des faisceaux pompe et sonde croisées après leur réflexion sur l'échantillon.
- Une réjection spatiale en faisant arriver les impulsions pompes sur l'échantillon avec un angle d'incidence de sorte qu'après leur réflexion elles ne soient pas orientées vers le photo-détecteur.
- Une réjection en utilisant des filtres interférentiels : dans ce cas les impulsions pompe et sonde doivent avoir des longueurs d'onde différentes.

Dans le cas du montage expérimental développé pendant cette thèse, c'est la troisième méthode qui a été retenue car elle permet de rejeter la pompe même si l'échantillon a un effet dépolarisant sans avoir à se soucier de l'influence de l'angle d'incidence de la pompe sur les effets générés. Il a donc fallu séparer les longueurs d'onde des deux cavités. Cela a été possible en y introduisant des pertes localisées dans différentes régions du spectre d'émission de chacune d'elles comme l'illustre la figure 1.4. Au final, la cavité esclave a un spectre centré sur 1042 nm alors que celui de la cavité maître est centré à 1028 nm. Les caractéristiques des bandes passantes des filtres dichroïques utilisés permettent en théorie de rejeter plus de 97% de l'éventuel signal pompe diffusé.

1.2.2.2.2 Influence sur l'énergie et la durée des impulsions

La figure 1.4 illustre le principe de séparation en longueur d'onde des cavités et comment la méthode a été mise en œuvre dans la source dont il est ici question : le pic d'émission

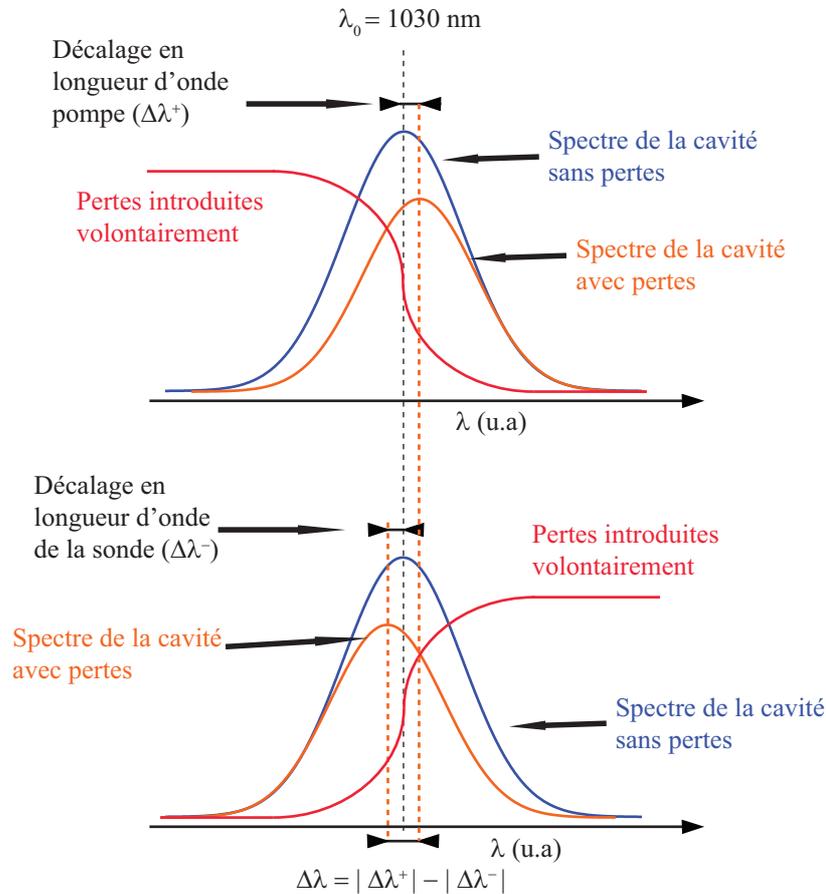


FIGURE 1.4: Le décalage de la longueur d'onde du pic d'émission de la cavité esclave se fait grâce à l'introduction de pertes localisées dans la région de son spectre d'émission contenant les petites longueurs d'onde. L'introduction de ces pertes induit une augmentation $\Delta\lambda^+ = 12 \text{ nm}$ de la longueur d'onde nominale de la cavité esclave. Des pertes dissymétriques sont ensuite introduites dans la cavité maître qui voit sa longueur d'onde centrale chuter de $\Delta\lambda^- = 3 \text{ nm}$. La séparation en longueur d'onde totale des deux cavités est alors de $\Delta\lambda = 15 \text{ nm}$.

de la cavité esclave est décalé de 12 nm vers les grandes longueurs d'onde alors que celui de la cavité maître est décalé de 3 nm vers les petites longueurs d'onde. Le décalage total en longueur d'onde des deux cavités est donc de 15 nm. Ce décalage, qui se fait en introduisant des pertes intracavités, n'est pas sans conséquences sur deux des principales caractéristiques des sources :

- La première concerne l'énergie intracavité qui chute, entraînant une diminution de l'énergie des impulsions générées par les lasers.
- La seconde est la durée des impulsions. L'introduction des pertes a pour effet d'affiner le spectre d'émission de la cavité et donc d'élargir temporellement les impulsions.

Dans le cas de la cavité centrée à 1042 nm par exemple (train esclave), l'énergie par impulsion a chuté de 50% suite au décalage en longueur d'onde et la durée des impulsions est passée de 250 fs à 430 fs.

1.2.2.3 Profil transverse et astigmatisme

Lors d'une expérience pompe-sonde, il faut être en mesure de focaliser à l'aide d'un même objectif de microscope les impulsions pompe et sonde de façon à maximiser leurs fluences électromagnétiques sur l'échantillon, ce qui a pour effet de maximiser l'amplitude des phénomènes générés. Pour ce faire, dans un banc hétérodyne, il faut que les deux profils transverses $w(z)$ des faisceaux lasers le long de leur direction de propagation z soient similaires.

La largeur du profil $w(z)$ d'un faisceau gaussien le long de sa direction de propagation z est reliée à la largeur de son waist (rayon de pincement) w_0 par la relation [16] :

$$w(z) = w_0^2 + M^2 \left(\frac{\lambda}{\pi w_0} \right)^2 (z - z_0)^2, \quad (1.6)$$

où z_0 est la position du waist, M le facteur de qualité et λ la longueur d'onde optique centrale du faisceau considéré.

La figure 1.5 illustre le profil spatial d'un faisceau en fonction des différents paramètres qui lui sont intrinsèques. Dans le cas général, les valeurs des paramètres w_0 , M et z_0 diffèrent selon la direction considérée dans le plan xOy . Afin de définir complètement l'évolution du profil d'un faisceau gaussien, il est nécessaire de le caractériser selon deux directions orthogonales (x et y sur la figure 1.5) à l'aide d'un jeu de six paramètres [17] : w_{0x} , w_{0y} , M_x , M_y , z_{0x} et z_{0y} qui sont respectivement le rayon du waist dans la direction x , celui dans la direction y , les facteurs de qualité gaussiens selon les directions x et y et enfin les positions des waists dans les directions x et y considérées. L'évolution du profil est donnée par :

$$w_x(z) = w_{0x}^2 + M_x^2 \left(\frac{\lambda}{\pi w_{0x}} \right)^2 (z - z_{0x})^2, \quad (1.7)$$

$$w_y(z) = w_{0y}^2 + M_y^2 \left(\frac{\lambda}{\pi w_{0y}} \right)^2 (z - z_{0y})^2. \quad (1.8)$$

En complément de ces paramètres primaires, les longueurs des zones de Rayleigh peuvent aussi être données. Elles sont définies comme étant les longueurs qui séparent la position du waist de la position où le rayon du faisceau vaut $\sqrt{2}$ fois son waist.

Les positions des waists selon les directions x et y ne sont pas nécessairement confondues : ce phénomène porte le nom d'astigmatisme. Si l'astigmatisme d'un faisceau est trop important, un système optique ne pourra pas focaliser un faisceau gaussien selon les directions

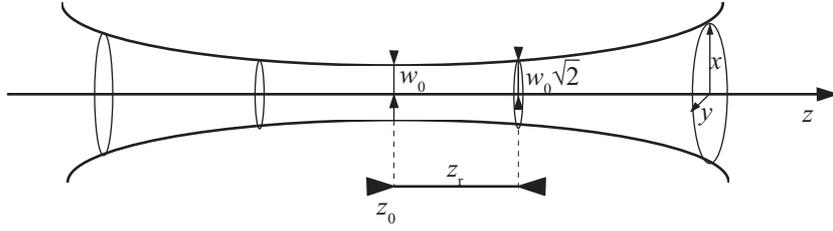


FIGURE 1.5: Evolution du profil d'un faisceau gaussien le long de sa direction de propagation. w_0 : rayon de pincement, z_0 : position du waist, z_r : zone de Rayleigh.

x et y dans le même plan. Pour quantifier la valeur de l'astigmatisme, il faut être en mesure de mesurer l'évolution du profil transverse du faisceau laser considéré. Pour ce faire, un système commercial est utilisé. Ce système comprend une caméra et une lentille montée sur une platine motorisée dont l'axe de translation est confondu avec la direction de propagation du faisceau. La distribution de l'intensité du champ électrique dans le plan $(x0y)$ est alors enregistrée pour différentes distances entre la lentille et la caméra. Les mesures doivent être effectuées dans des configurations où les distances qui séparent les waists du faisceau de la lentille de mesure sont grandes devant la distance focale de la lentille. Cette dernière valeur est voisine de la distance lentille-caméra. Dans ce cas, ce sont les images des distributions de l'intensité du champ électrique transverse au voisinage du waist qui sont enregistrées par la caméra. L'enregistrement de ces distributions en fonction de la position relative de la lentille à la caméra permet de déterminer le profil du faisceau après la lentille. Le tout est géré par un logiciel qui détermine ensuite la valeur des six paramètres précédemment exposés associés au profil transverse des faisceaux lasers. La courbe 1.6 montre l'évolution du profil de l'intensité du champ électrique du faisceau gaussien lorsque la méthode décrite précédemment est réalisée avec une lentille de focale 100 mm. La valeur de l'astigmatisme a est alors calculée à l'aide des paramètres du faisceau en utilisant la formule :

$$a = 2 \frac{z_{0x} - z_{0y}}{z_{ry} + z_{rx}}, \quad (1.9)$$

où z_{ry} et z_{rx} sont les longueurs des zones de Rayleigh respectivement dans les directions x et y .

Dans le cas présent, la valeur de l'astigmatisme mesurée est de 0.01 pour la cavité esclave et de 0.22 pour la cavité maître. Lors d'expériences pompe-sonde, l'astigmatisme se manifestera, par l'ellipticité marquée de la zone de l'échantillon éclairée par le laser maître lors de sa focalisation optimale suivant l'un des axes optiques x ou y précédemment définis. Ce défaut pourra être minimisé en défocalisant légèrement l'objectif de microscope entre les deux points de focalisation extrêmes au détriment d'une diminution de la fluence.

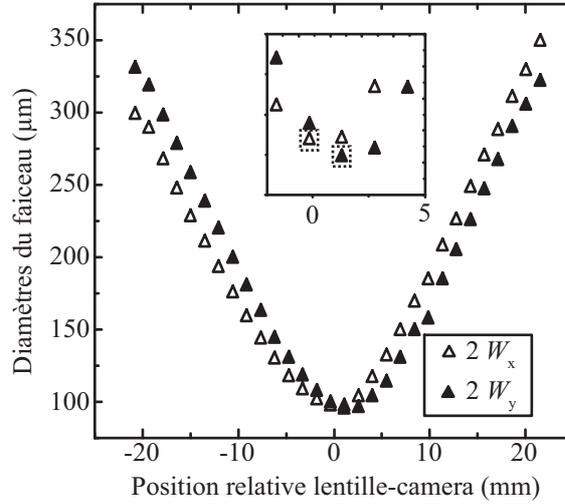


FIGURE 1.6: Evolution du profil des faisceaux selon la direction x et la direction y (laser maître). En insert les minima de chaque profil sont encadrés en pointillé.

1.3 Synchronisation des sources

1.3.1 Nécessité de synchronisation

Une quelconque instabilité de la valeur de Δf a pour conséquence un défaut quant au positionnement temporel relatif des impulsions pompe et sonde et par conséquent une incertitude sur la valeur du retard pompe-sonde considéré. Ce phénomène est illustré de façon accentuée sur la figure 1.7. La fluctuation de la fréquence de battement, définie ici comme étant la gigue, a pour origine les variations décorréélées des taux de répétition des deux cavités lasers servant à générer les trains d'impulsions pompe et sonde.

Les phénomènes physiques qui en sont responsables peuvent être d'origine mécanique (dilatations thermiques des cavités ou vibrations des miroirs induisant une variation des longueurs des cavités), ou d'origine optique (défauts de recombinaison des porteurs de charges dans les SESAM, fluctuations du gain dans les milieux amplificateurs, indices de réfraction des éléments optiques des cavités perturbés par les fluctuations de puissance intracavité...)[18].

Afin d'être en mesure de sommer les acquisitions pour augmenter le rapport S/B, un signal de synchronisation est généré à chaque coïncidence (se référer à la partie 2.2.2) pour que les acquisitions aient une référence temporelle commune. Les fluctuations du battement de fréquence dans le temps engendrent un défaut de positionnement temporel des points sommés situés entre deux coïncidences. Ce défaut de positionnement, dont la valeur moyenne augmente avec le retard pompe-sonde, a pour effet de lisser temporellement la dynamique du signal transitoire final. Il est donc responsable d'une dégradation de la bande passante du

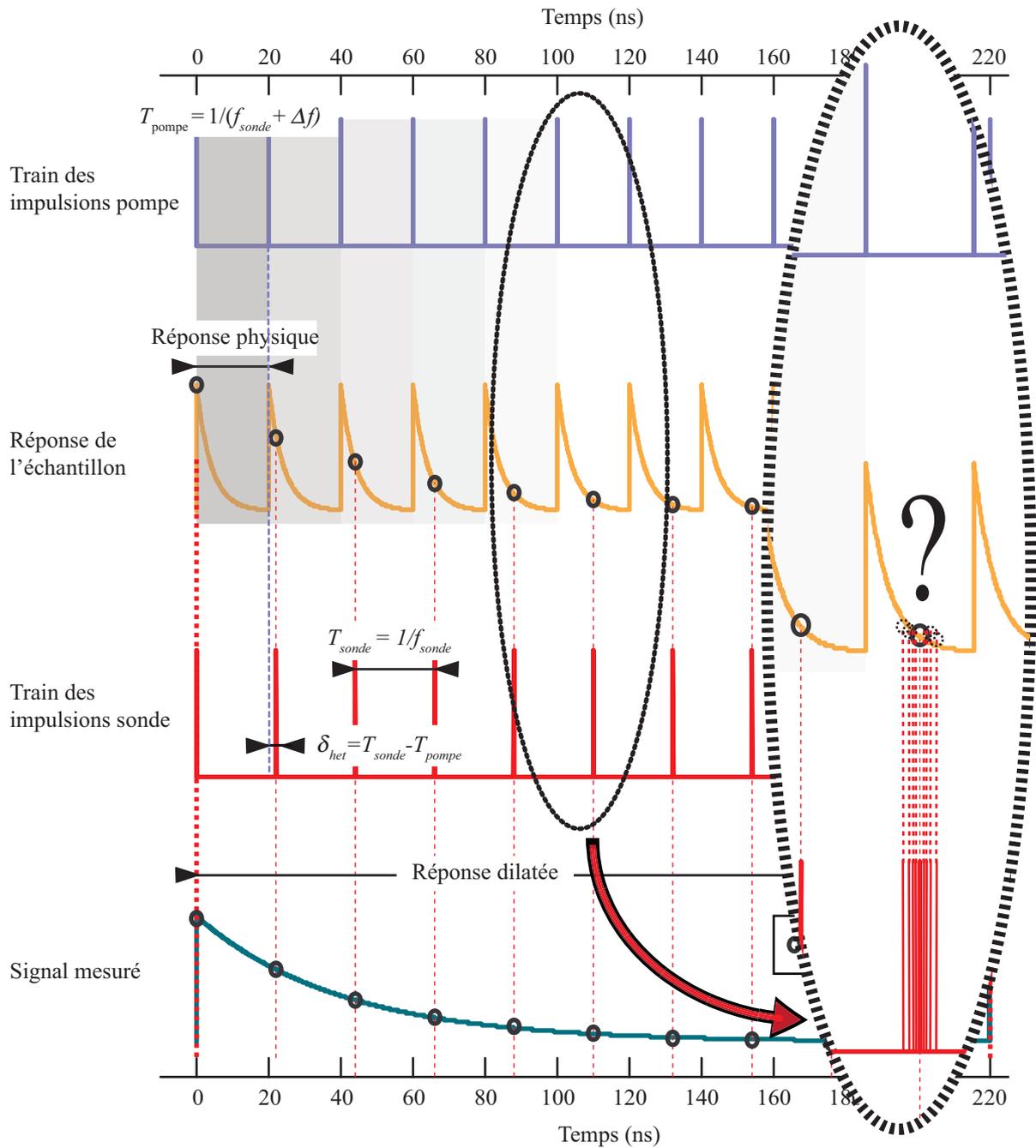


FIGURE 1.7: Illustration de la gigue : la fluctuation de la valeur du battement de fréquence crée une erreur de positionnement relative du train sonde par rapport au train pompe. Cette erreur relative est à l'origine de la chute de la bande passante du banc.

banc de mesure (se référer à la partie 1.4.1.2). En raison du caractère cumulatif de la gigue, cette dégradation est accentuée pour les grands retards pompe-sonde. La mise en place d'un système qui minimise la gigue est donc nécessaire pour optimiser la résolution temporelle

des signaux.

1.3.2 Asservissement et génération du battement de fréquence

Afin de limiter la gigue, un système électronique d'asservissement en fréquence (SEAF) est mis en place entre les deux cavités lasers qui composent le système. La partie qui suit a pour but de présenter le mécanisme de cet asservissement dont la qualité va directement déterminer la résolution temporelle du banc final, comme il sera vu dans la partie 1.4.

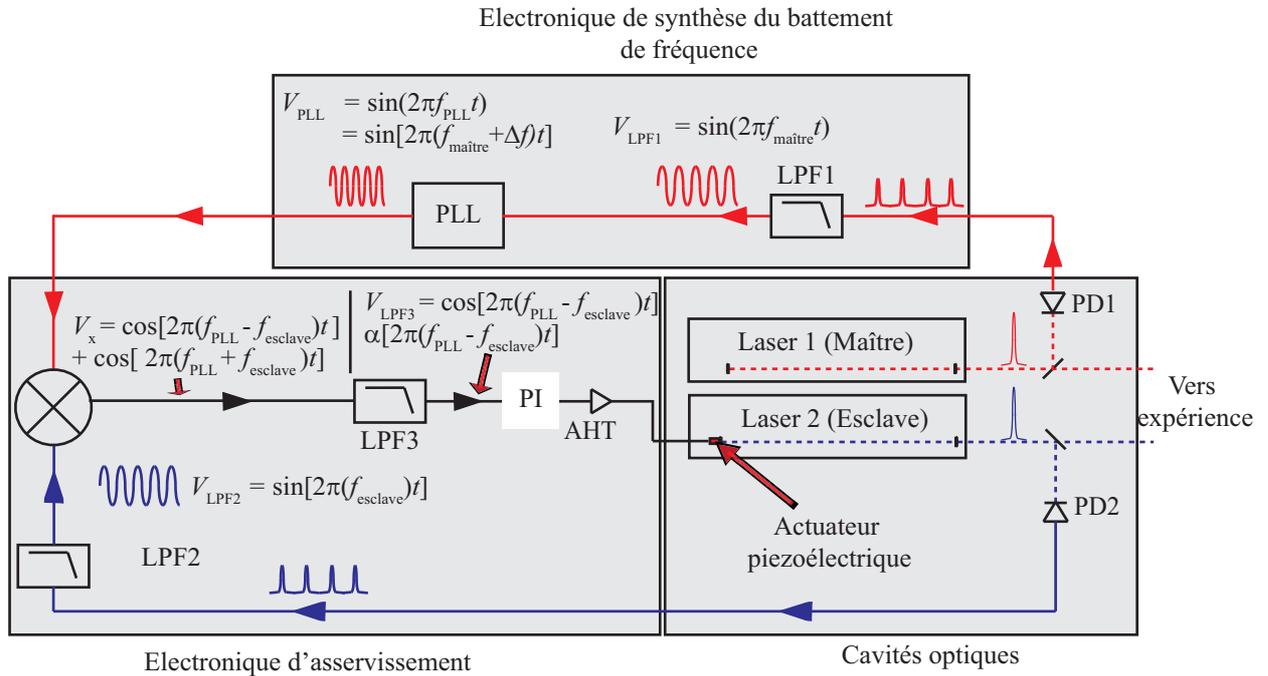


FIGURE 1.8: Principe d'asservissement en fréquence des deux cavités lasers : la fréquence de chaque cavité est mesurée à l'aide de circuits associant photodiodes rapides et filtres passe-bas. Une PLL permet ensuite de synthétiser une fréquence voisine de celle du laser maître. Un système composé d'un comparateur de phase et d'un circuit d'asservissement contrôle la longueur de la cavité esclave pour que sa fréquence de répétition soit égale à la fréquence du signal généré par la PLL. PD : photodiode, LPF : filtre passe-bas, PLL : boucle à verrouillage de phase, PI : correcteur proportionnel/intégral, AHT : amplificateur haute tension.

Le schéma de principe du SEAF est décrit sur la figure 1.8. Il permet d'asservir le taux de répétition d'une cavité, la cavité esclave, à une seconde cavité, la cavité maître, qui elle reste libre. Pour ce faire, une fraction de chaque train d'impulsion est prélevée et convertie en un signal électrique à l'aide de deux photodiodes rapides PD1 et PD2 de bande passante de 10 GHz. Des filtres passe-bas (LPF1 et LPF2) permettent d'extraire les fréquences fondamentales de ces signaux. Ces fréquences correspondent aux fréquences de répétition respectives de la cavité maître $f_{\text{maître}}$ et de la cavité esclave f_{esclave} . A partir de la fréquence de la

cavité maître, une fréquence $f_{\text{maître}} + \Delta f$ est synthétisée à l'aide d'une boucle à verrouillage de phase (PLL). Deux signaux sinusoidaux résultent de ces opérations : V_{LPF2} et V_{PLL} . Ces signaux sinusoidaux, qui ont pour phase instantanée $\phi_{\text{PLL}} = 2\pi f_{\text{PLL}}t$ et $\phi_{\text{esclave}} = 2\pi f_{\text{esclave}}t$ sont alors multipliés. Le résultat V_x de cette multiplication est donné par :

$$V_x = \overbrace{\sin(\phi_{\text{PLL}})}^{V_{\text{PLL}}} \overbrace{\sin(\phi_{\text{esclave}})}^{V_{\text{LPF2}}} \quad (1.10)$$

$$= \frac{1}{2} \left[\cos(\phi_{\text{PLL}} - \phi_{\text{esclave}}) - \cos(\phi_{\text{PLL}} + \phi_{\text{esclave}}) \right] . \quad (1.11)$$

Un filtre passe-bas (LPF3) est utilisé afin de ne conserver que la composante basse fréquence de V_x dont la phase instantanée est ϕ_{LPF3} :

$$V_{\text{LPF3}} = \frac{1}{2} \cos(\phi_{\text{PLL}} - \phi_{\text{esclave}}) \quad (1.12)$$

$$= \frac{1}{2} \cos(\phi_{\text{LPF3}}) . \quad (1.13)$$

Si les fréquences des deux signaux issus de la PLL et du filtre passe-bas LPF2 sont différentes, leur différence de phase évolue jusqu'à ce qu'elle soit proche de $\frac{\pi}{2}$ (étape d'accroche). Au voisinage de ce point de fonctionnement une approximation du premier ordre permet d'établir la relation :

$$V_{\text{LPF3}} \sim \frac{1}{2} \left(-\phi_{\text{LPF3}} + \frac{\pi}{2} \right) \quad (1.14)$$

$$\sim \frac{1}{2} \left(\phi_{\text{esclave}} - \phi_{\text{PLL}} - \frac{\pi}{2} \right) . \quad (1.15)$$

Il en résulte que lorsque la différence entre les phases ϕ_{PLL} et ϕ_{esclave} est proche de $\frac{\pi}{2}$,⁴ la variation d'amplitude en sortie du filtre LPF3 est proportionnelle à $-\phi_{\text{LPF3}}$. Ce signal est alors amplifié puis intégré à l'aide d'un circuit proportionnel/intégral, puis réamplifié à l'aide d'un amplificateur haute tension (AHT) afin de commander une cale piézoélectrique sur laquelle un miroir de la cavité esclave est fixé. Ce dernier élément contrôle la longueur de la cavité afin de satisfaire la condition d'asservissement :

$$\phi_{\text{PLL}} - \phi_{\text{esclave}} = \frac{\pi}{2} . \quad (1.16)$$

Or pour que cette condition reste vraie pour tous les temps, il faut que les fréquences des signaux, qui sont les dérivées temporelles des phases, satisfassent la relation :

$$f_{\text{PLL}} = f_{\text{esclave}} . \quad (1.17)$$

4. Point de fonctionnement de la PLL.

Par conséquent, en remplaçant f_{PLL} par $f_{\text{maître}} + \Delta f$, la condition d'asservissement est donnée par :

$$f_{\text{maître}} + \Delta f = f_{\text{esclave}} . \quad (1.18)$$

Il a donc été choisi, lors de la phase d'étude du t-pulse Duo, d'utiliser la fréquence fondamentale du train d'impulsion afin de réaliser l'asservissement. Cette stratégie peut dans un premier temps paraître discutable. D'autres équipes, se référant aux travaux de von der Linde [19], ont préféré mettre en place un asservissement sur les harmoniques d'ordres supérieurs. En effet, von der Linde a montré que le bruit dû aux fluctuations du taux de répétition se répercute principalement sur les harmoniques d'ordres élevés, les premières harmoniques contenant surtout une information sur les fluctuations d'amplitude des sources. Afin que le bruit dû à ces fluctuations d'amplitude se répercute le moins possible sur l'asservissement fréquentiel, il faut donc utiliser les harmoniques d'ordres élevés. De ce fait, l'équipe de Dekorsy de l'université de Konstanz, bien qu'elle ait commencé à développer des systèmes d'asservissement sur la fondamentale [20], a préféré par la suite asservir ses systèmes sur des harmoniques de plus en plus élevées : d'abord sur la 3^{ème} [21] puis sur la 10^{ème} [22]. L'équipe de Dae-Su Yee a aussi opté pour un système d'asservissement sur la 10^{ème} harmonique [23]. L'équipe de J.Ye de l'université du Colorado a quant à elle mis au point des systèmes d'asservissement plus complexes faisant appel à quatre PLL et utilisant la 80^{ème} [11] puis la 140^{ème} harmonique [24].

L'inconvénient des asservissements haute fréquence est qu'ils nécessitent de mettre en œuvre des circuits électroniques qui prennent en compte des capacités parasites éventuelles et qui sont très sensibles aux bruits magnétiques extérieurs. La sensibilité à ces paramètres est moindre dans le cas d'un asservissement sur la fondamentale du taux de répétition. L'utilisation du SEAF présenté ici est donc rendue possible dans des environnements électromagnétiques hostiles (salle de manipulation avec plusieurs appareillages, utilisation dans des accélérateurs d'électrons . . .). De plus, l'analyse des performances du système en partie 1.4 démontrera que l'utilisation de la fréquence fondamentale à des fins d'asservissement ne constitue pas un frein en vue de l'application visée.

1.3.3 La boucle à verrouillage de phase

Cette section a pour but de présenter la boucle à verrouillage de phase ou PLL, élément électronique crucial responsable de la synthèse du battement de fréquence.

1.3.3.1 Principe d'une PLL synthétiseur de fréquences

Une boucle à verrouillage de phase (PLL) est un composant électronique qui permet d'asservir la phase d'un oscillateur local à celle d'un oscillateur de référence. Associée à des diviseurs de fréquence, une PLL peut alors synthétiser des fréquences avec une grande

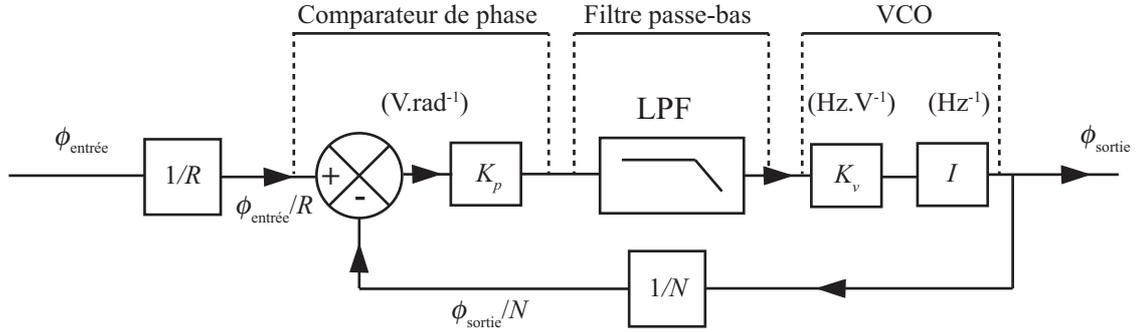


FIGURE 1.9: Schéma de principe d'une PLL en grandeur de phase : cet élément permet d'asservir la phase instantanée du signal de sortie de ce composant ϕ_{sortie} à la phase instantanée d'un signal d'entrée $\phi_{\text{entrée}}$. L'introduction de diviseurs de fréquence permet de sélectionner la fréquence du signal en sortie. K_p : gain proportionnel, LPF : filtre passe-bas, VCO : oscillateur contrôlé en tension, K_v : gain du VCO, I : intégrateur. Les unités des constantes de chacun des blocs sont indiquées entre parenthèses.

résolution.

Le schéma linéaire de principe d'une PLL en grandeur de phase est représenté sur la figure 1.9. Dans ce composant électronique, deux quantités sont à considérer : la phase du signal de sortie ϕ_{sortie} et celle du signal d'entrée $\phi_{\text{entrée}}$. Ces deux phases sont respectivement divisées par N et R , deux entiers naturels⁵. Un comparateur de phase, dont l'unité de la constante d'amplification K_p est donnée en V/rad , permet d'obtenir un signal dont l'amplitude est proportionnelle à la différence :

$$-\delta\phi = \frac{\phi_{\text{entrée}}}{R} - \frac{\phi_{\text{sortie}}}{N} - \frac{\pi}{2}. \quad (1.19)$$

Ce signal passe ensuite par un filtre passe bas LPF avant de servir de signal de commande à un oscillateur commandé en tension (VCO). Un VCO est un composant électronique dont la fréquence de sortie est proportionnelle à la tension qui lui est appliquée (donc dont la constante multiplicative est donnée en Hz/V). Ce composant modifie sa fréquence de telle façon à garder orthogonales les phases à l'entrée du comparateur de phase :

$$\frac{\phi_{\text{sortie}}}{N} = \frac{\phi_{\text{entrée}}}{R} - \frac{\pi}{2} \quad (1.20)$$

La fréquence d'un signal étant définie comme la dérivée temporelle de la phase, pour que la relation précédente soit vérifiée pour tous les temps, il faut que :

$$\frac{f_{\text{sortie}}}{N} = \frac{f_{\text{entrée}}}{R}. \quad (1.21)$$

5. Dans le domaine électronique, ce sont les fréquences des signaux qui sont en réalité divisées à l'aide de diviseurs de fréquence.

Dans le schéma d'asservissement général, présenté sur la figure 1.8, $f_{\text{sortie}} = f_{\text{PLL}} = f_{\text{maître}} + \Delta f$ et $f_{\text{entrée}} = f_{\text{maître}}$. Il vient en remplaçant :

$$\Delta f = \left(\frac{N}{R} - 1 \right) f_{\text{maître}} . \quad (1.22)$$

Une valeur de N trop élevée génère en sortie de la PLL un signal trop bruité [25]. Les valeurs de N et de P des PLLs disponibles dans le commerce sont donc rarement codées sur plus de 8 bits. Pour la PLL utilisée dans le cadre de ce travail, N et R sont codés sur 6 bits. Cela veut dire que le battement de fréquence le plus fin qu'il serait possible de générer si la PLL était de type classique serait de 750 kHz⁶. Or, dans une expérience hétérodyne où les impulsions pompe sont cadencées à 47.7 MHz, cette valeur de Δf serait trop grande et ne permettrait pas d'atteindre la résolution temporelle nécessaire à l'observation de phénomènes dont l'étude est ici visée : en effet, l'équation (1.2) montre que la résolution temporelle avec ce battement de fréquence serait de 0.3 ns, ce qui limiterait la bande passante théorique, d'après le théorème de Shannon, à environ 6 GHz. Cette bande passante ne serait pas suffisante pour répondre aux besoins de l'acoustique picoseconde qui nécessite la génération et la détection de signaux dont la gamme spectrale peut facilement dépasser la centaine de gigahertz. Ce qui est souhaité, ce sont des battement de fréquence de l'ordre de la centaine de Hertz pour ce type d'application : ce battement de fréquence autorise une bande passante théorique de plusieurs dizaines de terahertz. C'est pourquoi une PLL de type fractionnaire, qui permet de générer des battements de fréquence plus petits, a été choisie pour synthétiser la fréquence du laser esclave.

1.3.3.2 Principe d'une PLL numérique fractionnaire

Les PLL dites numériques fractionnaires font appel à un accumulateur de phase pour pouvoir générer des canaux fréquentiels très fins. Les deux prochaines parties exposent le principe de fonctionnement d'un accumulateur de phase et l'effet de son association avec une PLL.

1.3.3.2.1 Principe de fonctionnement d'un accumulateur de phase

Un accumulateur de phase, dont le diagramme de fonctionnement est représenté sur la figure 1.10, est un élément électronique dont la sortie bi-états (i.e. qui vaut 0 ou 1) change de valeur à intervalle programmable. Le principe de fonctionnement de ce composant est d'effectuer de façon régulière (l'accumulateur de phase possède sa propre horloge), la soustraction de son état de sortie (donc soit 0, soit 1) à un nombre $\frac{F_{\text{num}}}{F_{\text{den}}}$ défini par l'utilisateur. Le résultat de cette soustraction, appelé erreur de phase ($e\text{Ph}$), est ajouté à un nombre $\Sigma_{e\text{Ph}}$ stocké dans un registre : l'accumulateur. A la suite de cette opération, la valeur de sortie de l'accumulateur de phase passe à 1 si la valeur stockée dans l'accumulateur est plus grande que 1.

6. $\Delta f = f_{\text{maître}} \left(1 - \frac{62}{63} \right)$ avec $f_{\text{maître}} = 47.77 \text{ MHz}$.

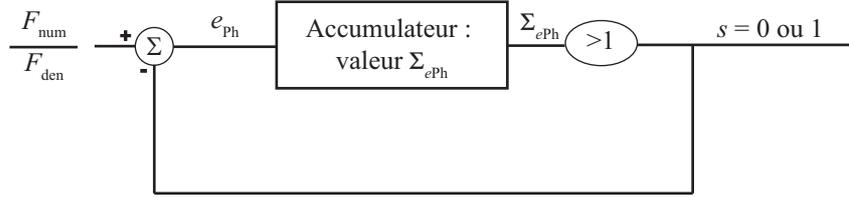


FIGURE 1.10: Principe d'un accumulateur de phase : l'état de sortie s du composant est commandé par la valeur stockée dans l'accumulateur de phase. Si cette dernière est plus grande que 1 l'état s passe à 1, sinon il reste à 0. La valeur stockée dans ce registre est incrémentée à intervalle régulier d'une quantité ePh issue de la soustraction de s à la fraction $\frac{F_{num}}{F_{den}}$ défini par l'utilisateur.

Temps :	0	1	2	3	4	5	6	7	8
ePh :	1/3	1/3	1/3	-2/3	1/3	1/3	-2/3	1/3	1/3
Σ_{ePh} :	1/3	2/3	1	1/3	2/3	1	1/3	2/3	1
Etat de sortie :	0	0	1	0	0	1	0	0	1

TABLE 1.1: Evolution temporelle des différentes variables de l'accumulateur de phase pour $\frac{F_{num}}{F_{den}} = \frac{1}{3}$: l'erreur de phase ePh , qui correspond à la soustraction de l'état de sortie à la valeur de $\frac{F_{num}}{F_{den}}$ est intégrée au cours du temps. Le résultat de cette intégration Σ_{ePh} est stocké dans un registre : l'accumulateur. L'état de sortie passe à 1 si $\Sigma_{ePh} \geq 1$. La valeur initiale de l'état de sortie a été choisie comme étant nulle ici.

Le tableau 1.1 présente l'évolution temporelle des variables d'un accumulateur de phase. Afin d'en illustrer le fonctionnement sur plusieurs périodes, il a été choisi de fixer la valeur $\frac{F_{num}}{F_{den}}$ à $\frac{1}{3}$. Du fonctionnement de cet élément électronique résulte un flux binaire de 0 et de 1 à la sortie du composant. La fréquence d'apparition de la valeur 1 est donnée par $\frac{F_{num}}{F_{den}}$ qui par conséquent est la valeur moyenne de l'état de sortie.

1.3.3.2 Association d'une PLL et d'un accumulateur de phase Comme il a été indiqué précédemment, la valeur du diviseur N d'une PLL ne doit pas être trop grande afin d'éviter que le signal généré ne soit trop bruité. De ce fait les canaux de fréquences synthétisables par une PLL classique sont trop larges pour pouvoir générer des battements de fréquence qui puissent être compatibles avec l'application visée.

L'idée est donc d'associer une PLL à un accumulateur de phase de façon à sommer l'état de sortie de l'accumulateur avec la valeur du diviseur N comme l'illustre la figure 1.11. La valeur moyenne N_{Moy} du numérateur N est alors donnée par :

$$N_{Moy} = N + \frac{F_{num}}{F_{den}} . \quad (1.23)$$

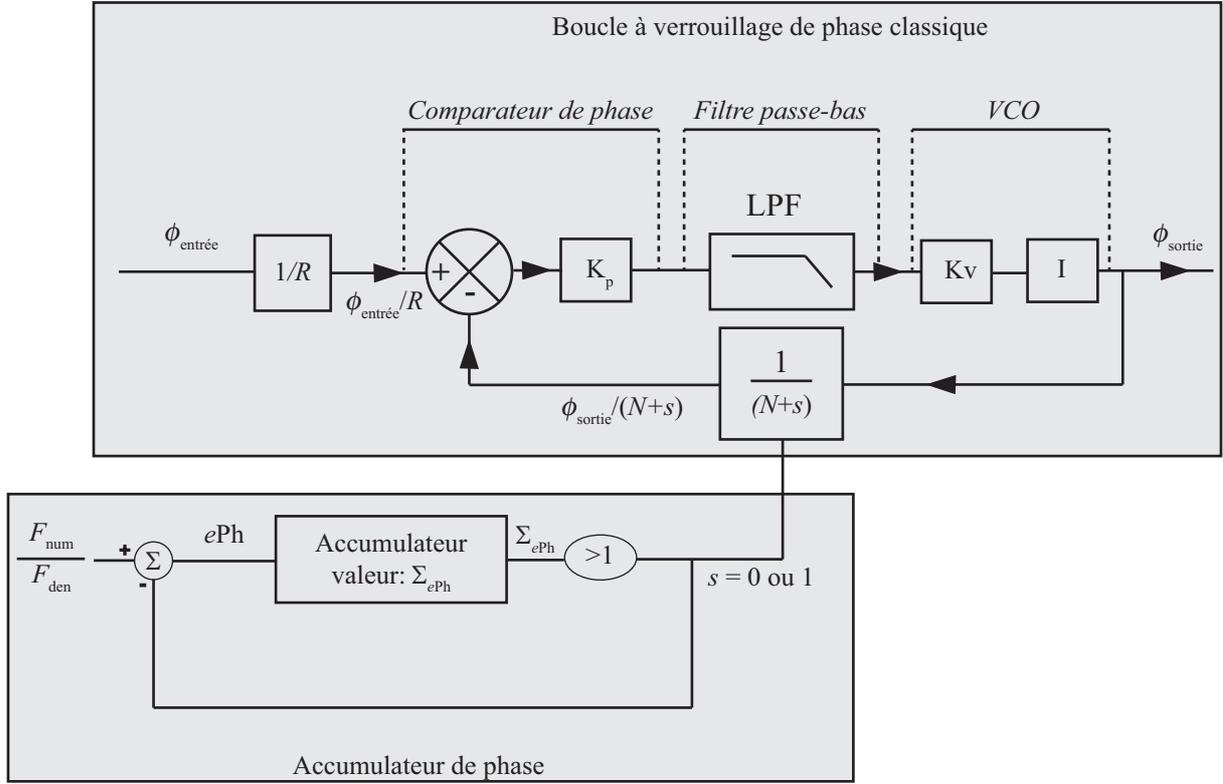


FIGURE 1.11: Schéma de principe d'une PLL fractionnaire numérique : association d'une PLL classique (Fig.1.9) et d'un accumulateur de phase (Fig.1.10).

Il en résulte qu'à sa sortie, le signal de la PLL oscille de façon périodique entre deux fréquences dont la moyenne converge vers $\overline{f_{\text{sortie}}}$:

$$\overline{f_{\text{sortie}}} = \frac{N_{\text{Moy}}}{R} f_{\text{entrée}} . \quad (1.24)$$

Par conséquent la relation 1.22 devient dans le cadre d'une PLL fractionnaire :

$$\Delta f = \left(\frac{N_{\text{Moy}}}{R} - 1 \right) f_{\text{entrée}} = \left(\frac{N + \frac{F_{\text{num}}}{F_{\text{den}}}}{R} - 1 \right) f_{\text{entrée}} . \quad (1.25)$$

La première conséquence de cette association est que les canaux de fréquence synthétisables sont beaucoup plus étroits comme le montre l'équation (1.25) : la PLL choisie dans le cadre de ce travail autorise des valeurs de F_{den} pouvant aller jusqu'à 4194303. Le plus fin battement de fréquence Δf qu'il est désormais possible de générer en utilisant l'accumulateur de phase est plus petit que 1 Hz en théorie, ce qui est largement suffisant pour l'application visée qui demande des canaux de 100 Hz environ.

Cependant, l'étude de la seconde ligne du tableau 1.1 montre que l'erreur de phase est périodique. Cette périodicité est à l'origine, dans le domaine de Fourier, de raies non désirées :

Ordre de modulation	Plage	Séquence
1	0,1	773, 773, 774...
2	-1, 0, 1, 2	772, 774, 771, 773, 775, 774...
3	-3, -2, -1, 0, 1, 2, 3, 4	770, 773, 774, 771, 772, 776, 775, 772, 770, 771, 777, 772...
4	-7, -6, -5, -4, -3, -2, -1, 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8	776, 777, 770, 767, 781, 780, 769, 771, 774, 773, 775, 776, 768, 780, 768, 771, 773, 781, 780, 772, 777, 772, 770, 769

TABLE 1.2: Séquence de génération du nombre $773+1/3$ en fonction de l'ordre de modulation de la PLL d'après [25]. Les ordres de modulations élevés permettent de synthétiser des nombres grâce au parcours de plages plus élevées.

les « spurs ». Ce phénomène se généralise quelque soit la valeur de F_{num} et de F_{den} . Ces raies dégradent les performances de l'asservissement. Deux méthodes numériques sont mises en œuvre pour minimiser l'amplitude de ces raies :

- L'emploi d'un accumulateur de phase d'ordre élevé : l'ordre de modulation d'une PLL fractionnaire, à ne pas confondre avec l'ordre de la PLL qui correspond au nombre de pôles que possède la fonction de transfert de son filtre, correspond à l'amplitude des valeurs que l'on autorise à l'état de sortie de l'accumulateur de phase. Celui présenté figure 1.10 est d'ordre 1. Son état de sortie ne peut être que 0 ou 1. Un accumulateur d'ordre n peut quant à lui prendre 2^n valeurs. La PLL utilisée a un ordre de modulation 4, c'est à dire que le comparateur de phase a une amplitude d'action sur 16 valeurs du numérateur N . Le tableau 1.2 illustre par exemple la séquence des valeurs en sortie d'un accumulateur de phase en fonction de son ordre de modulation, lorsque le nombre $773 + \frac{1}{3}$ doit être synthétisé. L'erreur de phase en fonction du numéro de la séquence est représentée par la figure 1.12. Pour les ordres de modulation élevés, l'erreur de phase moyenne a une amplitude plus importante. Cependant l'analyse de l'erreur de phase normalisée en fonction du numéro de la séquence, représentée sur la figure 1.13, montre que plus l'ordre de modulation est élevé, plus l'erreur de phase manifeste un caractère aléatoire ce qui a pour conséquence de diminuer l'amplitude des spurs.
- L'ajout d'un bruit blanc de plus ou moins forte amplitude au niveau du sommateur afin de donner à l'erreur un caractère plus aléatoire. Ce bruit est appelé bruit de tramage ou dithering en anglais.

Aucune loi générale ne peut être établie quant à la relation entre les performances d'une PLL et de son ordre de modulation [25]. Ce constat motive la partie suivante qui aboutira à la

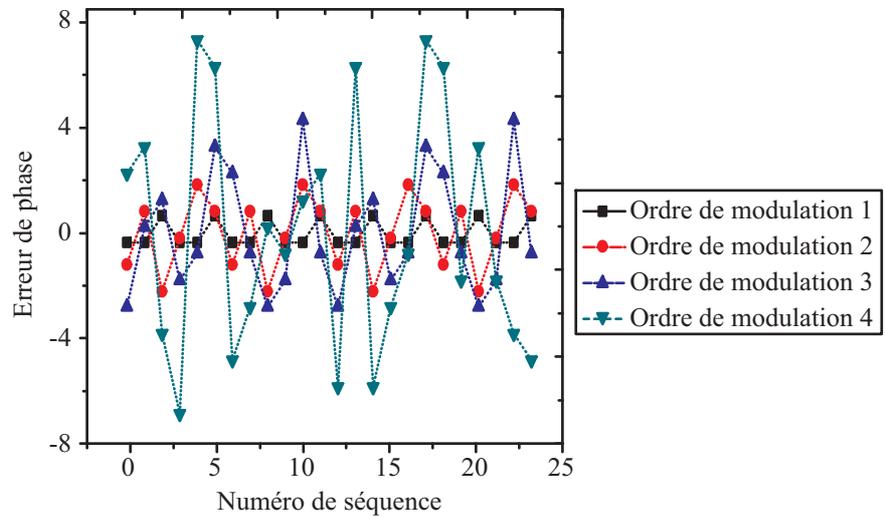


FIGURE 1.12: Erreur de phase en sortie d'une PLL fractionnaire à accumulateur de phase en fonction du numéro de séquence d'après le tableau 1.2. Les erreurs de phase induites par des ordres de modulation élevés ont de plus grandes amplitudes.

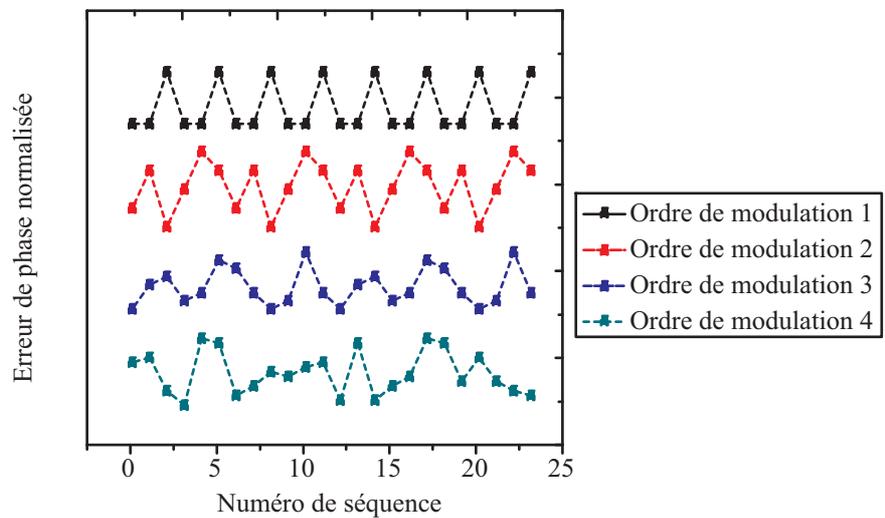


FIGURE 1.13: Erreur de phase normalisée en sortie d'une PLL fractionnaire à accumulateur de phase en fonction du numéro de séquence d'après le tableau 1.2. Le caractère périodique de l'erreur de phase s'atténue au fur et à mesure que l'ordre de modulation augmente. Pour des raisons de clarté, les différentes courbes sont décalées verticalement.

quantification des performances de l'asservissement en fonction de la fréquence de battement, de l'ordre de modulation de la PLL et de la présence ou non de bruit de tramage.

1.4 Mesure des performances de l'asservissement

La mise en place d'un banc de mesure nécessite de quantifier ses performances. L'un des paramètres cruciaux dans une expérience pompe-sonde est la résolution temporelle. Cette partie a pour but d'exposer, dans un premier temps, comment cette résolution est définie théoriquement et quels ont été les moyens mis en œuvre pour la quantifier expérimentalement. Dans un second temps seront présentées les résolutions temporelles du banc dans le cas où $\Delta f = 0$ (technique homodyne) puis dans le cas où $\Delta f \neq 0$ (technique hétérodyne).

Dans la suite de cette section seront appelées impulsions maîtres les impulsions issues de la cavité maître et impulsions esclaves les impulsions issues de la cavité esclave.

1.4.1 La gigue : définition et relation avec la bande passante

1.4.1.1 Définition de la gigue

De façon générale, la gigue, ou jitter en anglais, est la variation indésirée d'une ou de plusieurs composantes d'un signal. Dans le domaine des lasers impulsions, la gigue temporelle est définie comme étant la fluctuation du taux de répétition de la cavité. Elle correspond donc à la fluctuation de l'intervalle de temps qui sépare deux impulsions d'un train qui sont consécutives ou pas. Aucune norme universelle n'existe sur le paramètre permettant de quantifier la valeur de cette gigue[26, 27, 28, 29]. Dans le cadre de ce travail, il a été choisi de définir cette valeur comme étant l'écart-type des fluctuations du retard pompe-sonde par rapport au retard attendu. De façon générale, le terme gigue rms (pour *root mean square*) est employé pour décrire ce type de mesure.

1.4.1.2 Relation entre la valeur de la gigue et la bande passante

Lors d'une expérience pompe-sonde, la réponse d'un échantillon ne peut être déduite à l'aide d'une seule acquisition $s(t)$ en raison du trop faible rapport S/B. Une méthode qui permet d'améliorer ce rapport lorsque le bruit est aléatoire consiste à effectuer la moyenne $\overline{s(t)}$ de N' acquisitions :

$$\overline{s(t)} = \frac{1}{N'} \sum_{k=1}^{N'} s_k(t) . \quad (1.26)$$

Or la gigue relative du train sonde par rapport au train pompe a pour effet de décaler de façon aléatoire les abscisses des points sommés lors du calcul de $\overline{s(t)}$. Au final, le signal acquis $s_{\text{gigue}}(t)$ correspond au produit de convolution, noté $*$, de la moyenne théorique $\overline{s(t)}$ qui serait obtenue en absence de gigue, avec la fonction de répartition $p(t)$ des différentes valeurs que la gigue peut prendre (se référer à l'annexe A pour le développement du calcul).

$$\overline{s_{\text{gigue}}(t)} = (\overline{s} * p)(t) . \quad (1.27)$$

Dans la suite de cette démonstration, il sera supposé que la distribution vers laquelle converge la répartition des valeurs de gigue est gaussienne[30] avec un écart type σ_{rms} . De ce fait, le produit de convolution devient :

$$\overline{s_{\text{gigue}}(t)} = \overline{s(t)} * \frac{1}{\sigma_{\text{rms}}\sqrt{2\pi}} \exp^{-\frac{t^2}{2\sigma_{\text{rms}}^2}} . \quad (1.28)$$

Il en résulte une convolution des signaux par un filtre moyennneur qui est à l'origine de la chute de la bande passante du système d'acquisition. La relation qui existe alors entre la valeur de la fréquence $f_{-3 \text{ dB}}$ pour laquelle le spectre de $\overline{s_{\text{gigue}}(t)}$ est atténué de 3 dB et la valeur de la gigue σ_{rms} est :

$$f_{-3 \text{ dB}} = \frac{\sqrt{\log 2}}{2\sqrt{2}\pi\sigma_{\text{rms}}} \sim 0.09 \frac{1}{\sigma_{\text{rms}}} . \quad (1.29)$$

Le produit de la bande passante et de la gigue rms est donc constant et égal à 0.09, si les périodes mesurées sont distribuées selon une loi gaussienne.

Il semble ici important de souligner que cette dernière remarque ne signifie pas que tous les signaux dont la fréquence est en dehors de la bande passante ne seront pas détectés : ils le seront mais avec une atténuation notable.

1.4.1.3 Considérations spectrales

La gigue d'un signal peut être estimée aussi à l'aide de la densité spectrale de puissance (DSP) de ce signal. La DSP d'un signal sinusoïdal unitaire à fréquence fixe ν_0 est $\delta(f - \nu_0)$ où δ est la distribution de Dirac. Dans le cas où la fréquence du signal sinusoïdal fluctue, en négligeant le bruit d'amplitude, la relation entre la DSP $S_V(f)$ de ce signal (donnée en V^2/Hz) et la valeur de la gigue rms σ_{rms} est donnée par la relation (se référer à l'annexe B pour le développement des calculs) :

$$\sigma_{\text{rms}} = \frac{1}{\nu_0^2} \sqrt{\int_0^\infty \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 \left[\frac{2}{V_0^2} S_V(f + \nu_0) - \delta(f)\right] df} . \quad (1.30)$$

où V_0 désigne l'amplitude de la porteuse (en V). La valeur de la gigue correspond donc à la racine carrée d'une quantité intégrée sur un domaine spectrale infini. En raison de la bande passante nécessairement limitée de l'instrumentation et du temps fini de mesure il est techniquement impossible d'obtenir le spectre d'un signal sur le support $[0; \infty[$.

De ce fait, la valeur de la gigue est donnée sur une bande spectrale bornée :

$$\sigma_{\text{rms}} = \frac{1}{\nu_0^2} \sqrt{\int_{f_{\text{min}}}^{f_{\text{max}}} \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 \left[\frac{2}{V_0^2} S_V(f + \nu_0) - \delta(f)\right] df} . \quad (1.31)$$

Dans l'équation (1.31), la valeur de f_{max} est donnée par la bande passante du système de mesure du train d'impulsion et f_{min} est inversement proportionnelle au temps d'acquisition

de ce train. La valeur de la gigue est donc cumulative : elle doit nécessairement augmenter avec le temps d'observation. Ce résultat va permettre d'interpréter par la suite plusieurs courbes de valeurs de gigue mesurées.

Dans le domaine de la métrologie temps-fréquence, le terme bruit de phase est souvent employé. En négligeant le bruit d'amplitude, la relation qui lie ce bruit de phase S_ϕ au spectre du signal mesuré est donnée par la relation :

$$S_\phi(f - \nu_0) = \frac{2}{V_0^2} S_V(f) - \delta(f - \nu_0) . \quad (1.32)$$

De façon générale, le bruit de phase correspond en quelque sorte à la puissance portée par le signal hors de sa fréquence nominale ν_0 . La gigue est donc donnée par la racine de l'intégrale du bruit de phase sur un support spectrale borné :

$$\sigma_{\text{rms}} = \frac{2}{\nu_0^2} \sqrt{\int_{f_{\text{min}}}^{f_{\text{max}}} \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 S_\phi df} . \quad (1.33)$$

1.4.2 Présentation du banc de mesure de la gigue

La mesure de la valeur de la gigue relative [21, 31] ou absolue [19, 32] de lasers peut se faire soit par le biais de mesures optiques directes, soit par une estimation à partir du spectre du bruit de phase de la source considérée. Chacune des méthodes présente ses avantages et ses inconvénients. En règle générale, les méthodes spectrales sont plus faciles à mettre en œuvre mais nécessitent une instrumentation puissante : photodiodes de mesure ultrarapides, analyseurs de spectre avec une très grande bande passante, circuits électroniques insensibles aux bruits extérieurs... Les méthodes spectrales sont généralement peu aptes à prendre en considération les hautes fréquences du bruit de phase lors de l'estimation de la gigue : en effet à ces hautes fréquences le bruit de l'instrumentation devient prépondérant devant celui des sources lasers. Les méthodes optiques nécessitent quant à elles la mise en place de bancs de mesure relativement complexes mais sont plus aptes à prendre en considération les hautes fréquences du bruit de phase lors l'estimation de la valeur de la gigue.

Dans le cadre de ce travail, il a été choisi de privilégier la gigue haute fréquence : les acquisitions se faisant sur un période de quelques millisecondes, les contributions des basses fréquences ont finalement peu d'influence sur les mesures.

1.4.2.1 Présentation générale du montage optique

Pour caractériser optiquement la gigue, il a fallu mettre en place un intercorrélateur. La figure 1.14 présente le principe de cet intercorrélateur : lorsque deux impulsions maître et esclave se présentent à l'entrée du dispositif optique, l'association de deux lames demi-onde HWP1 et HWP2 avec un cube polarisant PBS1 permet d'ajuster l'énergie de chaque

1.4.2.2 La photodiode deux photons

La mesure de la gigue repose en partie sur l'utilisation d'une photodiode deux photons. Le principe de cette photodiode repose sur le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction suite à l'absorption simultanée de deux photons. Les porteurs de charge mobiles créés sont alors responsables d'un photocourant i_ψ proportionnel au carré du flux lumineux incident P [33] :

$$i_\psi = \kappa P^2, \quad (1.34)$$

où κ est une constante dépendant des propriétés optiques du matériau qui compose la photodiode. Afin de générer un photocourant 2 photons, il a été choisi dans le cadre de ce travail d'utiliser la photodiode Hamamatsu G1115 dont la bande d'absorption, représentée sur la figure 1.15, est centrée à 600 nm : l'excitation d'un électron se fait dans ce cas grâce à l'absorption de deux photons à 1030 nm (l'absorption d'un seul photon étant interdite).

Pour maximiser i_ψ , les faisceaux maître et esclave sont focalisés et superposés sur la photodiode grâce à un objectif de microscope. Lorsque deux impulsions arrivent en même temps sur la photodiode une brève augmentation du photocourant généré entraîne la création d'un signal électrique transitoire indiquant la coïncidence⁷.

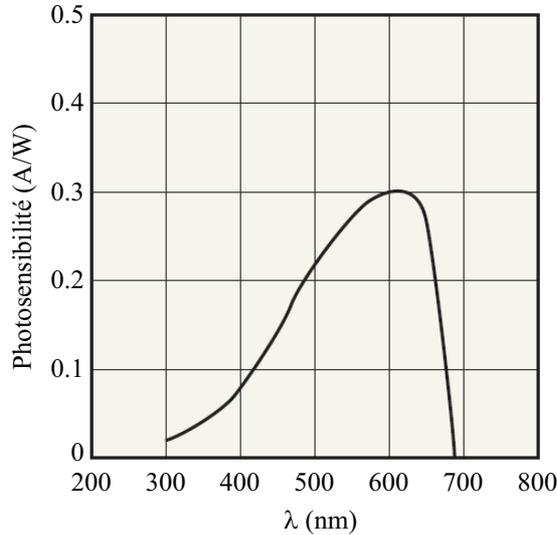


FIGURE 1.15: Dépendance spectrale de la photosensibilité de la photodiode deux photons [34].

Le courant de la photodiode est amplifié à l'aide d'un circuit de conditionnement composé d'un étage transimpédance et d'amplificateurs de tension. Ce circuit est choisi de façon à ce que sa bande passante le rende insensible aux trains d'impulsions des lasers (donc beaucoup plus petite que 50 MHz), et de façon à être sensible au train de coïncidence (i.e. avec une

7. Instant où les impulsions pompe et sonde y arrivent superposées temporellement.

bande passante incluant la fréquence du train de coïncidence des deux lasers). Dans le cadre de ce travail, un circuit avec une bande passante d'environ un mégahertz a été réalisé. Le montage final n'est donc sensible qu'aux trains de coïncidence de la photodiode comme l'illustre la figure 1.16.

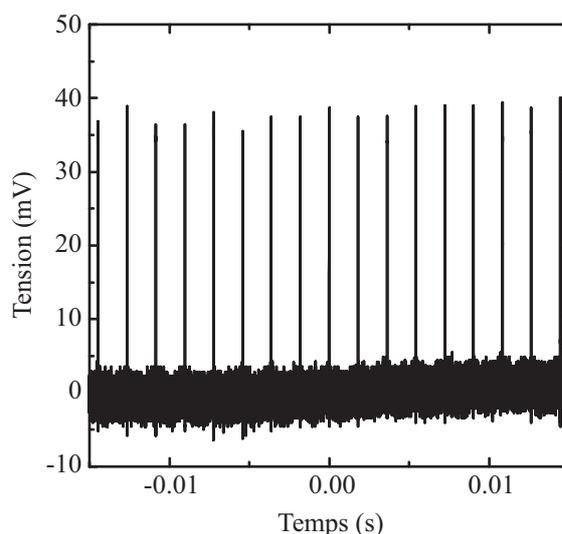


FIGURE 1.16: Signal de sortie du circuit de conditionnement de la photodiode deux photons pour des puissances laser incidentes de 40 mW : un pic électronique est généré à chaque coïncidence. Ce signal est envoyé vers la voie de synchronisation.

1.4.3 Gigue absolue et relative de deux cavités libres

Avant de s'intéresser aux performances de l'asservissement, la gigue des cavités non asservies a été mesurée (i.e. la gigue absolue d'une cavité puis la gigue relative des deux cavités libres situées dans le même boîtier).

1.4.3.1 Gigue absolue d'une cavité laser libre

Pour effectuer la mesure optique de la gigue absolue d'une cavité laser, une méthode couramment employée [32] et reportée sur la figure 1.17, consiste à effectuer l'intercorrélation de la $i^{\text{ème}}$ impulsion d'un train avec la $i+n^{\text{ème}}$ impulsion qui lui succède. Pour être mesurable et pour prendre en compte les composantes basses fréquences du bruit de phase, la valeur de n , et par conséquent la durée T qui sépare les impulsions mises en jeu, doivent être les plus grandes possible. En effet, Jiang et al. ont montré que la borne inférieure d'intégration du bruit de phase lors de la mesure de la gigue par cette méthode était donnée par [32] :

$$f_{\min} = \frac{1}{4T} . \quad (1.35)$$

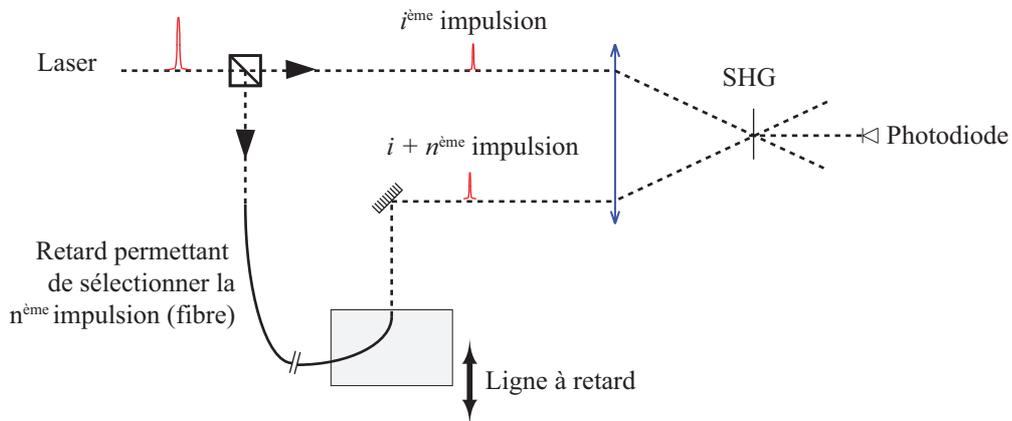


FIGURE 1.17: Dispositif expérimental pour la mesure de la gigue absolue d'une cavité laser. Schéma du banc mis en place par Jiang et al. [35] SHG. : cristal doubleur de fréquence.

Il faut donc déployer des intercorrélateurs avec des bras dont les différences des chemins optiques doivent être très grandes. Pour être en mesure de créer de telles différences de chemins optiques, il est nécessaire d'avoir recours à des fibres optiques de plusieurs centaines [35] voir plusieurs milliers de mètres [32]. En considérant c_f la célérité de la lumière dans une fibre de longueur L utilisée dans un intercorrélateur, l'expression de la borne inférieure d'intégration du bruit de phase, lors d'une mesure décrite par la méthode de Jiang et al. peut être réexprimée grâce à l'expression :

$$f_{\min} = \frac{c_f}{4L} . \quad (1.36)$$

L'inconvénient de cette méthode réside principalement dans l'emploi de ces très longues fibres optiques, difficile à mettre en œuvre et qui induit une dispersion qui est à l'origine de l'élargissement des impulsions. Il faut alors tenir compte de cet élargissement lors du traitement des résultats de mesure. La figure 1.17 illustre le principe de ces intercorrélateurs.

Il est à noter ici que la borne supérieure d'intégration du bruit de phase peut être considérée comme étant infinie [32] : ce point constitue l'atout principal de l'estimation de la gigue par des méthodes optiques.

Le mode de mesure optique présenté dans la suite de cette partie du manuscrit combine l'avantage des méthodes optiques et électroniques cités précédemment. Il s'agit d'une mesure de la gigue qui prend en compte les hautes et basses fréquences sans avoir recours à l'utilisation d'une longue fibre optique, ni d'une instrumentation électronique complexe. En revanche, elle nécessite l'utilisation d'une seconde source laser stabilisée en fréquence dont la gigue temporelle doit être inférieure à la gigue de la cavité étudiée.

Afin d'obtenir cette source stabilisée, un générateur de signaux (Agilent N5181A), dont la gigue est voisine de la picoseconde d'après le constructeur [36], est utilisé pour asservir la cavité laser esclave comme l'illustre la figure 1.18.

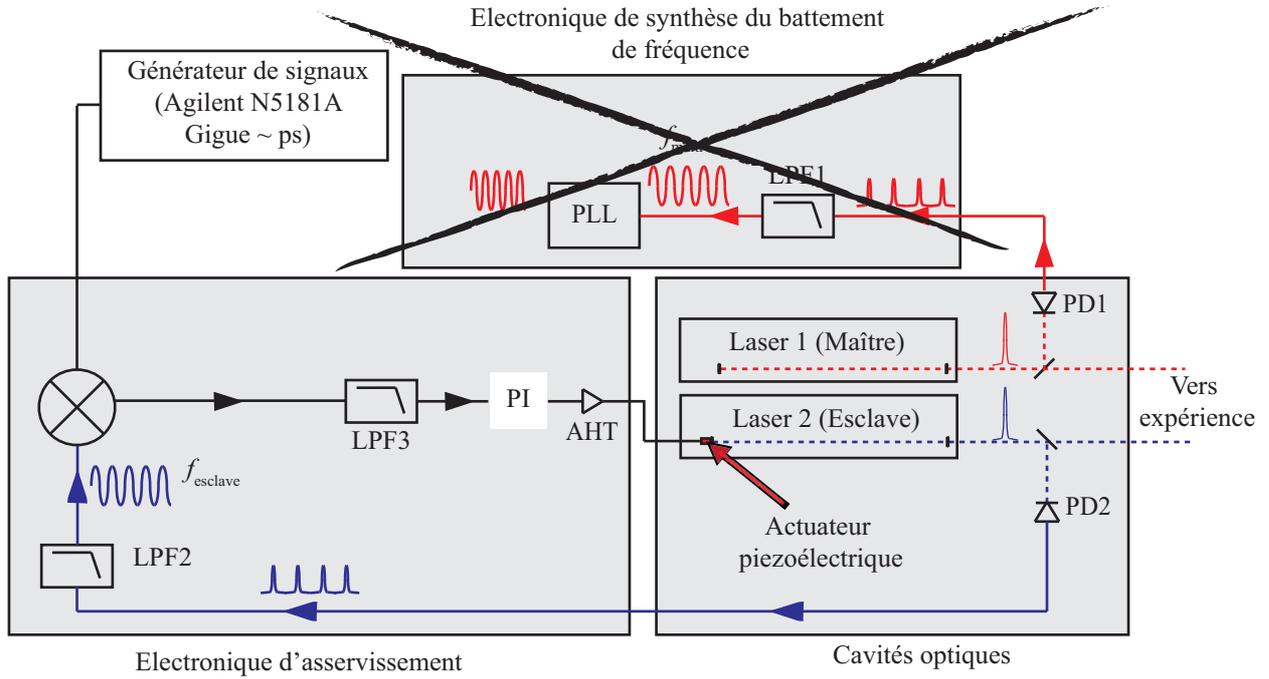


FIGURE 1.18: Afin de procéder à la mesure de la gigue absolue de la cavité maître, la PLL est déconnectée et la cavité esclave asservie à un générateur de signaux ultra-stable en fréquence.

La fréquence du générateur de signaux Agilent est choisie de telle sorte que le battement de fréquence Δf entre les deux cavités lasers soit d'environ 500 Hz.⁸ Les deux trains d'impulsions décalés en fréquence (Δf) sont envoyés dans l'intercorrélateur présenté figure 1.19. Ils sont recombinaés par le cube PBS1 et dirigés vers la photodiode deux photons qui génère un signal électronique transitoire à chaque fois que deux impulsions y arrivent simultanément.

En supposant une valeur de gigue nulle des deux cavités, le temps T_p qui sépare la génération de deux signaux électroniques transitoires par la photodiode est égal à la période de battement $\frac{1}{\Delta f}$. Et en supposant que la valeur de la gigue du laser stabilisé $\sigma_{\text{rms}}^{\text{esclave}}$ soit très petite devant celle du laser libre $\sigma_{\text{rms}}^{\text{maître}}$, ce qui sera justifié dans la partie 1.4.4, l'étude des fluctuations de la durée T_p autour de la durée $\frac{1}{\Delta f}$ revient à mesurer la gigue entre une impulsion maître et la $n^{\text{ième}}$ suivante avec :

$$n = \frac{f_{\text{maître}}}{\Delta f} . \quad (1.37)$$

Ces impulsions sont alors séparées de la distance D , donnée par la relation :

8. L'étude présentée ultérieurement en section 1.4.5.1 montre que c'est avec ce battement de fréquence que le système SEAF présente les meilleures performances. La mesure présentée ici de la gigue absolue d'une cavité permettra donc de quantifier l'apport de l'asservissement à cette fréquence de battement.

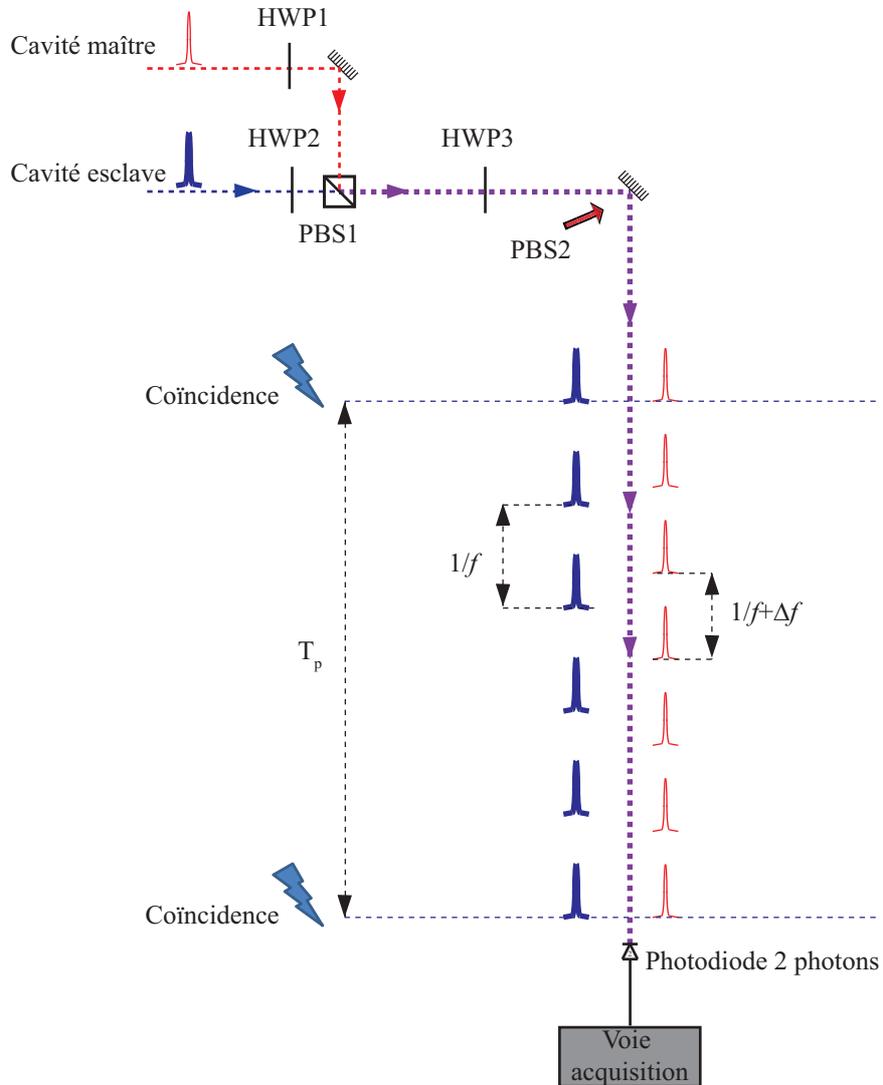


FIGURE 1.19: Principe de mesure de la gigue absolue d'un laser : après leur recombinaison par le cube PBS2 les impulsions des cavités maître et esclave arrivent superposées spatialement sur la photodiode deux photons qui génère un signal à chaque fois que ces impulsions y arrivent en même temps. Ici les deux trains d'impulsions ont été représentés côte à côte afin de faciliter la lecture de la figure. HWP. : lame demi-onde, QWP. : lame quart d'onde, PBS : cube polarisant.

$$D = \frac{c}{2\Delta f} . \quad (1.38)$$

Si la mesure de la valeur absolue de la gigue devait être faite avec un seul laser et avec les méthodes optiques utilisées traditionnellement[32, 35], il faudrait une fibre de 600 km pour

un battement de fréquence de 500 Hz!⁹

Afin d'extraire la valeur RMS de la gigue, 4 séries de 1000 mesures de la durée T_p sont réalisées. Les valeurs de ces durées sont ramenées du temps dilaté au temps physique en les multipliant par le rapport $\frac{\Delta f}{f_{\text{maître}}}$ [cf. équation (1.4)]. La distribution de la valeur de ces durées est représentée sur la figure 1.20. Une analyse statistique conduit à $\sigma_{\text{rms}}^{\text{maître}} = 210$ ps. En adaptant la formule de Jiang [32] dans le cas présent, la valeur de gigue présentée correspond à l'intégration du bruit de phase sur le support fréquentiel $[125 \text{ Hz}; \infty[$. En effet, la formule (1.35) peut être adaptée à cette méthode de mesure et réécrite sous la forme :

$$f_{\text{min}} = \frac{\Delta f}{4}, \quad (1.39)$$

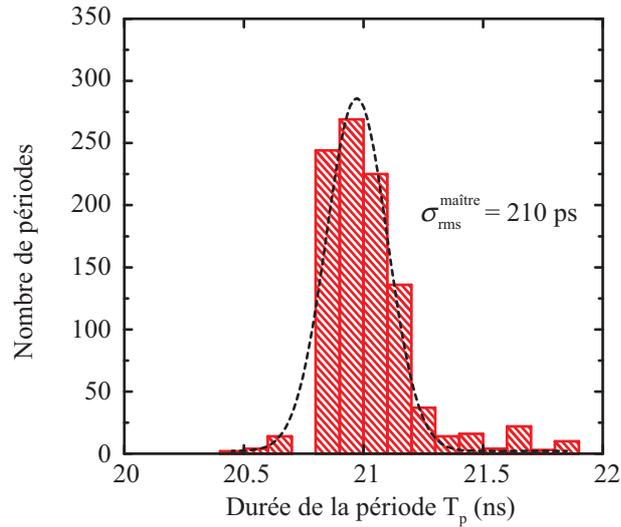


FIGURE 1.20: Distribution des périodes de battement mesurées T_p pour une cavité laser libre (maître) par rapport à une cavité stabilisée (esclave). L'analyse statistique de cette distribution permet de déduire la gigue absolue d'une cavité libre $\sigma_{\text{rms}}^{\text{maître}}$, définie comme l'écart type de la distribution, qui est ici de 210 ps.

Il est intéressant d'observer qu'en diminuant le battement de fréquence entre les deux cavités, la courbe de bruit de phase peut être optiquement reconstruite et ce avec une borne supérieure infinie.

9. Ce sont typiquement les ordres de grandeurs des battements de fréquences utilisés lors des expériences pompe-sonde hétérodynes. Cette méthode de mesure de la gigue possède donc l'avantage de prendre en considération, pour un battement de fréquence Δf donné, le même bruit de phase présent dans une mesure pompe-sonde hétérodyne configurée avec le même battement de fréquence.

1.4.3.2 Gigue relative de deux cavités libres situées dans le même boîtier

Le première stratégie mise en place pour diminuer la valeur de la gigue a été de placer les deux cavités lasers dans le même boîtier afin de corrélérer les bruits mécaniques, thermiques et électromagnétiques qu'elles subissent. Cette partie du manuscrit quantifie l'apport de cette architecture.

Le protocole expérimental de cette expérience est similaire à celui qui a été exposé dans la partie précédente, à la différence que cette fois-ci les deux cavités sont libres. Il s'agit donc de la mesure de la valeur de la gigue relative de deux cavités placées dans le même boîtier puisqu'il n'y a aucune référence temporelle stable extérieure dans l'expérience. Tout comme dans l'expérience de la mesure de la gigue absolue d'une cavité (paragraphe 1.4.3.1) c'est l'écart-type des intervalles de temps séparant la génération de signaux sur la photodiode deux photons qui est calculé afin d'estimer la valeur de la gigue.

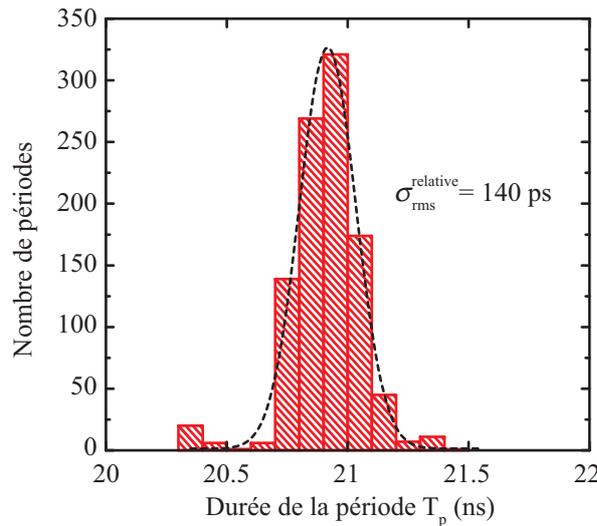


FIGURE 1.21: Distribution des périodes de battement mesurées entre les deux cavités lasers non asservies et placées dans le même boîtier. Le calcul de l'écart type de la distribution permet de conclure quant à la valeur relative de la gigue $\sigma_{rms}^{relative}$ qui est ici de 140 ps.

Une mesure de 1000 valeurs de T_p a été réalisée. La distribution de ces valeurs est reportée sur la figure 1.21. L'écart-type de cette distribution permet donc d'affirmer que sur le même support spectral $[125 \text{ MHz}, \infty[$ le bruit de phase intégré conduit à une valeur de gigue de 140 ps.

En supposant que les valeurs des périodes T_p soient distribuées selon une loi gaussienne pour chacune des cavités, la gigue relative de deux cavités serait donnée, pour deux cavités indépendantes, par :

$$\sigma_{\text{rms}}^{\text{total}} = \sigma_{\text{rms}}^{\text{esclave}} \sqrt{2} \sim 285 \text{ ps} . \quad (1.40)$$

Il en résulte que la mise en place des cavités dans le même boîtier présente un intérêt certain puisqu'elle permet de diviser la valeur de la gigue par 2. En revanche, 140 ps reste une valeur trop élevée : un asservissement actif (SEAF) est nécessaire lors des expériences pompe-sonde.

1.4.4 Détermination expérimentale de la valeur de la gigue en configuration homodyne

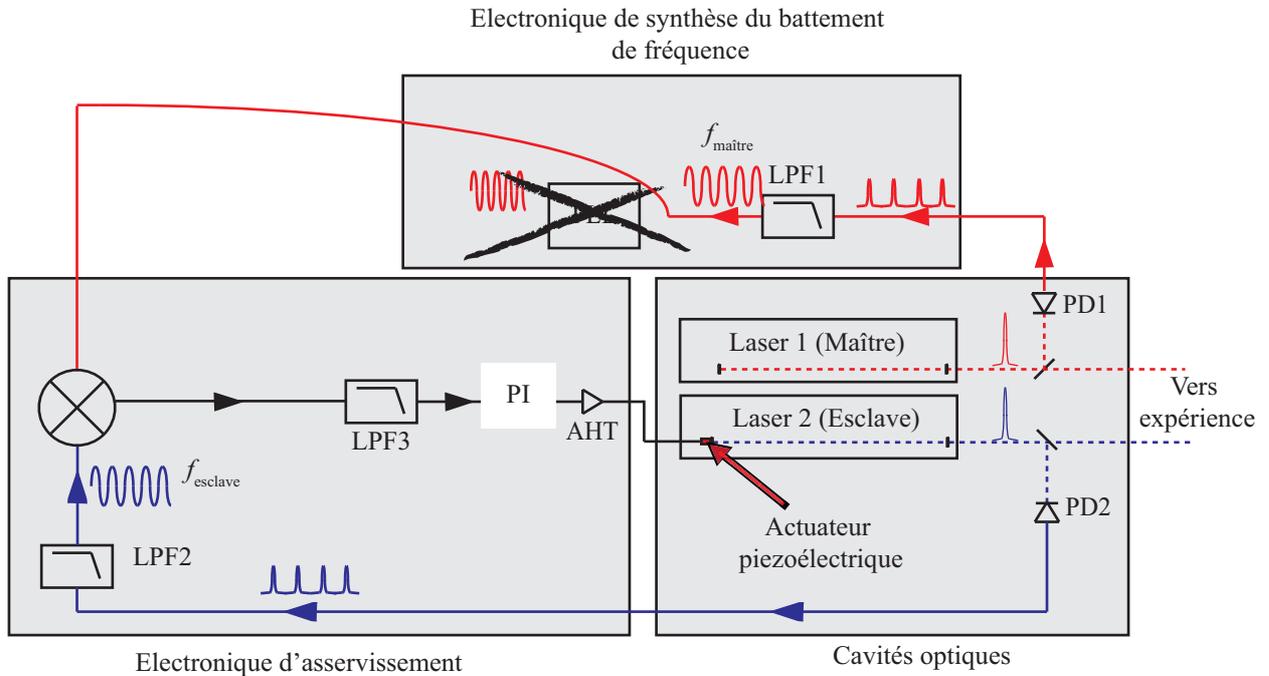


FIGURE 1.22: Schéma d'asservissement des cavités en configuration homodyne : la PLL n'est pas utilisée. Ainsi la fréquence de la cavité esclave est asservie à la fréquence de la cavité maître. PD : photodiode, LPF : filtre passe-bas, AHT : amplificateur haute tension, PI : correcteur proportionnel/intégral.

Lorsque des mesures pompe-sonde doivent être faites avec des sources lasers qui ne disposent pas des mêmes caractéristiques optiques (durées des impulsions, longueurs d'onde...), il n'est pas rare d'utiliser un banc homodyne avec deux sources lasers différentes, synchronisées au même taux de répétition[30, 37]. Dans le cas présent, l'évaluation de la gigue relatives de deux cavités en configuration homodyne permet de quantifier les performances du système d'asservissement seul, sans prendre en compte l'influence des bruits causés par

l'électronique de la PLL, afin de savoir avec quelle résolution une source peut être synchronisée à une référence. Pour réaliser la mesure la PLL n'est pas utilisée, comme l'illustre la figure 1.22.

1.4.4.1 Principe de mesure

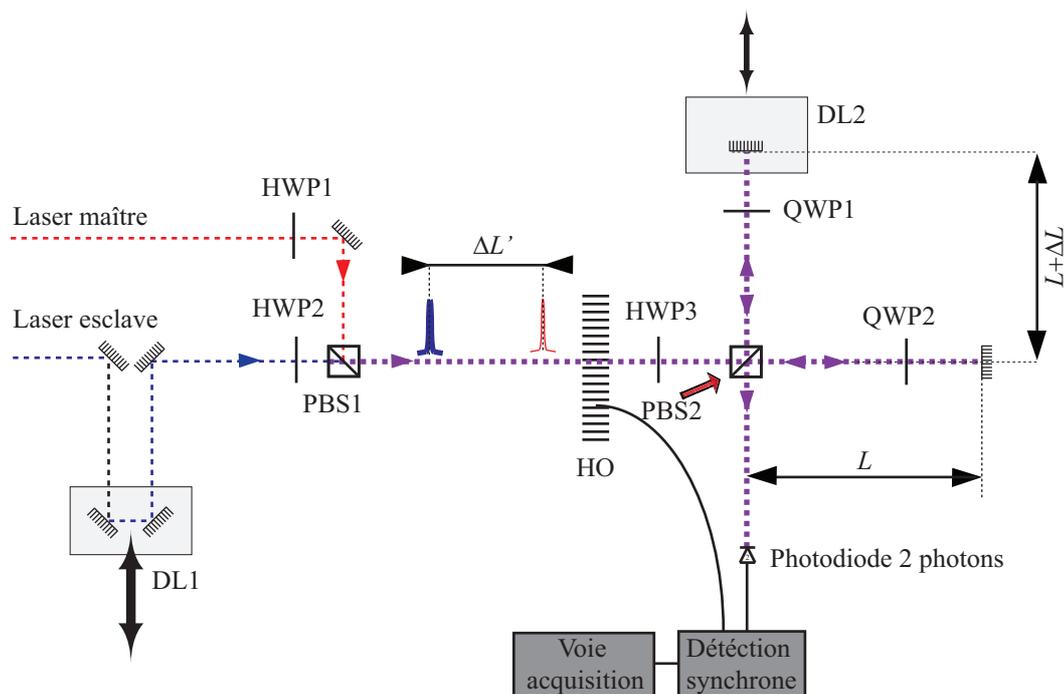


FIGURE 1.23: Configuration de l'intercorrélateur pour les mesures en homodyne. Les impulsions issues des lasers maître et esclave sont recombinaées avant d'être envoyées vers l'intercorrélateur. L'utilisation d'une détection synchrone permet d'améliorer le rapport S/B. PBS : cube polarisant, QWP : lame quart d'onde, HO : hacheur optique, HWP : lame demi-onde, DL : ligne à retard

La figure 1.23 illustre la manière dont l'intercorrélateur est utilisé afin de mesurer la gigue relative de deux lasers ayant la même fréquence de répétition. Dans un premier temps, la ligne à retard DL1 est ajustée afin que les impulsions maître et esclave soient séparées après leur combinaison par le cube PBS1 d'une distance $\Delta L'$ plus petite que $2\Delta L$, où ΔL est la différence de longueur des bras de l'intercorrélateur. Cette condition, comme il est expliqué plus loin dans le paragraphe, permet d'obtenir deux intercorrélations en bougeant la ligne DL1. Les polarisations des deux impulsions combinées sont ensuite tournées de 45° grâce à la lame demi-onde HWP3, de façon à ce que 50% de chaque impulsion soit réfléchié par le cube polarisant PBS2 et que le reste soit transmis. Une partie de chaque impulsion emprunte alors le long bras de l'autocorrélateur de longueur $L + \Delta L$, et l'autre le bras plus court de longueur L . Après leur réflexion sur les miroirs, les impulsions sont orientées vers la photodiode où, comme l'illustre la figure 1.24, elles arrivent dans l'ordre suivant :

- D’abord l’impulsion qui n’est pas retardée par la ligne à retard DL1 (impulsion rouge en trait fin) et qui emprunte le bras de l’intercorrélateur le plus court.
- Puis l’impulsion en retard lors de la recombinaison avec PBS1 mais qui emprunte le bras de l’intercorrélateur le plus court.
- Ensuite, l’impulsion en avance lors de la recombinaison avec PBS1 et qui emprunte le chemin le plus long vers la photodiode.
- Enfin l’impulsion qui est non seulement en retard lors de la recombinaison avec PBS1 mais qui emprunte en plus le chemin le plus long.

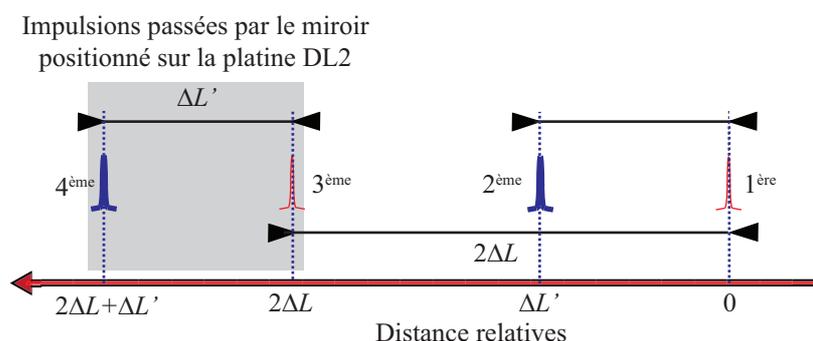


FIGURE 1.24: Distances relatives des impulsions après leur réflexion et leur recombinaison par le cube PBS2 en fonction de ΔL (qui varie lors de la mesure) et $\Delta L'$ (qui reste fixe).

L’ordre d’arrivée de ces impulsions sur la photodiode 2 photons en fonction des distances ΔL et $\Delta L'$ est illustré sur la figure 1.24.

En raccourcissant la longueur ΔL à l’aide de la platine DL2 la photodiode enregistre trois événements :

- Le premier, lorsque la longueur ΔL est voisine de $\frac{\Delta L'}{2}$: les seconde et troisième impulsions arrivent alors au même moment sur la photodiode. Une première intercorrélacion a lieu.
- Le second lorsque ΔL est voisin de 0 : les impulsions 1 et 3, 2 et 4 arriveront en même temps sur la photodiode. Il s’agit en fait d’une somme d’autocorrélacions¹⁰.
- Enfin un troisième et dernier événement a lieu lorsque $\Delta L \sim -\frac{\Delta L'}{2}$. Dans ce cas ce sont les impulsions 4 et 1 qui arrivent en même temps sur la photodiode : il s’agit d’une seconde intercorrélacion.

1.4.4.2 Résultats et discussion

La figure 1.25 présente le signal acquis lors d’une mesure effectuée avec le banc décrit précédemment. Il est à noter que ce signal comporte trois pics : deux pics latéraux, qui correspondent aux intercorrélacions (véhiculant l’information sur la gigue) et un pic central

10. En réalité il y a deux autocorrélacions séparées d’une durée $\frac{\Delta L'}{c}$. A cause de son temps de réponse, la photodiode voit la somme des deux autocorrélacions.

qui correspond à la somme des autocorrélations. La mesure a été faite avec une vitesse de translation v_{platine} de la platine DL2 de $10 \mu\text{m}/\text{sec}$ ¹¹. Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit des signaux, un hacheur optique est utilisé afin de moduler le faisceau à 2800 Hz. Une détection synchrone démodule le signal avant qu'il ne soit numérisé. La constante de temps $\tau_{\text{détection}}$ de cette détection est de 10 sec. Le temps caractéristique de mesure τ_{banc} est donné par :

$$\tau_{\text{banc}} = 2 \frac{v_{\text{platine}} \tau_{\text{détection}}}{c} . \quad (1.41)$$

Il en résulte que τ_{banc} a pour valeur 666 fs pour la vitesse de platine v_{platine} et la constante de détection $\tau_{\text{détection}}$ évoquées. Ces paramètres expérimentaux permettent alors de collecter assez d'énergie pour rendre les mesures exploitables sans introduire de biais.

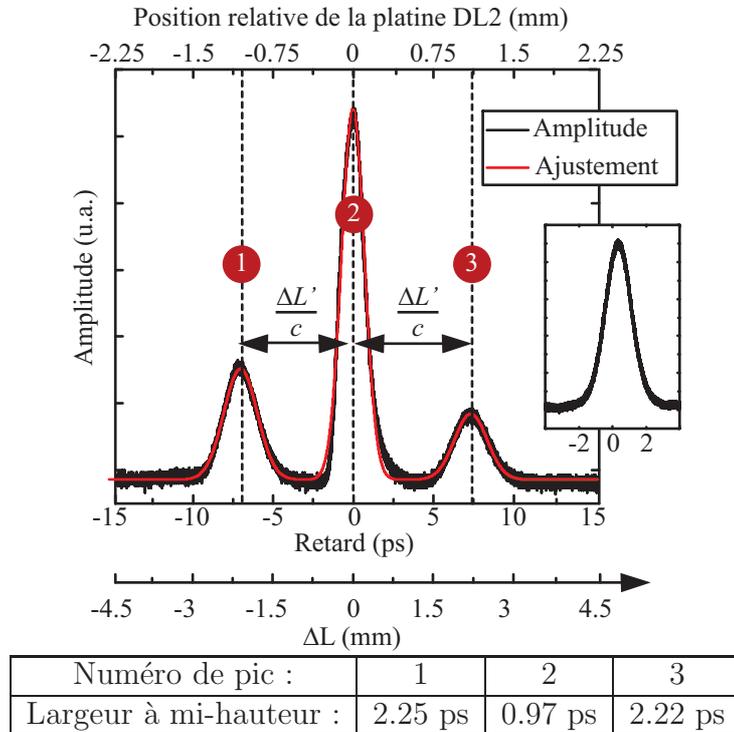


FIGURE 1.25: Résultat de mesure de la gigue en homodyne : l'étude des pics latéraux renseigne sur la valeur de la gigue. En insert : la mesure avec une constante d'intégration de 333 fs permet de ne pas déformer le pied du pic central.

Les valeurs des largeurs à mi-hauteur des traces d'intercorrélations (pics latéraux sur la figure 1.25) sont de 2.22 ps (pic 1) et 2.25 ps (pic 3) soit une moyenne de τ_{LMH} de 2.23 ps. En l'absence de gigue entre les deux cavités laser, l'intercorrélacion aurait eu pour valeur de largeur à mi-hauteur τ_{LMH} la somme quadratique de la durée des impulsions :

11. La vitesse de translation de cette platine a été calibrée expérimentalement.

$$\tau_{\text{LMH}} = \sqrt{\tau_{\text{esclave}}^2 + \tau_{\text{maître}}^2} . \quad (1.42)$$

En présence d'une gigue relative τ_{gigue} , cette largeur à mi-hauteur devient :

$$\tau_{\text{LMH}} = \sqrt{\tau_{\text{gigue}}^2 + \tau_{\text{esclave}}^2 + \tau_{\text{maître}}^2} . \quad (1.43)$$

En supposant que la gigue soit distribuée sous la forme d'une gaussienne, hypothèse qui peut être admise à la vue de la forme des pics latéraux, et d'après la relation qui lie l'écart-type σ d'une gaussienne à sa largeur à mi-hauteur τ :

$$\sigma = \frac{\tau}{2\sqrt{2\ln(2)}} , \quad (1.44)$$

la gigue rms peut être calculée en utilisant la relation :

$$\sigma_{\text{gigue}}^{\text{rms}} = \frac{\sqrt{\tau_{\text{LMH}}^2 - \tau_{\text{esclave}}^2 - \tau_{\text{maître}}^2}}{2\sqrt{2\ln(2)}} . \quad (1.45)$$

La valeur de la gigue rms $\sigma_{\text{gigue}}^{\text{rms}}$ est de 920 ± 60 fs. Il est intéressant de noter que le temps mis pour l'acquisition d'une seule autocorrélation était d'environ 30 secondes : la valeur de gigue présentée ici correspond donc à l'intégration du bruit de phase sur un support spectral dont la borne inférieure est de quelques millihertz.

1.4.5 Mesure en configuration hétérodyne

Les deux paramètres auxquels l'utilisateur a accès lors de l'utilisation du SEAF sont l'ordre de modulation de la PLL et l'amplitude du dithering (bruit de tramage). La mesure des performances de la PLL a été étudiée pour 9 configurations qui dépendent de ces deux paramètres. Ces configurations sont présentées dans le tableau 1.3.

Configuration 1 Ordre de modulation : 2 Dithering : non	Configuration 2 Ordre de modulation : 2 Dithering : faible	Configuration 3 Ordre de modulation : 2 Dithering : fort
Configuration 4 Ordre de modulation : 3 Dithering : non	Configuration 5 Ordre de modulation : 3 Dithering : faible	Configuration 6 Ordre de modulation : 3 Dithering : fort
Configuration 7 Ordre de modulation : 4 Dithering : non	Configuration 8 Ordre de modulation : 4 Dithering : faible	Configuration 9 Ordre de modulation : 4 Dithering : fort

TABLE 1.3: *Détail des neuf configurations de PLL étudiées.*

1.4.5.1 Fluctuation des périodes de battement : gigue relative de deux cavités laser asservies pour un retard fixe de 21 ns

L'idée est de mesurer la fluctuation des périodes de battement qui peut être vue dans le temps dilaté comme la fluctuation du positionnement temporel de l'impulsion pompe par rapport à l'impulsion sonde pour un retard d'une valeur $\Delta_{\text{het}} = \frac{1}{\Delta f}$ (figure 1.3). Dans le temps physique, ce retard a pour valeur $\delta_{\text{het}} = \frac{1}{f_{\text{maître}}} \sim 21$ ns. La mesure se fait dans le temps dilaté et les valeurs sont ramenées au temps physique.

Pour faire la mesure, l'intercorrélateur est utilisé de manière analogue à ce qui a été décrit dans les parties 1.4.3.1 et 1.4.3.2. La figure 1.19 décrit le banc utilisé : un des bras de l'intercorrélateur est bloqué. Les deux trains d'impulsions ne peuvent donc emprunter qu'un seul chemin vers la photodiode deux photons. Cette photodiode génère alors une impulsion électrique chaque fois que deux impulsions lumineuses arrivent simultanément dessus. En l'absence de gigue relative des deux cavités, le temps T_p qui sépare la génération de deux pics électriques est égal à l'inverse de la fréquence de battement Δf . La gigue est alors définie comme étant l'écart-type des fluctuations des périodes T_p mesurées. Cette valeur a été mesurée pour des fréquences de battement entre 100 Hz et 1 kHz. Les résultats de ces mesures sont présentés sur la figure 1.26.

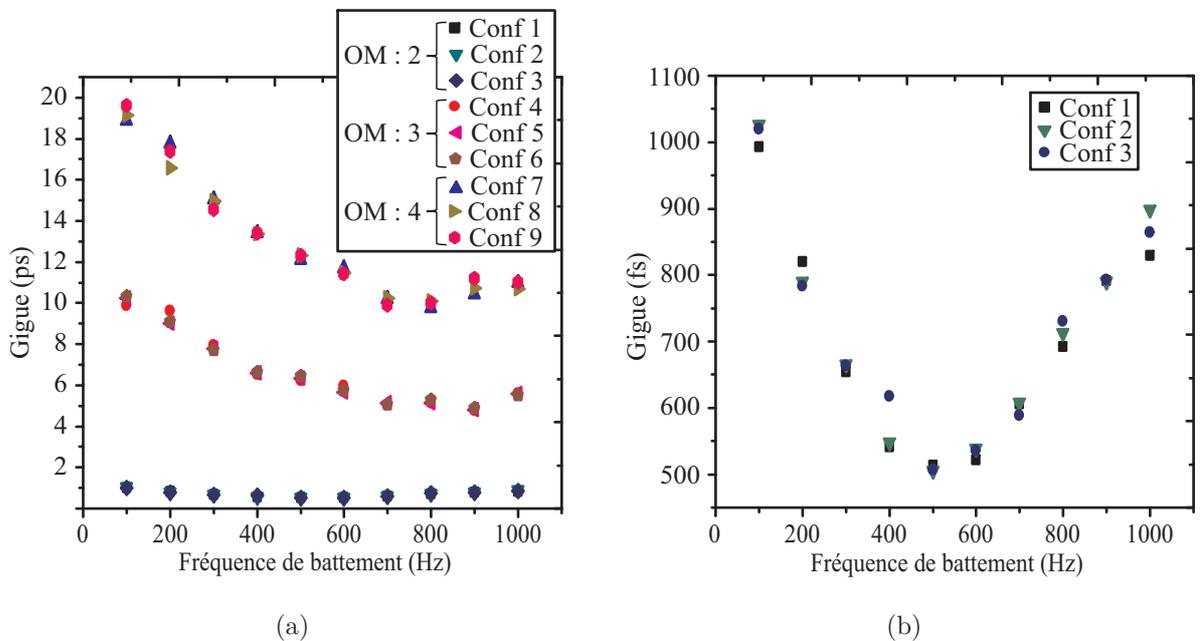


FIGURE 1.26: Valeur de la gigue rms lorsque l'asservissement est enclenché en fonction de l'ordre de modulation de la PLL, de l'amplitude du bruit de tramage (a) et pour les configurations les plus performantes (b). OM : ordre de modulation de la PLL.

L'analyse des résultats de mesures portés par la figure 1.26(a) permet de conclure que l'ordre de modulation de la PLL est le paramètre crucial de l'asservissement auquel l'utilisateur a facilement accès. Contrairement à ce qui était attendu (se référer au paragraphe 1.3.3.2.2), ce sont les ordres de modulation les moins élevés qui donnent les meilleures performances d'asservissement : alors que le second ordre donne une gigue de l'ordre de la picoseconde, les configurations d'ordre 3 et 4 donnent des giges moyennes respectivement de 7 et 17 picosecondes.

Une analyse plus fine des trois configurations avec le plus faible ordre de modulation (configuration n° 1, n° 4 et n° 7 du tableau 1.3) ne permet pas de conclure quant à l'influence de l'amplitude du bruit de tramage rajouté. En revanche cette analyse permet de sélectionner la fréquence de battement du système qui donne les meilleures performances : c'est pour un battement proche de 500 Hz que le système a la plus petite valeur de gigue (environ 500 fs). Pour des fréquences de battement Δf comprises entre 100 Hz et 500 Hz, la décroissance de la gigue lorsque Δf augmente s'explique par le fait que le temps T_p qui sépare deux coïncidences sur la photodiode diminue lorsque Δf augmente. De ce fait, le bruit de phase est intégré sur un plus petit support. La relation qui lie la valeur de la gigue estimée au battement de fréquence est donnée, d'après les travaux de Jiang et al. [32] et la relation (1.33) par :

$$\sigma_{\text{rms}} = \frac{2}{v_0^2} \sqrt{\int_{\frac{\Delta f}{4}}^{f_{\text{max}}} \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 S_\phi df} . \quad (1.46)$$

En ce qui concerne la partie croissante de la courbe, aucune conclusion n'a pu être tirée à ce jour bien que de nombreuses hypothèses aient été émises : rapprochement des spurs (se référer au paragraphe 1.3.3.2.2) de la porteuse provoquant des défauts d'asservissement, fréquence de coupure du cristal piézoélectrique atteinte,...

1.4.5.2 Gigue relative de deux cavités lasers asservies pour différents retards pompe-sonde

Dans la partie précédente, la fluctuation de la période de battement entre les trains d'impulsion maître et esclave a été étudiée. Comme il a été expliqué et illustré, cette étude est équivalente à l'analyse de l'incertitude quant au positionnement de la sonde par rapport à la pompe pour un retard δ_{het} de 21 ns ($\frac{1}{f_{\text{pompe}}}$). La méthode mise en œuvre pour étudier la gigue relative entre les deux cavités lasers pour différents retards, comme l'illustre la figure 1.27, va à présent être décrite.

Afin de répondre à cette question, le banc de mesure est utilisé cette fois-ci avec les deux bras non obstrués comme l'illustre la figure 1.28. Comme dans les montages précédents, les impulsions sont recombinaées à l'aide du cube PBS1 avant d'être renvoyées vers le cube PBS2 qui les scinde en deux. Une partie de chaque impulsion est envoyée dans le long bras de l'intercorrélateur et l'autre partie dans le bras le plus court. Après leurs réflexions sur les miroirs des bras, 4 familles d'impulsions arrivent sur la photodiode :

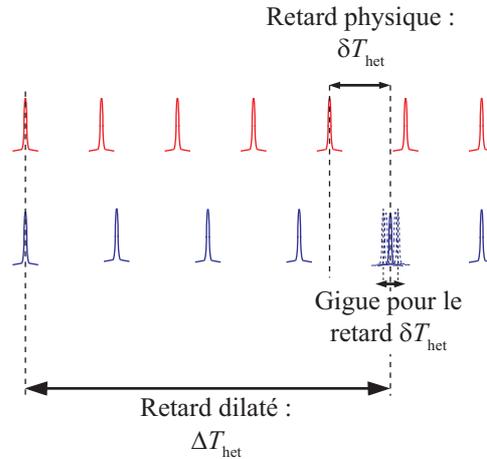


FIGURE 1.27: Illustration de la gigue pour un retard pompe-sonde différent de 21 ns. La gigue dans le temps dilaté correspond à la valeur de la fluctuation de la durée ΔT_{het} qui sépare la coïncidence du moment où le retard entre la sonde et la pompe sera de δT_{het} .

- Les impulsions issues du laser maître qui ont emprunté le bras le plus court de l’intercorrélateur.
- Les impulsions issues du laser esclave qui ont emprunté le bras le plus court.
- Les impulsions du laser maître qui ont pris le bras le plus long de l’intercorrélateur.
- Les impulsions du laser esclave qui ont emprunté le bras le plus long de l’intercorrélateur.

Ces impulsions arrivent superposées sur la photodiode deux photons (sur la figure 1.28 elles ont été décalées spatialement afin que le lecteur puisse distinguer leur ordre d’arrivée). L’arrivée de ces impulsions sur le photodétecteur est à l’origine de la génération de deux signaux transitoires¹² :

- Un premier pic de grande amplitude est généré lorsque les impulsions issues du laser esclave et du laser maître arrivent en même temps sur la photodiode deux photons. Le terme « coïncidence sur la photodiode » peut être alors employé. En réalité, il y a deux coïncidences : celle des impulsions maître/esclave qui ont emprunté le plus court chemin vers la photodiode et celle des impulsions maître/esclave qui ont emprunté le chemin le plus long. La durée $2\frac{\Delta L}{c}$ qui sépare ces deux événements est de quelques nanosecondes car la différence de longueur entre les deux bras n’excède pas 3 m : au vu du taux de répétition de la cavité maître, il ne sert à rien de mesurer la gigue au delà de 21 ns, largeur des fenêtres d’observation en mesure pompe-sonde. En raison de la bande passante de la photodiode (~ 1 MHz), un seul événement est enregistré.

12. Il est à noter que les impulsions issues de lasers identiques ne peuvent interagir entre elles car la distance ΔL qui les sépare est bien trop grande devant leur étalement spatial. De ce fait, ce ne sont que des impulsions de lasers différents qui sont à l’origine de signaux transitoires.

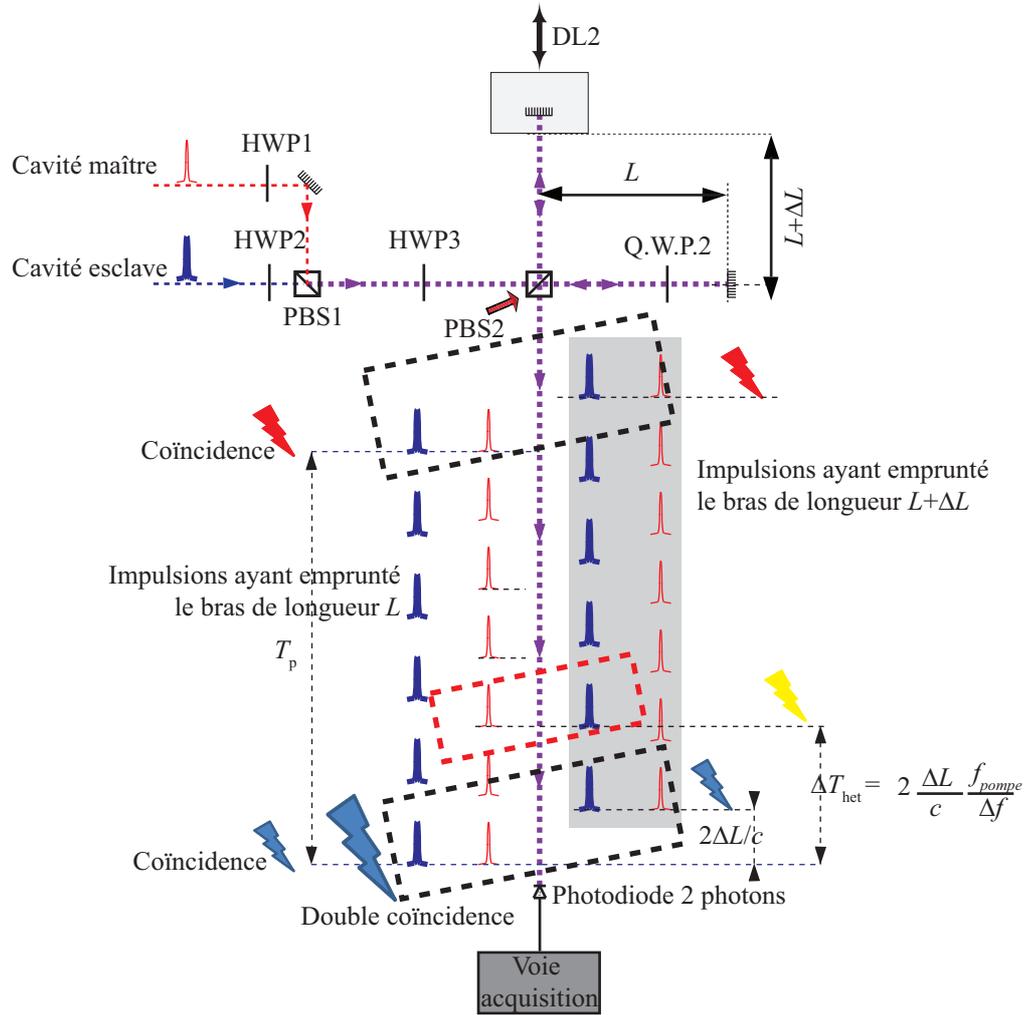


FIGURE 1.28: Principe du banc de mesure de la gigue pour différents retards pompe-sonde. Une fois recombinaison, les impulsions pompes et sondes empruntent des chemins de longueur différentes vers le photo-détecteur deux photons lequel génère des signaux électroniques à chaque coïncidence, c'est-à-dire à chaque fois que 4 impulsions lumineuses y arrivent simultanément (cadres pointillés en noir). Entre deux coïncidences, un autre signal transitoire est aussi généré : celui-ci a lieu lorsque l'impulsion sonde, en avance au niveau du cube de recombinaison PBS2 et qui emprunte le chemin le plus long, arrive en même temps que l'impulsion pompe en retard au niveau de PBS2 et qui emprunte le chemin le plus court vers la photodiode (cadre pointillé en rouge). Le temps ΔT_{het} qui sépare ces deux événements correspond alors au retard pompe-sonde dilaté dans le temps. Le retard pour lequel ΔT_{het} est mesurée, est ajustable dans le cas présent à l'aide de la platine de translation motorisée DL2.

- Le second événement a lieu au moment où l'impulsion issue du laser maître arrive avec une avance temporelle de $2\frac{\Delta L}{c}$ par rapport à celle issue du laser esclave au niveau du

second cube. Dans ce cas, l'impulsion esclave, qui passe par le bras de l'intercorrélateur le moins long rattrape l'impulsion du laser maître qui prend le chemin le plus long. Ces deux impulsions arrivent donc superposées sur la photodiode deux photons qui génère de nouveau un signal transitoire.

La durée théorique ΔT_{het} censée séparer les deux événements est directement reliée à la différence de longueur des bras de l'intercorrélateur ΔL . Pour une différence de longueur fixée, cette durée théorique est donnée par la relation :

$$\Delta T_{\text{het}} = 2 \frac{\Delta L}{c} \frac{f_{\text{pompe}}}{\Delta f} . \quad (1.47)$$

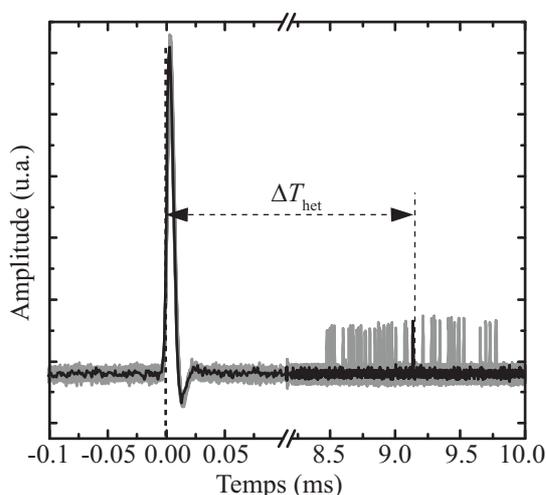
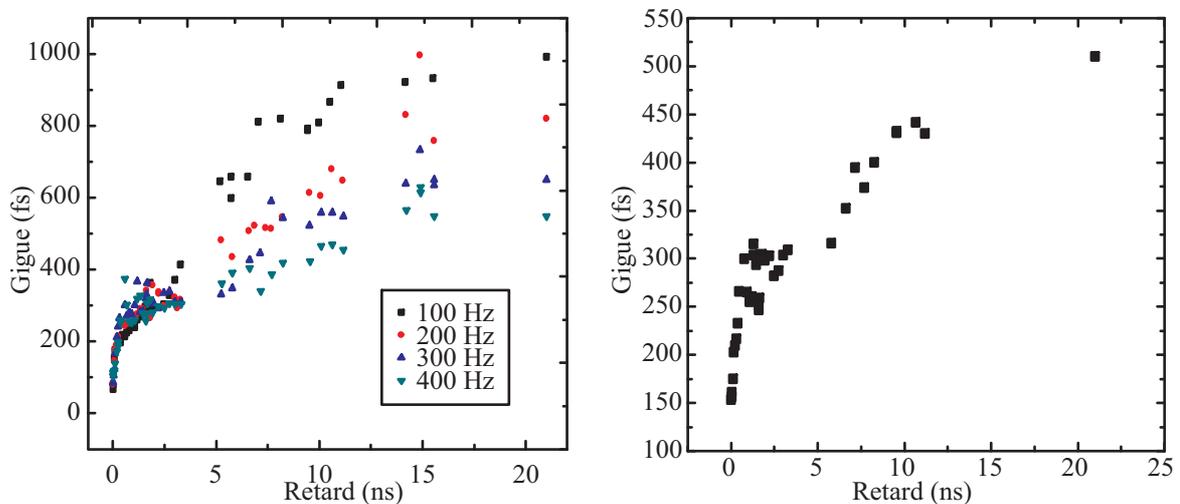


FIGURE 1.29: Signal électrique généré par la photodiode deux photons. Le pic de grande amplitude correspond à la somme des deux autocorrélations des impulsions maître/esclave ayant emprunté les mêmes chemins optiques alors que le second pic, de plus faible amplitude, correspond à l'intercorrélacion de l'impulsion maître ayant emprunté le trajet optique le plus court avec l'impulsion esclave ayant emprunté le chemin le plus long (figure 1.28). La durée qui sépare la génération des deux événements électriques fluctue. En gris, la fluctuation de ΔT est représentée pour 1000 mesures. Elle est ici accentuée, par souci illustratif, en laissant l'asservissement libre.

La mesure de plusieurs durées ΔT_{het} qui séparent les deux pics décrits précédemment, et illustrée par la figure 1.29, montre que ces valeurs fluctuent autour de ΔT . La valeur de la gigue pour un retard ΔT est définie comme l'écart-type des différentes valeurs que prend ΔT_{het} . La ligne à retard DL2 permet alors de sélectionner le retard pompe-sonde pour lequel les fluctuations pompe-sonde doivent être étudiées. Les valeurs, ramenées au temps physique sont présentées sur la figure 1.30.

Les courbes de la figure 1.30 permettent encore une fois de mettre en évidence le caractère cumulatif de la gigue de par leur caractère croissant. Elles montrent aussi que la résolution



(a) Gigue pour différentes fréquences de battement (b) Gigue pour la fréquence de battement la plus performante

FIGURE 1.30: Evolution de la gigue en fonction du retard pompe-sonde (a) pour des fréquences de battement de 100 à 400 Hz (b) pour la fréquence de battement de 500 Hz présentant les performances optimales.

temporelle théorique du banc final ne sera pas limitée, pour des petits retards pompe-sonde, par les performances de l'électronique d'asservissement du système mais plutôt par les durées des impulsions laser employées ici.

1.4.6 Conclusion

Cette section a permis de mettre en évidence la nécessité de synchroniser les sources lasers pour observer des phénomènes ultra-rapides à travers l'étude des valeurs de giges relatives et absolues des deux cavités lasers maître et esclave. En plus d'en avoir donné une quantification chiffrée, ce chapitre a permis d'illustrer à travers différentes mesures un comportement intrinsèque de la gigue, à savoir son caractère cumulatif. Ce comportement est démontré théoriquement par la formule (1.31).

De façon générale, l'étude dont il a été question dans ce chapitre a été faite sur des temps de mesure courts, de l'ordre de quelques dizaines de millisecondes (hormis pour la mesure en homodyne), négligeant par conséquent les contributions des composantes basses fréquences du bruit de phase. Il sera vu au chapitre suivant que les acquisitions sont commandées par un signal de synchronisation extrêmement précis lors des mesures pompe-sonde. Ce signal ramène la valeur de l'incertitude relative du train sonde par rapport au train pompe à 0 à intervalle régulier (en réalité à chaque coïncidence sur l'échantillon) : par conséquent les basses fréquences qui n'ont pas été étudiées ici, n'auront que peu d'influence sur le rapport

S/B des signaux mesurés.

1.5 Conclusion du chapitre

Ce premier chapitre, qui a été centré sur la source utilisée pour générer les trains d'impulsion pompe et sonde, a présenté les caractéristiques optiques des cavités lasers qui doivent être optimisées en vue d'expériences « pompe-sonde ». Parmi ces paramètres, l'astigmatisme des faisceaux, les durées des impulsions et leur séparation en longueur d'onde ont été évoquées. En plus de décrire l'influence de ces paramètres sur les mesures pompe-sonde, ce chapitre a décrit les méthodes qui permettent de les quantifier voir de les contrôler. Il a par exemple été décrit quel principe a été utilisé pour séparer les deux trains d'impulsions de plus de 15 nm en longueur d'onde dans le but de rejeter de façon optimale la pompe diffusée par l'échantillon. Cette séparation s'est faite en conservant des durées d'impulsions qui n'excèdent pas 500 fs.

Ce premier chapitre a aussi décrit les méthodes de mesure mises en œuvre afin de quantifier les performances de l'électronique d'asservissement d'une double cavité laser et ce de manière optique afin de ne pas négliger les composantes hautes fréquence du bruit de phase lors de l'estimation de la gigue temporelle relative des trains d'impulsions. Les mesures qui en ont découlé ont permis de déterminer les configurations électroniques optimales à utiliser lors de mesures pompe-sonde afin d'avoir une incertitude sur la valeur du retard pompe-sonde de quelques centaines de femtosecondes. Cette valeur de gigue permet de conclure quant aux phénomènes ultra-rapides dont l'observation est compatible avec le futur banc pompe-sonde.

En 2000, dans son manuscrit de thèse [38], Jean Paul Callan présentait une synthèse générale des effets engendrés par l'absorption d'une impulsion laser ultra-courte. Dans ce manuscrit, une figure représentait ces effets et leurs durées. Les résultats de Callan ont été combinés aux valeurs de giges mesurées et présentées dans ce chapitre. Cela permet de conclure quant aux phénomènes dont la dynamique est compatible avec les performances du t-pulse Duo. Ces phénomènes sont encadrés par des pointillés sur la figure 1.31. Les deux principales utilisations envisagées pour le banc pompe-sonde hétérodyne sont l'acoustique picoseconde et la diffusion thermique : le lecteur notera qu'ils se situent bien dans la plage des effets observables.

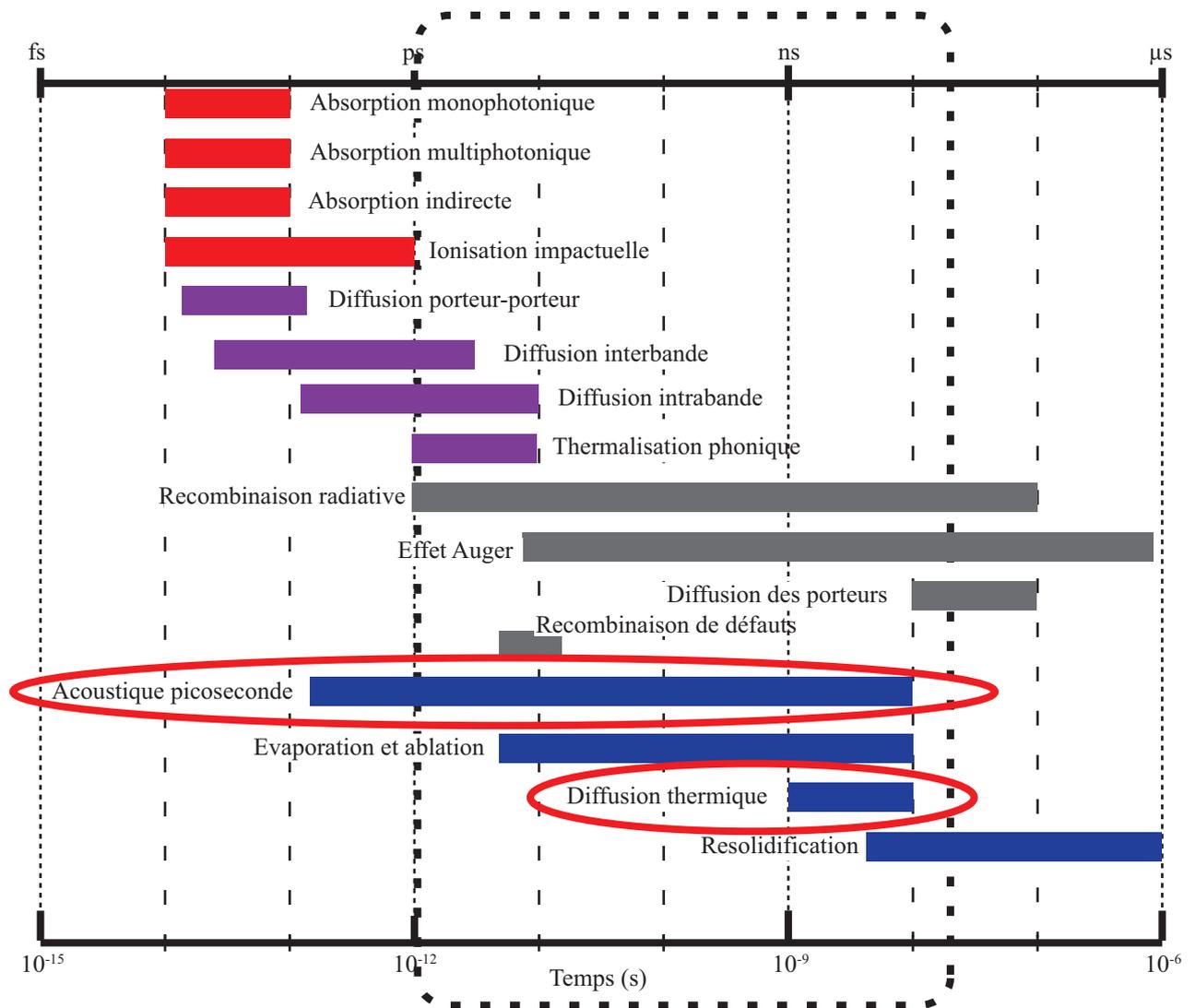


FIGURE 1.31: Temps caractéristiques des effets produits par une impulsion laser ultracourte sur la matière d'après Callan [38]. En pointillé, la fenêtre d'observation qu'autorise le banc hétérodyne aux vues de la valeur de sa gigue et de la fréquence de répétition du train d'impulsion pompe.

Chapitre 2

Apport de l'échantillonnage hétérodyne en acoustique picoseconde dans le cadre de mesures ponctuelles

Le premier chapitre de ce manuscrit de thèse a démontré la compatibilité théorique de la double cavité laser t-Pulse Duo avec les applications d'acoustique picoseconde et de nanothermique visées. Ce second chapitre illustre expérimentalement les performances du banc hétérodyne, à savoir sa résolution temporelle et sa résolution spectrale. Tout au long de cette partie, l'accent est mis plus particulièrement sur les composantes acoustiques des réponses mesurées.

Dans une première partie, la théorie de la photo-génération et de la photo-détection d'onde acoustiques par des impulsions ultra-courtes est introduite. Cette présentation théorique permet d'expliquer les signaux qui sont présentés en seconde partie de chapitre. Afin d'illustrer les performances du banc et l'apport de l'échantillonnage hétérodyne en acoustique picoseconde, deux études de réflectivité transitoire sont présentées dans cette seconde partie. La première sur un échantillon composée d'une fine couche de tungstène déposée sur un substrat de silicium permet de montrer que le système est apte à détecter des signaux dont les fréquences s'étendent au delà de la centaine de gigahertz. La seconde étude, réalisée quant à elle en observant les oscillations Brillouin, permet de conclure quant à l'apport de l'échantillonnage hétérodyne lors de l'estimation de la durée de phénomènes de relaxation. Pour illustrer cet apport, il est montré que l'observation des oscillations Brillouin dans la silice sur une large fenêtre temporelle permet d'avoir un accès direct au temps de vie des phonons dans ce matériau. Cet accès direct est autorisé par le taux de répétition relativement bas des sources lasers employées dans le banc pompe-sonde combiné à la très bonne résolution temporelle que possèdent les signaux enregistrés.

2.1 Principe de l'acoustique picoseconde

L'acoustique picoseconde permet depuis les années 80 [4, 39] de générer et de détecter des ondes acoustiques au contenu spectral très élevé, ce qui autorise la caractérisation de matériaux aux dimensions nanométriques. De façon générale, les recherches en acoustique picoseconde se sont d'abord focalisées sur l'étude d'échantillons simples, composés d'une couche mince, puis sur des échantillons multicouches permettant de générer et de détecter des ondes de plusieurs centaines de gigahertz [40, 41] voire de plusieurs terahertz [21, 42].

Cette section va présenter les bases théoriques sur lesquelles reposent la méthode et dont la maîtrise est nécessaire à l'interprétation des signaux.

2.1.1 Description de la génération d'une onde acoustique par absorption d'une impulsion laser

Afin d'être en mesure de générer une onde acoustique, l'absorption lumineuse doit se faire dans un milieu qui contient un grand nombre de porteurs de charge libres aptes à convertir l'énergie des impulsions lumineuses en énergie thermique. La génération photo-élastique se fait donc généralement dans des métaux ou des semi-conducteurs. S'il est nécessaire de générer une onde élastique dans un diélectrique, une fine couche de métal absorbante peut y être déposée afin de servir de transducteur photo-élastique. Dans le cadre de cette thèse, les matériaux utilisés à cet effet sont des métaux : c'est donc dans cette famille de matériaux que la génération va être décrite.

A l'échelle microscopique, lors de l'absorption d'une impulsion lumineuse par un métal, les photons transfèrent leur énergie aux électrons présents dans la zone éclairée. Il en résulte une élévation de la température électronique locale [43]. Le transfert de l'énergie des électrons au réseau atomique se fait ensuite sur une durée de quelques picosecondes [43] par collisions inélastiques des porteurs de charge excités avec les phonons du réseau. Ces collisions se traduisent par la mise en mouvement des atomes du réseau entraînant la génération d'une onde acoustique.

La génération d'une onde élastique induite par l'absorption d'une onde lumineuse est souvent décrite à l'aide d'une approche macroscopique [4, 5, 39]. C'est cette approche qui est exposée ici. A cette échelle, l'absorption d'une impulsion est décrite comme une élévation brutale de la température de la zone excitée par l'impulsion pompe. Cette élévation de température provoque alors une dilatation de la zone affectée. L'apparition de contraintes induites par ce changement de volume est responsable de la génération d'ondes acoustiques.

Si la durée de l'impulsion pompe est très courte devant le temps caractéristique des phénomènes de diffusion thermique, alors le volume d'absorption de l'impulsion n'est pas affecté par ces phénomènes de diffusion. La répartition par unité de volume $W(x_1, x_2, x_3, t)$

de l'énergie déposée par l'impulsion pompe incidente dans la configuration spatiale illustrée par la figure 2.1 peut alors être donnée par [39, 44] :

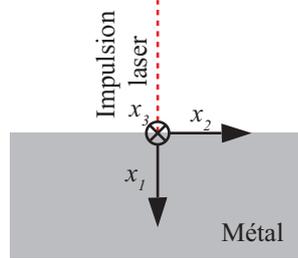


FIGURE 2.1: Configuration géométrique du problème.

$$W(x_1, x_2, x_3, t) = (1 - r_0) \frac{QS(x_2, x_3)}{\xi} e^{-\frac{x_1}{\xi}} H(t), \quad (2.1)$$

où :

- r_0 est le coefficient de réflexion optique du matériau considéré,
- Q l'énergie de l'impulsion,
- ξ la profondeur de pénétration du faisceau optique,
- $H(t)$ est la distribution de Heaviside,
- $S(x_2, x_3)$ la distribution de l'intensité de la pompe sur l'échantillon. Pour un profil de faisceau gaussien TEM₀₀ :

$$S(x_2, x_3) = \frac{1}{2\pi\sigma_{x_2}\sigma_{x_3}} e^{-\frac{x_2^2+x_3^2}{4(\sigma_{x_2}^2+\sigma_{x_3}^2)}}, \quad (2.2)$$

où σ_{x_2} , σ_{x_3} sont les dimensions de la tâche focale du laser respectivement dans les directions x_2 et x_3 .

Le dépôt d'énergie conduit alors à une élévation de la température due au transfert de l'énergie des porteurs de charge au réseau cristallin. Cette thermalisation se fait sur une durée de quelques picosecondes [43, 45]. S'ensuit alors une élévation de la température ΔT qui est reliée à la capacité calorifique du réseau C_v et à l'énergie déposée par unité de volume $W(x_1, x_2, x_3)$ par la relation :

$$\Delta T(x_1, x_2, x_3, t) = \frac{W(x_1, x_2, x_3, t)}{C_v}. \quad (2.3)$$

La dilatation induite par cette élévation brutale de température ΔT est à l'origine d'une contrainte thermique σ_{ij}^{th} . La convention de sommation sur les indices répétés permet de relier cette contrainte aux tenseurs d'élasticité c_{ijkl} et de dilatation thermique β_{kl} par la relation :

$$\sigma_{ij}^{\text{th}} = -c_{ijkl}\beta_{kl}\Delta T. \quad (2.4)$$

L'équation fondamentale d'élasticité lie l'accélération $\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2}$ dans la direction i d'un volume infinitésimal d'un matériau de masse volumique ρ au gradient des contraintes σ^{tot} qui lui sont appliquées par :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{ij}^{\text{tot}}}{\partial x_j} . \quad (2.5)$$

Où σ^{tot} contient deux contributions : la première σ^{mec} exprime un écart à l'équilibre de la tranche considérée tandis que la seconde n'est autre que σ_{ij}^{th} . En dissociant les deux contraintes selon leur origine, l'expression (2.5) devient :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\sigma_{ij}^{\text{mec}} + \sigma_{ij}^{\text{th}} \right] \quad (2.6)$$

En développant σ_{ij}^{mec} à l'aide de la loi de Hooke, et en exprimant σ_{ij}^{th} à l'aide de son expression présentée dans l'équation (2.4), il vient :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[c_{ijkl} \frac{\partial u_l}{\partial x_k} - c_{ijkl} \beta_{kl} \Delta T \right] \quad (2.7)$$

Dans le cas de milieux homogènes, $\frac{\partial c_{ijkl}}{\partial x_j} = \frac{\partial \beta_{ij}}{\partial x_j} = 0$. L'équation (2.7) devient :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \left[\frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} - \beta_{kl} \frac{\partial \Delta T}{\partial x_j} \right] . \quad (2.8)$$

Le champ de déplacement obéit donc à une équation d'onde dont le terme source a pour origine un gradient thermique.

Avant d'aller plus loin, quelques considérations physiques doivent être prises en compte. En effet, même avec une focalisation très forte, la dimension caractéristique de la surface éclairée par le laser pompe est donnée par la limite de diffraction optique qui est de l'ordre du micromètre carré aux vues des longueurs d'onde optiques mises en jeu. Les dimensions caractéristiques de la tâche focale restent donc grandes devant la profondeur de pénétration optique qui n'excède généralement pas quelques dizaines de nanomètres dans les matériaux qui servent de transducteurs photo-élastique [44]. De ce fait, puisque les durées d'impulsions sont ici très brèves (de l'ordre de la centaine de femtosecondes) et que la diffusion électronique est négligée, la diffraction acoustique qui peut apparaître lorsque les ordres de grandeur de la tâche focale de l'échantillon et de la pénétration optique deviennent voisins [46] peut être ici ignorée.

La figure 2.2(a) illustre l'élévation de la température dans le plan (x_1, x_2) suite à l'absorption d'une impulsion laser pompe dans un échantillon de tungstène. Le profil, décroissant exponentiellement, de cette température est illustré sur la figure 2.2(b). Le calcul présenté ici a été réalisé à l'aide des propriétés optiques de ce matériau disponibles sur le site internet de l'institut IOFFE [47]. Cette pénétration de 50 nm environ permet de montrer que la température peut être considérée comme uniforme, en première approximation, dans les

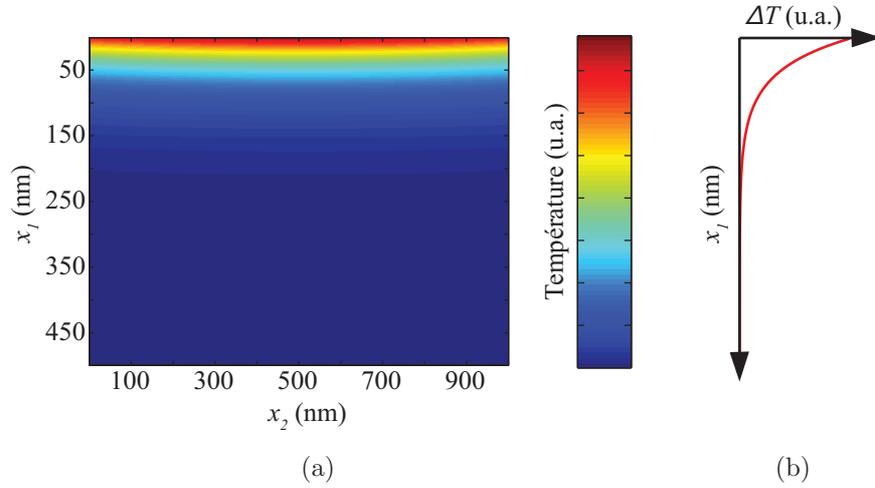


FIGURE 2.2: *Élévation de la température dans un échantillon de tungstène : (a) alors que les longueurs caractéristiques de la surface irradiée sont de l'ordre du micron, le flux lumineux ne pénètre pas à plus de quelques dizaines de nanomètres du fait de l'absorption optique élevée de ce matériau. (b) profil de la température en fonction de la profondeur. L'illustration est réalisée en utilisant les données de l'institut IOFFE [47]*

directions transverses au faisceau laser incident (ici les directions x_2 et x_3). Par conséquent les composantes du gradient de température selon ces deux directions sont nulles :

$$\frac{\partial \Delta T}{\partial x_2} = \frac{\partial \Delta T}{\partial x_3} = 0 . \quad (2.9)$$

Cette dernière considération permet de se ramener à un problème unidimensionnel :

$$c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} = c_{1jikl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_1^2} . \quad (2.10)$$

De même, comme il sera vu dans la partie 2.1.2, seule la déformation dans la direction x_1 de la face normale au vecteur x_1 peut être détectée lors d'expériences pompe-sonde. Par conséquent, dans la suite de ce travail seul l'indice $l = 1$ sera considéré. le tenseur de dilatation β_{kl} peut s'écrire $\beta \delta_{kl}$. L'équation (2.11) devient alors[48] :

$$\rho \frac{\partial^2 u_1}{\partial t^2} = c_{1111} \left[\frac{\partial^2 u_1}{\partial x_1^2} - \beta_{11} \frac{\partial \Delta T}{\partial x_1} \right] . \quad (2.11)$$

L'équation de la propagation d'onde peut alors s'écrire sous la forme :

$$\frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 u_1}{\partial t^2} = \left(\frac{\partial^2 u_1}{\partial x_1^2} - \beta \frac{\partial \Delta T}{\partial x_1} \right) , \quad (2.12)$$

avec $v = \sqrt{\frac{c_{1111}}{\rho}}$ la célérité des ondes longitudinales.

Dans ce chapitre, l'onde est détectée par effet élasto-optique, comme il est développé dans la partie 2.1.2. Ce dernier est proportionnel non pas au déplacement qu'engendre la perturbation acoustique mais à la déformation η dont elle est à l'origine. Cette déformation, dans le cadre d'un problème unidimensionnel, est définie comme la dérivée spatiale du déplacement ($\eta_{11} = \frac{\partial u_1}{\partial x_1}$). L'équation qui régit la propagation d'une déformation est obtenue en dérivant spatialement l'équation (2.12) :

$$\frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 \eta_{11}}{\partial t^2} = \left[\frac{\partial^2 \eta_{11}}{\partial x_1^2} - \beta \frac{\partial^2 \Delta T}{\partial x_1^2} \right]. \quad (2.13)$$

La résolution de cette équation conduit à l'expression de la déformation [44] :

$$\eta_{11}(x_1, t) = \frac{(1-r) S(x_2, x_3) Q \beta}{2 \xi C_v} \left[\underbrace{(2 - e^{-\frac{vt}{\xi}}) e^{-\frac{x_1}{\xi}}}_a - \underbrace{\text{sgn}(x_1 - vt) e^{-\frac{\|x_1 - vt\|}{\xi}}}_b \right] \quad (2.14)$$

Cette équation montre que la déformation est composée de deux termes :

1. Le premier terme (a) correspond à la déformation induite par la dilatation thermique du milieu. Du fait que la diffusion thermique soit négligée dans le modèle présenté ici et que la pénétration optique dans les matériaux servant de transducteur photo-élastique soit de l'ordre du nanomètre, le terme vt devient très vite grand devant la profondeur de pénétration optique ξ . Le terme (a) peut donc être considéré comme statique au bout de quelques picosecondes.
2. Le second terme (b) décrit non seulement la forme dipolaire de la perturbation acoustique mais aussi l'influence que la pénétration optique a sur l'étalement spatial de l'onde acoustique générée. La figure 2.3, extraite d'une publication de C. Thomsen et al. [39], illustre cette influence.

2.1.2 Détection des perturbations physiques générées

Comme il a été vu précédemment, la génération d'une onde acoustique n'est pas le seul phénomène engendré par l'absorption d'une impulsion lumineuse. Cette absorption s'accompagne aussi, comme le montre l'équation (2.3), d'une élévation locale de la température et d'un déplacement statique de la surface illustré par l'équation (2.14) et la figure 2.3. Tous ces phénomènes physiques ont pour effet de modifier la réponse optique globale de l'échantillon. Cette modification entraîne alors, entre autres, une modification du coefficient de réflectivité de ce dernier. La variation relative du coefficient de réflectivité en amplitude $\frac{\Delta \tilde{r}(t)}{r_0}$ de l'échantillon est liée au déplacement de surface $u(0, t)$, à la longueur d'onde de la sonde λ_{sonde} , aux coefficients photo-élastique et photo-thermique, respectivement $\frac{\partial n}{\partial \eta}$ et $\frac{\partial n}{\partial T}$, à la variation de la température ΔT par [39, 13] :

$$\frac{\Delta \tilde{r}(t)}{r_0} = \underbrace{4\pi \frac{u(0, t)}{\lambda_{\text{sonde}}}}_a + \int_0^\infty \left[\underbrace{\frac{\partial n}{\partial \eta} \eta(x_1, t)}_b + \underbrace{\frac{\partial n}{\partial \Delta T} \Delta T(x_1, t)}_c \right] dx_1, \quad (2.15)$$

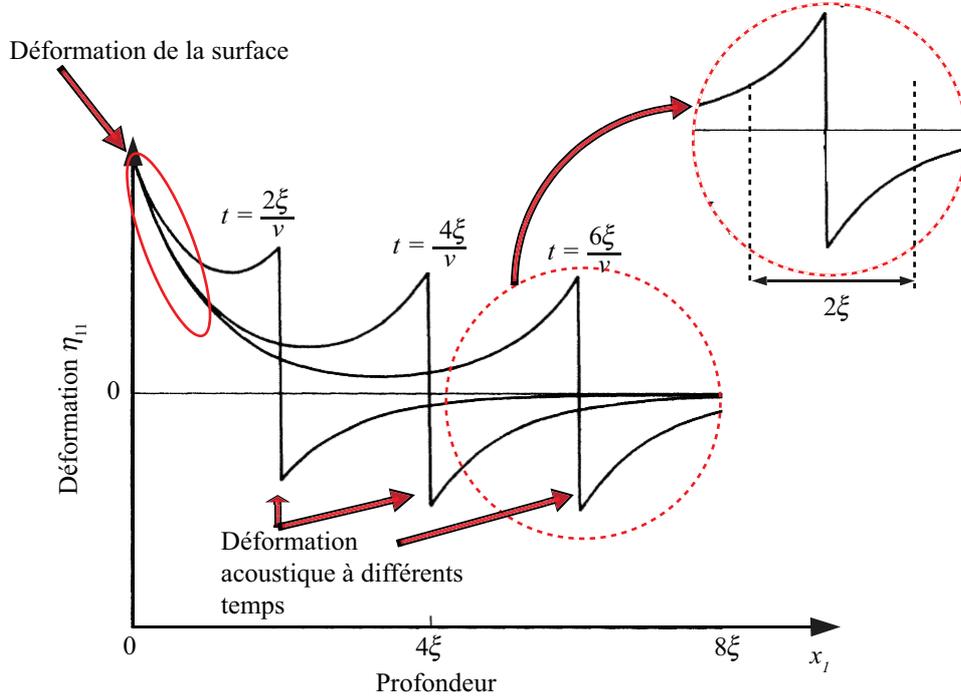


FIGURE 2.3: Profil spatial de la déformation suivant l'axe x_1 de l'espace pour différents temps. Cette déformation possède une forme dipolaire. En insert : l'étalement spatial de l'onde acoustique généré dépend de la profondeur de pénétration optique ξ de l'impulsion pompe. Figure extraite de [39].

Trois termes composent l'expression du changement relatif de réflectivité. Le premier terme (a) traduit l'effet qu'engendre le déplacement de la surface éclairée par la sonde sur la partie imaginaire du coefficient de réflectivité du matériau : cette dernière se voit modifiée d'une quantité proportionnelle au rapport du déplacement de surface considéré $u(0, t)$ sur la longueur d'onde optique λ_{sonde} de la sonde. L'origine de ce terme sera détaillée au paragraphe 2.1.2.1 qui suit. Le second terme (b) de l'équation (2.15), placé sous l'intégrale, illustre quant à lui l'influence qu'une déformation $\eta(x_1, t)$ a sur les propriétés optiques d'un matériau à travers son coefficient de couplage élasto-optique $\frac{\partial n}{\partial \eta}$. Les origines de la perturbation d'un champ optique par un champ acoustique seront développées dans la partie 2.1.2.2. Enfin le dernier terme (c) traduit la conséquence d'une élévation de la température de l'échantillon sur son coefficient de réflexion $r(t)$ du fait du couplage thermo-optique. L'étude de ce dernier terme n'est pas développée dans ce manuscrit axé sur l'étude des composantes acoustiques des signaux mais le lecteur gardera à l'esprit son existence.

2.1.2.1 Déphasage de l'onde électromagnétique réfléchié induit par un déplacement de surface

Le premier terme de l'équation (2.15) est purement imaginaire. Il exprime le déphasage subi par une onde électromagnétique (ici la sonde) $E'_r(t, z)$ réfléchié par une surface ayant

subi un déplacement $u(0, t)$ par rapport à une même onde $E_r(t, z)$ réfléchiée par la surface au repos. Ce point est illustré par la figure 2.4. La différence de marche entre les deux ondes mentionnées précédemment est donnée par $2u(0, t)$. Cette différence de marche conduit à la relation de phase entre les deux ondes $E'_r(t, z)$ et $E_r(t, z)$:

$$E'_r(t, z) = E_r(t, z)e^{2ik_0u(0, t)} . \quad (2.16)$$

En acoustique picoseconde, les déplacements de la surface, de l'ordre de quelques dizaines de picomètres [49], sont petits devant les longueurs d'onde optiques mises en jeu (de l'ordre du micromètre) : le produit $k_0u(0, t)$ est très petit devant 1. Un développement limité peut donc être effectué et conduit à :

$$E'_r(t, z) \sim E_r(t, z)[1 + 2ik_0u(0, t)] . \quad (2.17)$$

En considérant des ondes planes de pulsation ω et de vecteur d'onde k arrivant sur l'échantillon avec une incidence normale et en notant $E_r(t, z) = E_0^r e^{j(\omega t + kz)}$, la relation qui lie l'onde incidente $E_i = E_0 e^{j(\omega t - kz)}$ à l'onde réfléchiée $E_r(t, z)$ est donnée par :

$$E_r(t, z) = r E_0 e^{j(\omega t + kz)} , \quad (2.18)$$

où r est le coefficient de réflexion à l'interface considérée. En combinant les équations (2.17) et (2.18), il vient :

$$E'_r(t, z) \sim r E_0 e^{j(\omega t + kz)} [1 + 2ik_0u(0, t)] \quad (2.19)$$

Par conséquent, la variation relative du coefficient de réflexion de l'onde sur une surface perturbée est donnée par la relation :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta r_{\text{déplacement}}(t)}{r} &\sim \frac{(r[1 - 2jk_0u(0, t)] - r)}{r} \\ &\sim 2ik_0u(0, t) \\ &\sim 4i\pi \frac{u(0, t)}{\lambda} . \end{aligned} \quad (2.20)$$

En étudiant la phase de l'onde réfléchiée, les déplacements de surface peuvent être déduits. La description des méthodes expérimentales mises en œuvre pour détecter ces déplacements est présentée dans la partie 3.1.3 qui décrit le protocole utilisé pour imager la propagation d'ondes acoustiques de surface.

2.1.2.2 Détection de l'onde élastique dans le matériau étudié : la diffusion Brillouin

Le second terme (b) de l'équation 2.15 décrit la variation de réflectivité d'un échantillon qui est parcouru par une perturbation acoustique. Ce terme traduit le lien qu'il y a entre les

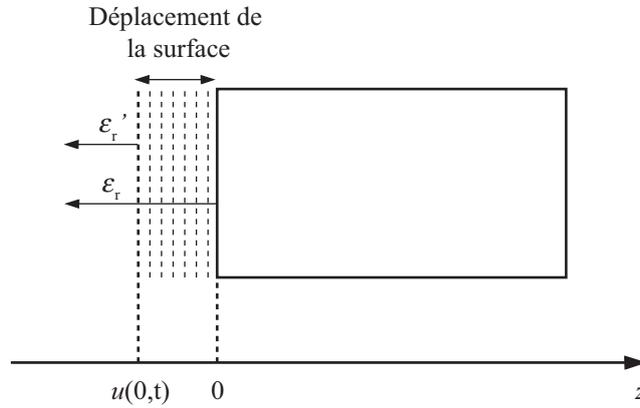


FIGURE 2.4: Le champs électrique $E_r(t, z)$ réfléchi par un échantillon dont la surface est au repos et le champs électrique $E'_r(t, z)$ réfléchi lorsque la surface s'est déplacée d'une quantité $u(0, t)$, sont déphasés de $\frac{4\pi}{\lambda}u(0, t)$.

propriétés optiques d'un matériau et ses propriétés élastiques à travers son coefficient de couplage élasto-optique $\frac{\partial n}{\partial \eta}$. Les manifestations les plus spectaculaires de ce couplage apparaissent dans les expériences de photoélasticimétrie. Cette modification locale d'indice crée une rupture d'impédance optique, équivalente à une interface, qui se déplace dans l'échantillon à la vitesse de l'onde acoustique générée par l'impulsion pompe. Une partie du faisceau sonde se réfléchit alors sur cette interface virtuelle. Dans les expériences d'acoustique picoseconde, les variations d'indice optique dues au couplage élasto-optique sont très faibles (de l'ordre de 10^{-6})[50].

A l'échelle microscopique, la diffusion des photons par des phonons acoustiques est à l'origine du couplage élasto-optique. L'interaction entre un photon et un phonon dont la fréquence est inférieure à la dizaine de terahertz peut être décrite à l'aide du traitement classique de collision entre ces deux particules élémentaires [51, 52] présenté ci-dessous.

2.1.2.2.1 Règle de sélection

La diffusion de la lumière par un phonon qui conduit à la détection du champ de contrainte propagatif ne se fait pas dans n'importe quelle condition : il existe une règle de sélection que décrit ce paragraphe.

Tout d'abord, il faut considérer trois particules : le photon incident, le photon réfléchi et le phonon diffuseur. Ces trois particules ont pour énergies respectives ε_{ψ_i} , ε_{ψ_r} et ε_p et pour vecteurs d'onde respectifs \vec{k}_{ψ_i} , \vec{k}_{ψ_r} et \vec{k}_p .

Les règles de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement permettent d'écrire :

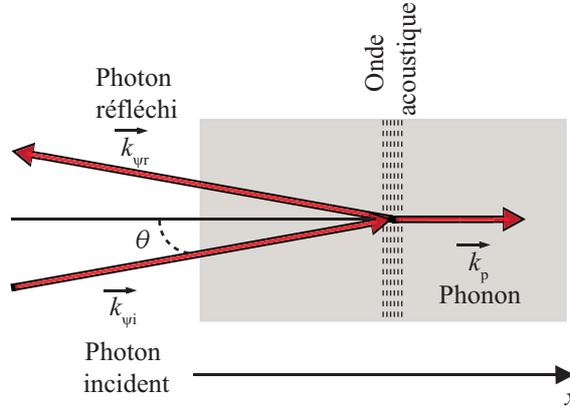


FIGURE 2.5: La diffusion Brillouin peut être décrite comme un mécanisme de collision inélastique entre deux particules élémentaires : un photon et un phonon.

$$\varepsilon_{\psi i} = \varepsilon_{\psi r} + \varepsilon_p \quad (2.21)$$

$$\vec{k}_{\psi i} = \vec{k}_{\psi r} + \vec{k}_p . \quad (2.22)$$

Les modules des vecteurs d'onde des photons, illustrés par la figure 2.5, sont liés à l'indice optique n du milieu et à leur longueur d'onde dans le vide λ_i et λ_r par la relation :

$$k_{\psi i} = \frac{2\pi n}{\lambda_i} , \quad k_{\psi r} = \frac{2\pi n}{\lambda_r} . \quad (2.23)$$

La longueur d'onde λ_p du phonon considéré ici est quant à elle donnée par :

$$k_p = \frac{2\pi}{\lambda_p} . \quad (2.24)$$

Dans la diffusion Brillouin, les phonons mis en jeu sont acoustiques. Leurs fréquences, et par conséquent leurs énergies, sont négligeables devant celles des photons. Il vient en utilisant la relation (2.21) que $k_{\psi i} \sim k_{\psi r}$. En prenant en compte cette dernière considération, en notant k_ψ le nombre d'onde et λ_ψ la longueur d'onde des photons, en projetant sur l'axe des abscisses x et en utilisant la relation (2.22), la règle de sélection Brillouin peut être déduite :

$$k_p = 2k_\psi \cos(\theta) = \frac{4\pi n}{\lambda_\psi} \cos(\theta) . \quad (2.25)$$

Pour des phonons de basse fréquence¹, la relation qui lie le module du vecteur k_p , la fréquence f_p et la célérité v_p de l'onde acoustique est donnée par :

1. Autrement dit les phonons de centre de zone de Brillouin.

$$k_p = \frac{2\pi f_p}{v_p} . \quad (2.26)$$

En utilisant cette dernière relation, l'équation (2.25) devient :

$$f_p = \frac{2nv_p}{\lambda_\psi} \cos(\theta) . \quad (2.27)$$

De cette équation, il faut comprendre que la lumière n'est pas rétro-diffusée par n'importe quelle composante spectrale d'une perturbation acoustique mais seulement par celle dont la fréquence satisfait l'équation (2.27).

2.1.2.2 Détection du champ électromagnétique rétro-diffusé.

L'onde électromagnétique rétro-diffusée par le front d'onde acoustique n'est pas la seule à être réfléchiée vers le photo-détecteur. En effet les différentes interfaces de l'échantillon (surface libre, interface couche/transducteur) sont à l'origine de ruptures d'impédance électromagnétiques qui réfléchissent l'onde lumineuse incidente. Le détecteur mesure alors des interférences entre les ondes électromagnétiques réfléchies aux interfaces de l'échantillon et celle rétro-diffusée par le front d'onde acoustique qui se déplace à la vitesse v_p . Cela se traduit alors par une oscillation de la réflectivité transitoire à la fréquence f_b donnée par la relation (2.27).

Quelques considérations physiques sont cependant à prendre en compte pour être en mesure d'observer ces oscillations :

- La pénétration optique doit être au moins supérieure à la longueur d'onde des ondes acoustiques générées : dans le cas contraire le champ acoustique n'est détecté qu'au voisinage de la surface comme il sera vu dans la partie 2.3.1.
- Pour pouvoir interférer les impulsions doivent se chevaucher dans le domaine spatial : des impulsions de 100 fs séparées de plus de 30 μm ne pourront ainsi jamais interférer et créer des oscillations Brillouin.
- Il faut que le coefficient de couplage élasto-optique $\frac{\partial n}{\partial \eta}$ soit suffisamment grand.

2.2 Description du banc pompe-sonde hétérodyne

Cette partie du manuscrit présente le banc d'acoustique picoseconde assemblé dans le cadre de cette thèse. Pour pouvoir étudier la réponse transitoire d'un l'échantillon deux trains d'impulsions doivent y être focalisés : le train d'impulsions pompe, qui excite de façon périodique l'échantillon, et le train d'impulsions sonde, qui permet de mesurer la variation du coefficient de réflectivité de l'échantillon. C'est à partir de cette variation que les propriétés physiques de l'échantillon sont déduites. La figure 2.6 décrit le banc mis en place à cette fin.

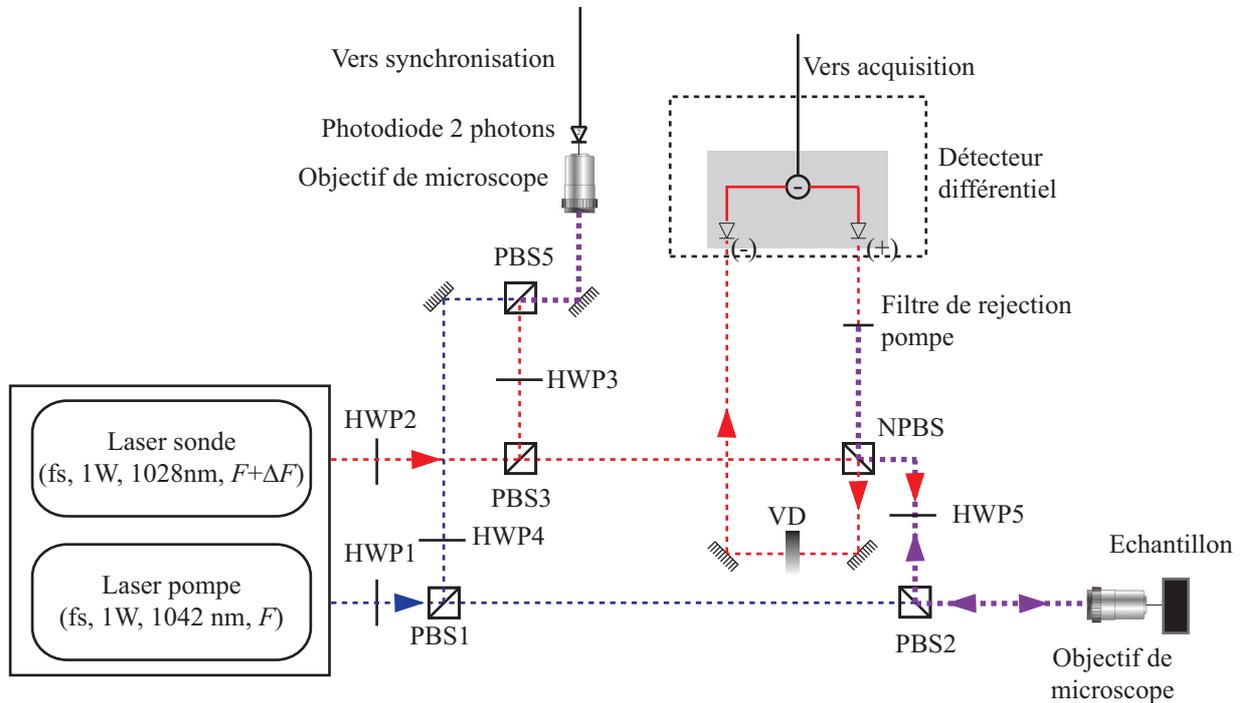


FIGURE 2.6: Schéma du banc pompe sonde hétérodyne. Les faisceaux pompe et sonde sont recombinés avant d'atteindre d'une part l'échantillon étudié et d'autre part la photodiode deux photons qui génère les signaux de synchronisation. L'utilisation d'un détecteur différentiel permet de s'affranchir des fluctuations éventuelles de puissance de la sonde. Pour les légendes se référer à la figure 1.14 et VD : densité variable, NPBS : cube non polarisant.

2.2.1 Montage optique globale

Dans le banc considéré (figure 2.6), l'impulsion issue du laser pompe traverse un premier ensemble optique composé de la lame demi-onde HWP1 et du cube polarisant PBS1. L'association de ces deux optiques permet de choisir la quantité d'énergie de l'impulsion envoyée respectivement vers les cubes PBS2 et PBS5. L'impulsion sonde quant à elle traverse un autre ensemble optique composé d'une lame demi-onde HWP2 et d'un cube polarisant PBS3 dont la fonction est analogue à l'ensemble {HWP1-PBS1} pour l'impulsion pompe.

Les fractions d'impulsions sonde et pompe réfléchies par les cubes PBS1 et PBS3 sont dirigées vers le cube de recombinaison PBS5. Celui-ci permet de superposer les faisceaux pompe et sonde de façon à ce que la focalisation de ceux-ci se fasse au même endroit sur la photodiode deux photons. Associé aux lames demi-onde HWP3 et HWP4, ce cube permet d'ajuster les énergies des impulsions à focaliser sur le photodétecteur. La photodiode deux photons, qui a été présentée en partie 1.4.2.2, génère un signal électronique transitoire à chaque fois que deux impulsions pompe et sonde y arrivent superposées temporellement, c'est-à-dire à chaque période de battement.

La part de l'impulsion sonde transmise par le cube PBS3 passe par le cube non polarisant NPBS qui en réfléchit environ 50% vers l'entrée négative (-) d'un photodétecteur différentiel. La part de sonde transmise est dirigée vers le second cube PBS2 de recombinaison du montage. Ce cube associé à la lame demi-onde HWP5 permet d'ajuster l'énergie de l'impulsion sonde à focaliser sur l'échantillon. La focalisation se fait sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de microscope. La surface de l'échantillon, orthogonale au trajet des faisceaux incidents, réfléchit la sonde. L'impulsion sonde passe une nouvelle fois par le cube NPBS qui en oriente environ 50% vers l'entrée positive (+) du photodétecteur différentiel. Un filtre interférentiel permet de rejeter la pompe diffusée par l'échantillon.

Afin d'équilibrer les voies (-) et (+) du détecteur différentiel, une densité variable VD est utilisée sur la voie (-). L'acquisition de la tension en sortie du détecteur différentiel est déclenchée à chaque fois que la photodiode deux photons génère un signal transitoire, c'est à dire à chaque coïncidence pompe-sonde sur la voie de déclenchement.

2.2.2 Voie de synchronisation

En acoustique picoseconde, le moyennage d'acquisitions est nécessaire afin d'augmenter le rapport signal sur bruit des mesures. Cette sommation n'est possible que si les acquisitions possèdent le même référentiel temporel. A cette fin, un signal de synchronisation doit être généré. Ce signal peut être soit d'origine électronique[21], soit d'origine optique[6, 53]. Dans le cadre de cette thèse, il a été choisi d'utiliser un signal de synchronisation d'origine optique en ayant recours à une photodiode deux photons. Cette photodiode, dont la description approfondie a été réalisée en partie 1.4.2.2, génère une impulsion électronique à chaque fois que les impulsions pompe et sonde y arrivent superposées temporellement. Le choix d'une synchronisation optique a été motivé par la performance de cette méthode[6, 22].

La coïncidence sur l'échantillon et sur la photodiode n'a pas nécessairement lieu au même moment, et la durée $\delta_{\text{coïn}}$ qui sépare ces deux instants est donnée par :

$$\delta_{\text{coïn}} = \frac{(L_{\text{P-D}} - L_{\text{P-E}}) - (L_{\text{S-D}} - L_{\text{S-E}}) f_{\text{pompe}}}{c \Delta f} \quad (2.28)$$

avec :

- $L_{\text{P-D}}$ le chemin optique entre la sortie du laser pompe et la photodiode deux photons.
- $L_{\text{P-E}}$ le chemin optique entre la sortie du laser pompe et l'échantillon.
- $L_{\text{S-D}}$ le chemin optique entre la sortie du laser sonde et la photodiode deux photons.
- $L_{\text{S-E}}$ le chemin optique entre la sortie du laser sonde et l'échantillon.

Comme il a été vu dans la chapitre précédent, la résolution temporelle baisse avec l'augmentation du retard pompe-sonde. Les informations que véhiculent les signaux acquis sont généralement situées juste après la coïncidence. Pour optimiser le banc, il faut donc que la coïncidence sur la photodiode (coïncidence électronique) ait lieu juste avant la coïncidence sur l'échantillon (coïncidence optique). De ce fait, les distances mentionnées ci-dessus doivent être choisies afin que la différence $(L_{\text{P-D}} - L_{\text{P-E}})$ soit légèrement inférieure à $(L_{\text{S-D}} - L_{\text{S-E}})$.

2.2.3 Le photodétecteur

Le photodétecteur utilisé est de type différentiel (Thorlabs PDB150C). Le principe de fonctionnement général de ce détecteur est illustré par la figure 2.7 extraite de la documentation du constructeur [54]. Comme il est illustré sur la figure 2.6, avant d'arriver à l'échantillon, une partie de l'énergie de l'impulsion sonde est prélevée. Cette partie est alors soustraite à la portion de sonde réfléchi par l'échantillon. Utiliser une détection différentielle permet de s'affranchir en partie de la fluctuation de l'intensité du laser sonde[55]. De plus cela permet de ramener les niveaux des signaux moyens au voisinage de 0 et de profiter du pas de quantification minimum de la carte d'acquisition. La différence des signaux est amplifiée par deux étages : un premier transimpédance et un second proportionnel. Le gain du détecteur peut être ajusté par l'utilisateur, il a évidemment une influence directe sur la bande passante du système. Les mesures présentées dans ce document sont réalisées avec un gain transimpédance de 10^6 V/A et une bande passante de 300 kHz.

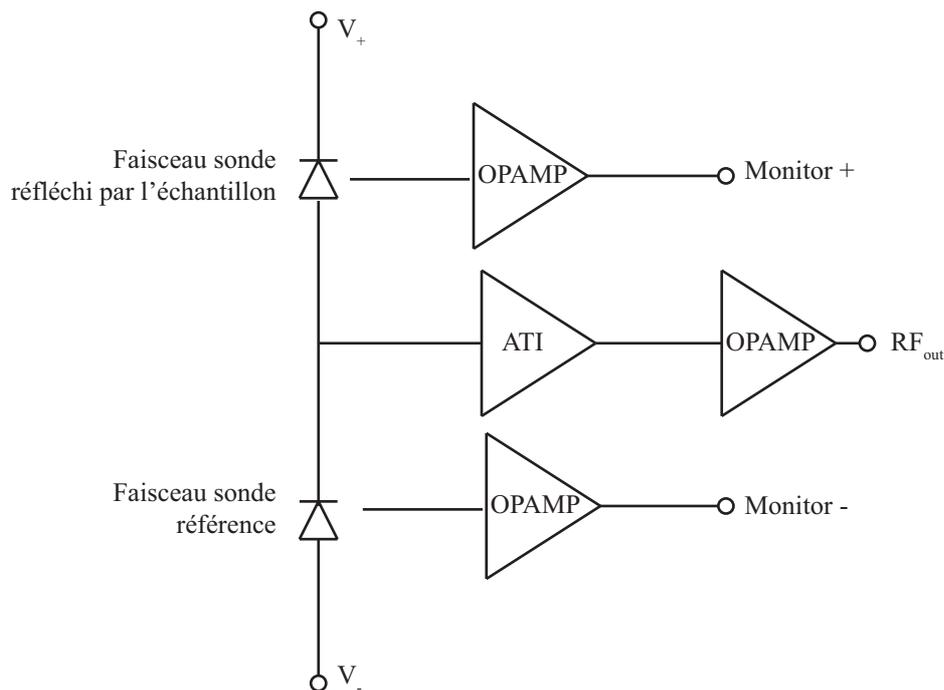


FIGURE 2.7: Le détecteur différentiel est composé de deux photodiodes montées tête-bêche. L'intensité du signal qui résulte de ce montage est la différence des intensités issues de chaque photodiode. Ce signal est alors amplifié par un étage transimpédance puis par un étage proportionnel. Légende : OPAMP : amplificateur opérationnel, ATI : amplificateur transimpédance. Source : [54]

2.3 Mesures réflectométriques hautes fréquences et hautes résolutions spectrales

Afin d'illustrer la bande passante et la résolution spectrale du banc de mesure hétérodyne, la mesure de réflectivité transitoire de deux échantillons est ici réalisée. La bande passante du système est illustrée ici au travers de la réponse acoustique d'une fine couche de tungstène. En ce qui concerne la résolution spectrale, celle-ci sera mise en avant par la mesure du temps de vie des phonons dans la silice.

2.3.1 Composantes hautes fréquences de la réponse acoustique d'une couche nanométrique de tungstène

Alors que le premier chapitre de ce manuscrit de thèse se conclue en affirmant, suite à l'étude de la valeur de la gigue, que le banc est apte à mesurer en théorie des signaux dont certaines composantes spectrales peuvent dépasser la centaine de gigahertz, cette partie va le démontrer expérimentalement à travers une série de mesure. Tout au long de la présentation des résultats de mesure, l'accent sera mis sur les temps d'acquisition que ces derniers ont nécessité et sur leur rapport signal sur bruit.

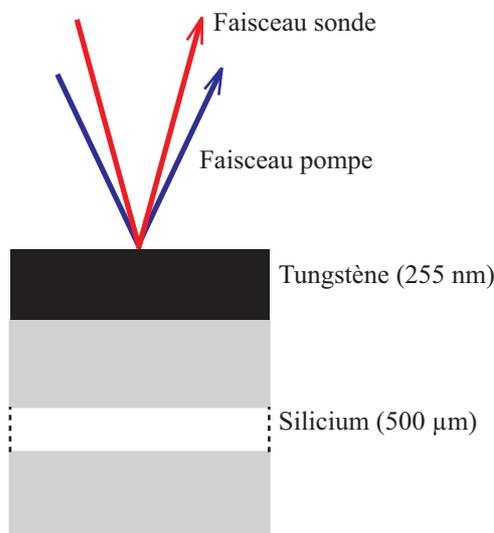


FIGURE 2.8: Coupe de l'échantillon étudié. La pompe et la sonde sont réfléchies sur la surface du tungstène. La longueur de pénétration optique du faisceau à 1030 nm est petite devant la tâche du faisceau ce qui a pour conséquence de rendre le problème acoustique unidimensionnel.

2.3.1.1 Description de l'échantillon et du protocole expérimental

Afin de générer un signal contenant des composantes spectrales hautes fréquences, il a été choisi d'étudier la réflectivité transitoire d'un l'échantillon composé d'une fine couche de 255 nm de tungstène déposée par pulvérisation cathodique radiofréquence sur un substrat de silicium d'environ 500 μm d'épaisseur.

Comme l'illustre la figure 2.8, pendant l'expérience, les impulsions pompe et sonde, dont les énergies sont de 0.6 nJ, sont focalisées sur le film de tungstène. Afin d'accroître les effets générés par l'absorption des impulsions pompe et favoriser leur détection par les impulsions sonde, les faisceaux sont focalisés à l'aide d'un objectif de microscope. Cela permet d'augmenter les fluences des faisceaux lasers sur l'échantillon. Dans le cadre de cette expérience, un objectif à grossissement x5 permet d'obtenir des résultats satisfaisants.

Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit, 10^5 mesures du changement du coefficient de réflectivité de l'échantillon sont moyennées. Il a été choisi, pour effectuer cette mesure², d'utiliser un battement de fréquence de 500 Hz entre les deux cavités lasers. En effet, comme il a été exposé dans le premier chapitre de ce manuscrit en section 1.4.5, c'est pour cette configuration que le système d'asservissement présente les meilleures performances en terme de gigue. Le temps nécessaire à l'acquisition de 10^5 mesures est alors d'environ 4 min.

2.3.1.2 Réponse transitoire de l'échantillon de tungstène

Lors de l'absorption de l'impulsion pompe, la température de l'échantillon augmente sur une profondeur de 50 nm environ comme l'illustre la figure 2.2(a). Il s'ensuit alors une génération d'onde acoustique plane³ et longitudinale qui se propage dans le matériau et qui arrive à l'interface W/Si. Une partie de l'onde est alors réfléchiée par cette interface, et l'autre partie est transmise dans le substrat de silicium. L'onde réfléchiée est alors détectée par couplage élasto-optique (cf partie 2.1.2.2) lorsqu'elle atteint la surface libre de l'échantillon.

Le signal brut obtenu en mesurant la réflectivité transitoire de la sonde sur l'échantillon est présenté figure 2.9. La présence du pic (1) témoigne de la coïncidence optique de la pompe et de la sonde sur l'échantillon. L'évolution brutale du changement de réflectivité à la coïncidence est due à l'augmentation brève de la température électronique et à d'autres phénomènes non linéaires. L'étude de ces phénomènes[43, 45] ne rentrant pas dans le cadre de cette thèse, elle ne sera pas développée ici. La réponse de l'échantillon est aussi composée d'une lente décroissance de type exponentielle (2). Il s'agit de la composante thermique du signal qui traduit le retour à la température ambiante de la zone affectée par l'impulsion pompe. L'étude de cette décroissance permet d'extraire les propriétés thermiques de

2. Et pour la majorité de celles présentées dans la suite de ce manuscrit.

3. Cette approximation est valable tant que les dimensions de la surface éclairée sont grandes devant les longueurs d'onde acoustiques mises en jeu.

l'échantillon[40, 56, 57, 58].

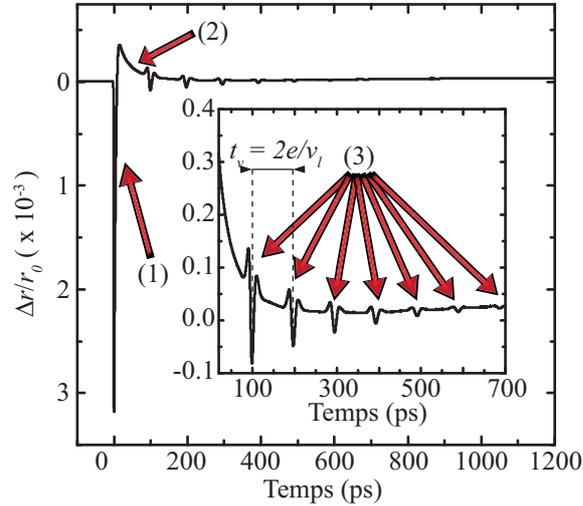
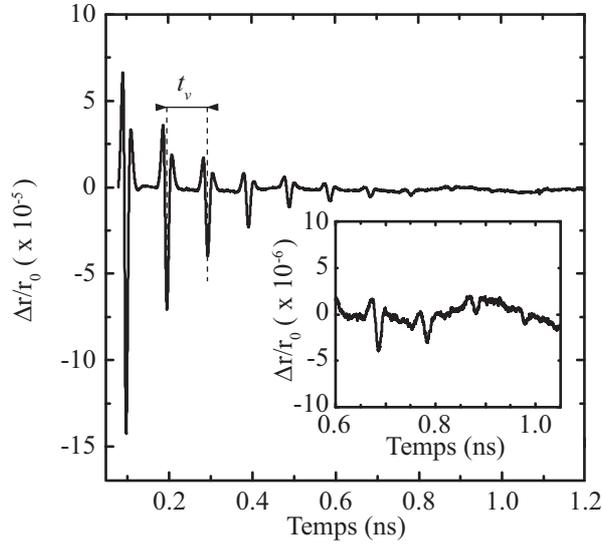
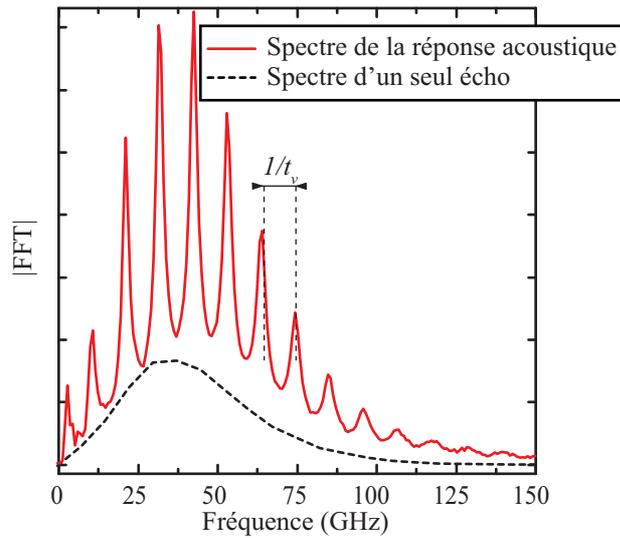


FIGURE 2.9: Réponse transitoire de l'échantillon de tungstène à une impulsion laser. Le pic de coïncidence électronique(1) correspond à l'augmentation de la température électronique. Cette température est ensuite cédée au réseau, puis une lente décroissance de la température de la zone qui a été excitée par la pompe est enregistrée (2) : cette lente décroissance correspond à la diffusion thermique. A cette décroissance se superposent des échos acoustiques qui, détectés à leur retour en surface par couplage photo-élastique, sont mis en valeur dans l'insert de la figure (3). t_v : temps entre deux échos successifs, v_l : célérité de l'onde acoustique et e : épaisseur de la couche de tungstène.

A la décroissance thermique se superpose une contribution acoustique : celle-ci se manifeste par les pics de forme tri-polaires, mis en valeur dans l'insert de la figure 2.9, et qui se répètent à intervalles réguliers t_v . Ces pics correspondent aux différents échos réfléchis par l'interface W/Si et sont détectés au retour de l'onde à la surface libre. Cette détection se fait par couplage élasto-optique. La forme tripolaire de ces échos trouve son explication dans le fait que la perturbation acoustique, qui est bipolaire comme il a été présenté dans la partie 2.1.1, est détectée sur toute la profondeur de pénétration de la sonde dans le tungstène. De ce fait, la sonde détecte la perturbation acoustique lorsqu'elle revient vers la surface, qu'elle s'y réfléchit et en repart déphasée de π . Les deux contributions de la même perturbation sont alors à l'origine de la forme tripolaire du champ de déformation détecté. Ce point est analysé dans la référence [59]. Le temps t_v qui sépare la détection de deux échos est directement relié au rapport de l'épaisseur e de la couche de tungstène sur la vitesse v_l des ondes acoustiques longitudinales puisqu'il s'agit du temps d'un aller-retour de l'onde acoustique dans la couche mince. Comme la rupture d'impédance acoustique à l'interface libre est beaucoup plus grande que celle qu'il y a à l'interface tungstène/silicium, et comme l'atténuation des ultrasons dans le tungstène est négligeable, le rapport d'amplitude entre deux échos successifs est donné par le coefficient de réflexion acoustique entre le tungstène et le silicium[55].



(a) Réponse acoustique



(b) Spectre de la réponse acoustique

FIGURE 2.10: La composante acoustique des signaux (a) s'obtient par extraction du fond thermique des mesures enregistrées. L'insert permet de constater que les 8^e, 9^e, et 10^e échos sont observables. La transformée de Fourier (b) de la composante acoustique du signal, représentée ici en trait plein, permet de constater que le spectre du signal mesuré s'étend au delà de 130 GHz. Il est à noter que ce spectre contient l'information permettant de remonter à l'épaisseur de la couche. En trait pointillé a été représentée le spectre d'un seul écho.

L'étude quantitative du coefficient de réflectivité de l'échantillon montre que la variation

relative de sa valeur est d'environ 1% à la coïncidence.

La composante acoustique du signal peut être isolée par soustraction du fond thermique. La contribution acoustique de la mesure est alors à l'origine de changement de réflectivité relative de quelques dizaines ppm pour le premier écho comme l'illustre la figure 2.10(a). Le rapport signal sur bruit des échos acoustiques dont les amplitudes sont les plus élevées est d'environ 10 dB : ils restent largement visibles sur les signaux présentés. En revanche lorsque les changements de réflectivités transitoires sont proches de 10^{-6} , les signaux commencent à avoir des amplitudes voisines à celles du niveau de bruit dont la valeur efficace est de $1.8 \cdot 10^{-6}$.

La transformée de Fourier de la composante acoustique du signal réflectométrique, présentée figure 2.10(b), exhibe un spectre dont les fréquences les plus élevées dépassent la centaine de gigahertz.

Ces deux derniers points permettent d'illustrer la capacité du banc de mesure à détecter des changements de réflectivité relatifs très faibles (10^{-6}) dont les contenus spectraux s'étendent au delà de 100 GHz.

2.3.1.3 Synthèse et conclusion

Cette première série de résultats expérimentaux a permis d'illustrer la capacité du banc pompe-sonde à détecter des changements de réflectivité optique relatifs d'échantillons de l'ordre de un pour un million [figure 2.10(a)] et d'en extraire des fréquences qui dépassent la centaine de gigahertz [figure 2.10(b)] le tout sur des fenêtres d'observation de 21 ns qui autorisent par conséquent une très bonne résolution spectrale par rapport à ce qui se fait traditionnellement en acoustique picoseconde hétérodyne. Il est aussi à souligner ici que la mesure présentée a nécessité une durée d'acquisition de l'ordre de la minute.

Des signaux équivalents sont accessibles à l'aide de bancs homodynes mais nécessitent des temps de mesure beaucoup plus longs. Dans son manuscrit de thèse, Hélène Michel [13] a étudié l'influence du temps de mesure sur la qualité de signaux réflectométriques obtenus à l'aide d'un banc homodyne. De ses différentes mesures, elle a tracé une courbe d'ajustement, laquelle est reportée sur la figure 2.11. A titre comparatif pour obtenir des signaux présentant les mêmes rapports signal sur bruit, la mesure aurait nécessité 50 min soit 12 fois plus de temps avec un banc homodyne. De plus, cette courbe d'ajustement a été obtenue en étudiant les signaux homodynes sur des fenêtres d'observation de 0.7 ns de largeur afin d'accroître les vitesses d'acquisition. Lorsque l'étude des échantillons doit se faire sur des fenêtres beaucoup plus larges le rapport entre le temps de mesure pour un banc homodyne et celui pour un banc hétérodyne augmente fortement comme le montre le second axe de la figure 2.11 : il faut alors plus de 24 h pour obtenir à l'aide d'un banc homodyne un signal présentant le même rapport signal à bruit soit 360 fois plus de temps ! Comme il a été vu dans cette partie, l'information acoustique était confinée quelques centaines de picosecondes après la coïncidence. Ce n'est pas toujours le cas lors d'expériences pompe-sonde. La partie qui suit

va justement présenter une étude du temps de vie des phonons dans la silice. Cette mesure nécessite d'avoir une largeur de fenêtre importante afin de pouvoir accéder à ce paramètre.

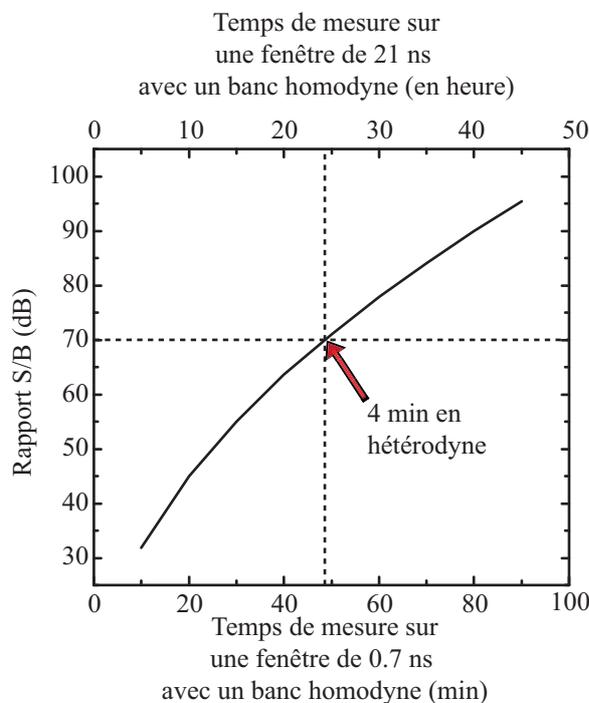


FIGURE 2.11: Rapport signal sur bruit d'un banc homodyne en fonction du temps de mesure pour une fenêtre d'observation de 0.7 ns (axe du bas) et 21 ns (axe du haut). En se cantonnant à une fenêtre d'observation de 0.7 ns, le temps nécessaire pour obtenir une mesure, avec un banc pompe-sonde homodyne, au rapport signal sur bruit équivalent à celui présenté (70 dB), est environ 45 min. Si l'observation doit être effectuée sur 21 ns, il faut alors plus de 24 heures. Cette étude du rapport signal sur bruit des bancs homodynes a été réalisée par Hélène Michel lors de ses travaux de doctorat[13].

2.3.2 Démonstration de la résolution fréquentielle du banc : estimation du temps de vie des phonons dans la silice

L'un des avantages majeurs de l'échantillonnage hétérodyne par rapport à l'échantillonnage homodyne est que les durées d'acquisition ne dépendent pas des largeurs des fenêtres d'observation. Alors que dans la section précédente, l'information recherchée était localisée temporellement entre la coïncidence optique et un retard pompe-sonde de quelques centaines de picosecondes, il arrive que l'information soit distribuée sur toute la plage d'observation accessible

En acoustique picoseconde, la mesure du temps de vie des phonons dans les matériaux constitue l'un des phénomènes dont l'étude sur de larges fenêtres d'observation temporelle

est nécessaire. Cette section va démontrer l'apport de l'échantillonnage hétérodyne dans l'estimation des temps de vie des phonons dans la silice.

2.3.2.1 Description de l'échantillon et du protocole expérimental

La figure 2.12 illustre une coupe du second échantillon étudié : celui-ci est composé d'une couche de silice de $170\ \mu\text{m}$ sur laquelle un transducteur opto-acoustique de titane de $500\ \text{nm}$ d'épaisseur a été déposé par pulvérisation cathodique radio-fréquence. Alors que pour l'étude des échos dans le tungstène les phénomènes acoustiques détectés étaient localisés à quelques nanomètres de profondeur (partie 2.3.1), dans la silice la détection se fait sur toute l'épaisseur de l'échantillon puisque ce matériau est transparent à $1030\ \text{nm}$. Les faisceaux pompe et sonde arrivent sur l'interface air/silice de l'échantillon : ces derniers se réfléchissent donc en partie sur chacune des interfaces immobiles et silice/titane qui présentent des ruptures d'impédance optique.

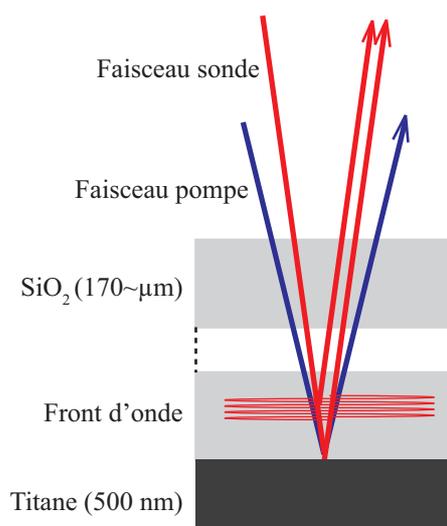


FIGURE 2.12: L'échantillon étudié ici est une couche de $500\ \text{nm}$ de titane déposée sur une lamelle de $170\ \mu\text{m}$ de silice. La fine couche de titane sert à générer des ondes acoustiques qui se propagent vers la surface de l'échantillon. Du fait de la transparence de la silice, le faisceau sonde y pénètre en profondeur : une partie de ce faisceau se réfléchit sur différentes interfaces immobiles, une autre partie est rétrodiffusée par le front d'onde acoustique mobile.

Afin de réaliser la mesure de la réflectivité transitoire de l'échantillon, les impulsions pompe et sonde sont focalisées à l'interface silice-titane à l'aide d'un objectif de microscope à grossissement $\times 5$. Les énergies des impulsions incidentes sont de $120\ \text{pJ}$ pour la pompe et $20\ \text{pJ}$ pour la sonde. La fréquence de battement Δf entre les deux lasers est fixée à $500\ \text{Hz}$. Le signal présenté est obtenu en moyennant 10^5 acquisitions, ce qui représente un temps de mesure d'environ 4 min seulement.

2.3.2.2 Détermination de la vitesse de propagation des ultrasons dans la silice

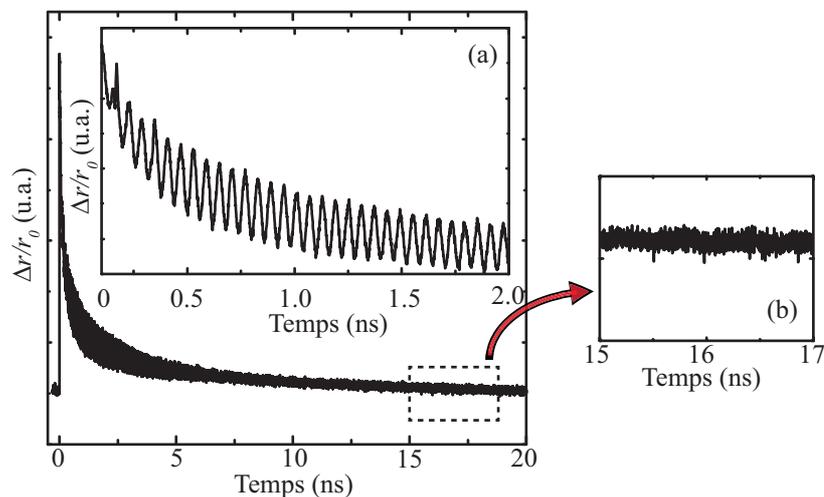


FIGURE 2.13: Réflectivité transitoire de l'échantillon de silice. A la décroissance thermique dans le titane s'ajoutent des oscillations Brillouin mises en évidence dans l'insert (a) et qui sont dues aux interférences des ondes lumineuses réfléchies aux interfaces immobiles (interface silice-air, interface titane-silice) avec l'onde rétrodiffusée sur le front d'onde acoustique. L'insert (b) permet de souligner le fait que la largeur de fenêtre d'observation permet ici de visualiser la propagation des ultrasons sur toutes leurs durées de vie.

Suite à l'absorption de l'impulsion pompe par le titane, transducteur opto-acoustique de l'échantillon, deux ondes acoustiques sont générées : la première se propage dans la couche de titane, la seconde dans la silice. Le titane étant opaque, l'onde qui s'y propage n'est détectée que lorsque celle-ci revient au voisinage de l'interface Ti/SiO₂. La détection de la perturbation acoustique dans le titane est analogue à ce qui a été précédemment décrit pour le tungstène : elle se manifeste par des pics sur le signal qui se répètent à intervalles de temps réguliers et qui traduisent le retour des échos réfléchis par l'interface Ti/air au niveau de l'interface Ti/SiO₂. En revanche, l'onde qui se propage dans la silice est détectée pendant toute sa durée de vie : elle est à l'origine des oscillations Brillouin qui sont éteintes à la fin du signal mesuré. Ces oscillations sont reportées sur la figure 2.13. Le signal présenté ici a nécessité un temps d'acquisition de 4 min. Il présente un rapport signal sur bruit de 49 dB. Après extraction du fond thermique, une transformée de Fourier est réalisée. Le spectre résultant est présenté sur la figure 2.14.

La fréquence des oscillations Brillouin déduite du spectre est de 16.6 GHz. L'équation (2.27) permet ensuite de déduire la célérité des ultrasons dans la silice : elle est d'environ 6.2 nm/ps ce qui est en accord avec les valeurs de la littérature[60].

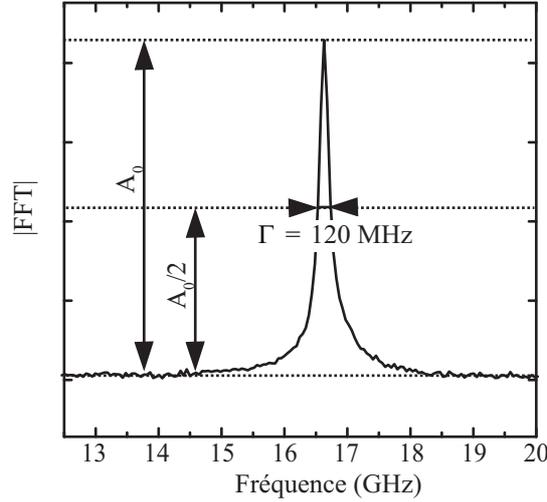


FIGURE 2.14: L'étude du temps de vie des phonons dans la silice peut se faire ici grâce à l'étude du pic central de la FFT de la réponse acoustique de l'échantillon.

Dans le domaine temporel, les interactions Brillouin se manifestent par des oscillations amorties. Dans le domaine spectral, cet amortissement se manifeste par un élargissement de la raie Brillouin. Cet élargissement va être ici utilisé afin de déterminer le temps de vie des phonons dans la silice.

2.3.2.3 Mesure de l'atténuation des ultrasons à 16 GHz dans la silice

La réponse acoustique du matériau peut être modélisée par une fonction sinusoïdale exponentiellement atténuée le long de sa direction de propagation :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_{\text{silice}}} = A_0 e^{-\frac{\alpha_{\text{silice}}}{2}(t)} \sin(2\pi f_b t) . \quad (2.29)$$

Dans cette expression, le temps de vie des phonons dans la silice est défini comme étant la valeur inverse de α [60]. Le facteur 1/2 provient du fait que l'on mesure à travers les oscillations Brillouin l'intensité des ondes et non leur amplitude[52]. L'étude du module du spectre de la transformée de Fourier de l'équation (2.29), qui est une fonction lorentzienne, permet d'avoir un accès direct à la valeur de cette atténuation après déconvolution du spectre par un sinus cardinal dont la largeur est inversement proportionnelle à la largeur de la fenêtre d'observation soit 21 ns. En effet la relation qui lie α à la largeur à mi-hauteur Γ du pic (cf figure 2.14) est donnée par :

$$\Gamma = \frac{\pi\alpha}{2} . \quad (2.30)$$

Après ajustement par une fonction laurentzienne, une largeur Γ égale à 120 MHz est déduite du spectre présenté sur la figure 2.14. L'utilisation de la valeur de Γ , déduite du spectre des oscillations Brillouin, et de la relation (2.30) donne un temps de vie de 3.59 ± 0.10 ns ce qui est en adéquation avec les valeurs publiées dans la littérature [52, 61, 62, 63, 64, 65].

2.3.3 Conclusion

Les oscillations Brillouin, qui ont été observées ici avec un rapport signal à bruit de 49 dB et ce sur des fenêtre d'observation de 21 ns, ont permis d'estimer l'atténuation des ultrasons à 16.6 GHz dans la silice. La mesure de la réponse transitoire ne prend que quelques minutes avec le banc hétérodyne.

Le premier point à souligner ici est qu'une telle mesure n'aurait pu être réalisée dans ces conditions à l'aide d'un banc pompe-sonde homodyne : la ligne à retard de 6 m⁴ aurait inévitablement induit des biais dans la valeur recherchée ici. De plus, la mesure aurait nécessité environ 12 h : comme pour l'échantillon de tungstène, le faible temps de mesure associé à un rapport signal sur bruit élevé sont parmi les points forts des techniques hétérodynes.

Comme il a été vu, l'utilisation d'une source laser à 47 MHz autorise l'accès à des fenêtres d'observation de 21 ns, ce qui permet d'obtenir des mesures avec une très grande finesse spectrale. La mesure n'aurait pas été possible avec un système composé de sources aux taux de répétition plus élevés.

2.4 Conclusion

Ce second chapitre a permis de confirmer expérimentalement la compatibilité du système d'échantillonnage hétérodyne avec l'observation d'ondes acoustiques dont le contenu spectral s'étend au-delà de la centaine de gigahertz. L'apport de l'échantillonnage a clairement été souligné en étudiant le rapport entre le temps d'acquisition pour un banc homodyne et celui pour un banc hétérodyne. Il a été montré ici que la valeur de ce rapport peut dépasser 300 dans certains cas.

Un autre point qui a aussi été souligné ici est l'apport que constitue l'utilisation d'une cavité laser pompe dont le taux de répétition est relativement bas : comme il a été illustré lors de la mesure de l'atténuation acoustique dans la silice, cela permet un accès direct à certains paramètres physiques pour lesquels une large fenêtre temporelle d'observation est nécessaire : l'atténuation des ultrasons ou encore l'amortissement de vibration d'une struc-

4. Il est rappelé ici que pour pouvoir générer un retard pompe-sonde de 21 ns il faut être en mesure de générer une différence de chemin optique de 6 m environ.

ture aux dimensions nanométrique qui sera étudié dans le chapitre suivant.

Le prochain chapitre va d'ailleurs s'employer à montrer qu'en permettant d'obtenir des mesures avec un bon rapport signal sur bruit en des temps relativement courts, le banc hétérodyne ouvre la voie à une nouvelle application : l'imagerie de la matière à l'aide d'ondes acoustiques picosecondes.

Chapitre 3

Imager la matière à l'aide d'ondes acoustiques picosecondes

Les deux premières parties de ce manuscrit de thèse ont permis de démontrer l'aptitude du banc pompe-sonde hétérodyne à effectuer des mesures combinant une très bonne résolution spectrale et temporelle. De plus, en comparaison avec les bancs pompe-sonde homodynes traditionnels, le temps d'acquisition est fortement réduit, à qualité de signal équivalent, avec cette nouvelle configuration hétérodyne. Ces points forts sont utilisés dans ce chapitre afin d'illustrer deux nouveaux champs d'application qu'ouvre l'échantillonnage hétérodyne : l'imagerie dynamique d'ondes acoustiques de surface dans un premier temps et d'hétérogénéités élastiques submicroniques dans un second temps.

En ce qui concerne le suivi de la propagation d'ondes de surface, il sera montré comment les nouveaux signaux acquis en seulement quelques heures permettent de tracer des courbes de dispersion d'ondes de surface dont le contenu spectral s'étend au delà du gigahertz, laissant ainsi entrevoir des applications futures au contrôle non destructif à l'aide d'ondes de surface de plusieurs dizaines de gigahertz telles que celles générées en nanostructurant les surfaces[66].

Dans un second temps, l'aptitude du banc hétérodyne à détecter très rapidement des hétérogénéités submicroniques et à les caractériser à l'aide d'onde acoustiques aux fréquences très élevées sera montrée. La possibilité de dimensionner ces hétérogénéités avec une résolution de l'ordre de la dizaine de nanomètre sera également montrée. Cette résolution est améliorée de deux ordres de grandeurs par rapport aux techniques de microscopie acoustique traditionnelles.

3.1 Imagerie de la propagation d'ondes de surface acoustiques gigahertz

Les surfaces d'un échantillon parcouru par des perturbations acoustiques se comportent comme des guides d'onde naturels[67, 68] piégeant ces dernières à une interface ou dans une couche. Les ondes qui parcourent ces guides possèdent de nombreuses caractéristiques intéressantes. Parmi celles-ci, l'une des plus remarquables réside dans le fait que leur diffraction est bidimensionnelle. De ce fait, dans un milieu sans pertes, les ondes de surface voient leur énergie décroître comme l'inverse de la distance qu'elles parcourent à cause de la diffraction. Elles se propagent donc sur de plus longues distances que les ondes de volume pour lesquelles l'énergie décroît comme l'inverse du carré de la distance qu'elles parcourent. Un autre caractéristique intéressante de ces ondes est qu'il est possible d'accéder à leur propriétés en chacun des points de leur propagation puisqu'elles se situent en surface des échantillons étudiés.

Les ondes de surface ont ainsi trouvé de nombreuses applications comme dans les domaines du contrôle non destructif[69, 70, 71, 72], de l'évaluation des qualités d'adhésion [73, 74], de la caractérisation de films minces [75, 76] ...

Historiquement, ce sont des transducteurs piézoélectriques qui ont d'abord été employés afin de générer et de détecter ces ondes. Ils continuent d'ailleurs à être utilisés de nos jours dans de nombreux secteurs comme le génie civil[77, 78], l'aéronautique [72], ou la microélectronique. Dans ce dernier cas, les transducteurs sont conditionnés dans des microscopes acoustiques et servent à contrôler des surfaces au dimensions submillimétriques[79]. Cependant, la bande passante de ces transducteurs reste limitée à quelques centaines de mégahertz [80], ce qui constitue un obstacle à l'étude de composants électroniques de plus en plus miniaturisés et qui nécessitent l'emploi de fréquences de plus en plus élevées.

C'est donc naturellement que les chercheurs se sont tournés vers des solutions alternatives pour générer et détecter ces ondes de surface. Parmi ces méthodes, l'opto-acoustique a permis en 2002 à O.B. Wright et son équipe d'imager des fronts d'ondes, générés grâce à une couche mince d'or, se propageant à la surface d'un substrat de silice [81]. Le contenu spectral de ces ondes s'étendait alors bien au delà de la frontière du gigahertz.

Globalement, en acoustique picoseconde, l'étude des ondes de surface a suivi le même cheminement que les ondes de volume : dans un premier temps ce fut la propagation d'impulsions [82, 83, 84] au contenu spectrale très riche qui fut étudiée, permettant ainsi de dresser les premières courbes de dispersion obtenues à l'aide d'un banc pompe-sonde[85]. Dans un second temps, la course à la montée en fréquence, à l'aide d'arrangements périodiques en surface[66, 86], a permis d'observer des ondes de Rayleigh dont le spectre contenait des modes de plusieurs dizaines de Gigahertz[87].

Cette première partie du chapitre expose les moyens qui ont été mis en œuvre pendant ces travaux pour générer et détecter des ondes de surface à l'aide du banc d'imagerie opto-acoustique dans un échantillon composé d'une couche mince de tungstène déposée sur un substrat de silicium orienté (100).

3.1.1 Hypothèse expérimentale : principe de réciprocité

Pour pouvoir imager des ondes de surface, il faut être en mesure de contrôler les positions relatives des tâches focales de la pompe et de la sonde sur l'échantillon. Ce contrôle permet de mailler l'espace autour d'une excitation afin de cartographier les phénomènes transitoires engendrés par cette dernière.

En théorie, pour que la méthode soit effective, il suffit de déplacer la sonde par rapport à la pompe. Cependant, il est difficile de mettre en œuvre un banc de ce type car une quelconque modification du trajet du faisceau sonde a pour conséquence de désaligner le retour de ce faisceau sur le photo-détecteur du banc. Ce désalignement entraîne alors une modification de la quantité d'énergie collectée par la photodiode créant ainsi des artefacts de mesure, de manière analogue à une ligne de retard désalignée insérée sur le trajet des impulsions sonde dans un montage pompe-sonde homodyne.

L'idée, pour contourner cette difficulté, est de se reposer sur le principe de réciprocité dont la validité est démontrée dans de nombreuses branches de la physique (en électromagnétisme, en mécanique, en électrocinétique ...). Appliqué à l'acoustique, ce principe implique, en se reposant sur la propriété de symétrie du tenseur de contraintes, qu'un effet engendré en un point B par une perturbation en un point A est le même que celui engendré en un point A par la même perturbation localisée en B. L'application de ce théorème aux expériences pompe-sonde, dans le cas où l'échantillon étudié est homogène ou que les longueurs d'onde des faisceaux pompe et sonde sont identiques, permet d'affirmer que les signaux enregistrés en déplaçant (i) la sonde par rapport à la pompe et en déplaçant (ii) la pompe par rapport à la sonde sont les mêmes. Puisqu'il n'est pas nécessaire dans l'expérience de maîtriser le pointé de la pompe après sa réflexion, c'est cette dernière stratégie qui a été adoptée : l'excitation balaye la surface autour de la sonde.

3.1.2 Présentation du dispositif de balayage

3.1.2.1 Principe de la déviation d'un faisceau laser par un système afocal

Afin de faire varier, sur l'échantillon à étudier, les positions relatives de la tâche focale de la pompe par rapport à celle de la sonde, il a été choisi de mettre en place un système optique afocal sur le trajet du faisceau pompe comme l'illustre la figure 3.1. Ce système, présenté en détail sur la figure 3.2, est composé de deux lentilles L1 et L2 dont les distances focales f sont de 10 cm. Afin d'obtenir une vergence nulle à la sortie de l'afocal, la distance qui sépare les deux lentilles est fixée à 20 cm. Le changement de pointé du faisceau pompe s'obtient en

translatant légèrement l'axe optique de la lentille L1 par rapport à l'axe du faisceau pompe. Afin d'automatiser les mesures et d'accroître les résolutions spatiales, il a été choisi de placer L1 sur deux platines de translation motorisées.

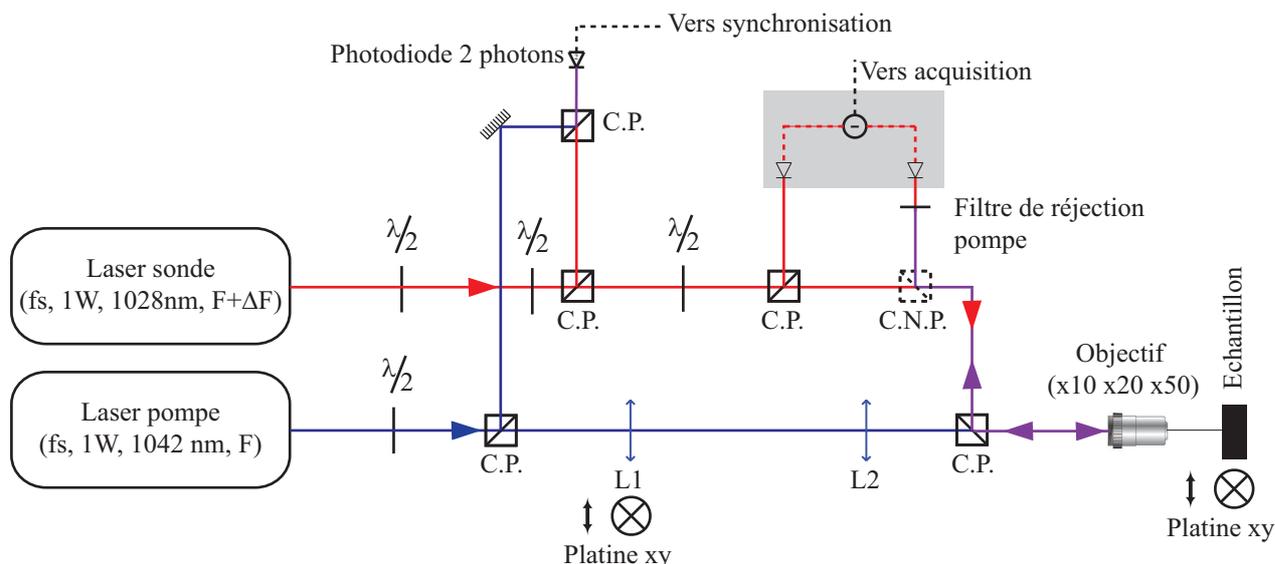


FIGURE 3.1: Afin d'être en mesure de modifier les positions relatives des zones de l'échantillon éclairées par la pompe et par la sonde, un système afocal est inséré sur le chemin des impulsions pompes. Ce système est composé de deux lentilles de focale f : la première L1 est placée sur deux platines de translation motorisées dont les axes de déplacement orthogonaux (\updownarrow et \otimes) permettent à la pompe de balayer l'échantillon. La seconde lentille L2 est quant à elle immobile et placée à une distance $2f$ de L1 afin d'assurer au faisceau pompe une vergence nulle.

La figure 3.2 illustre comment une translation D de la lentille L1 entraîne un déplacement d de la tâche focale de la pompe sur l'échantillon. Il existe un point après le système afocal par lequel le faisceau passe toujours : ce point est situé à une distance $4f$ de la lentille L1 sur le trajet du faisceau non perturbé. C'est à cet endroit précis que doit être placé l'objectif de focalisation pour optimiser le montage optique : en effet, dans cette configuration géométrique le faisceau passe toujours par le centre de cet objectif, ce qui permet de maximiser la surface que la pompe peut balayer.

3.1.2.2 Calibration de la distance pompe-sonde

Pour vérifier la relation qui existe entre le décalage D de la lentille L1 et le déplacement d de la tâche focale de la pompe sur l'échantillon, une procédure expérimentale de calibration a été réalisée. A cette fin, une caméra de type « BeamMaster¹ » a été fixée à la place de

1. Le BeamMaster utilisé est une caméra qui permet de mesurer avec une résolution de l'ordre du micromètre la position et les propriétés géométriques d'un spot laser qui y est focalisé .

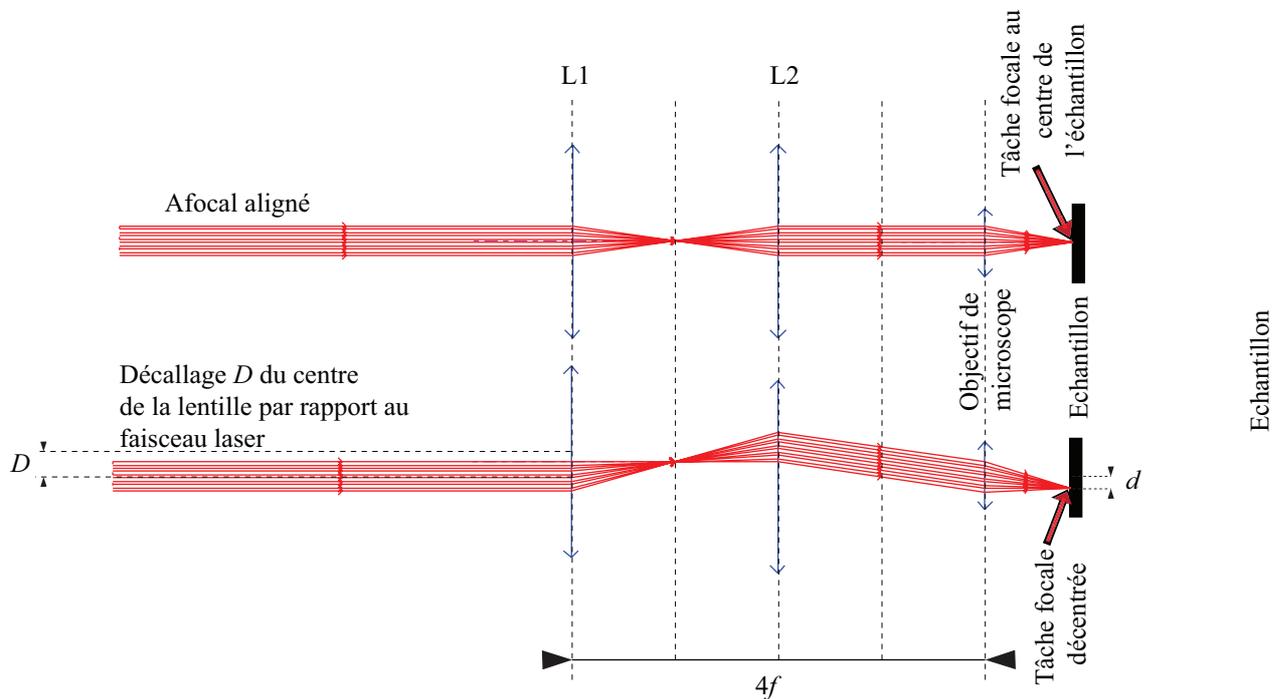


FIGURE 3.2: Principe de déviation d'un faisceaux laser par une lentille : en déplaçant légèrement la lentille L1, le faisceau se trouve dévié. Une seconde lentille L2 permet alors de rattraper la divergence du faisceau laser. Pour tout déplacement D de la lentille L1, le faisceau passe toujours par un même point, situé sur l'axe du faisceau non perturbé, à une distance $4f$ de la lentille L1. Figure adaptée de [13] et réalisée à l'aide du logiciel Optgeo.

l'échantillon. Les valeurs de d ont alors été enregistrées pour différents décalages D . L'ensemble des mesures est présenté sur la figure 3.3.

L'ajustement linéaire réalisé sur les valeurs expérimentales (en traits pointillés sur la figure 3.3), permet de conclure quant au rapport de proportionnalité entre d et D :

$$d \sim \frac{1}{31.4} D . \quad (3.1)$$

Les bornes spatiales du système sont alors données par l'ouverture numérique de l'objectif de microscope. Elles sont ici d'environ $100 \mu\text{m}$ dans les deux directions.

3.1.3 Détection des déplacements de surface

Plusieurs méthodes ont été proposées en acoustique picoseconde afin de détecter les déplacements engendrés par les ondes de surface. L'une d'elles, couramment employée, est l'interférométrie, dont de nombreux montages ont déjà été exploités pour l'étude de cette famille d'ondes [84, 86, 88, 89]. La difficulté majeure de cette technique réside dans le choix du point de fonctionnement de l'interféromètre et la nécessité d'avoir recours à un

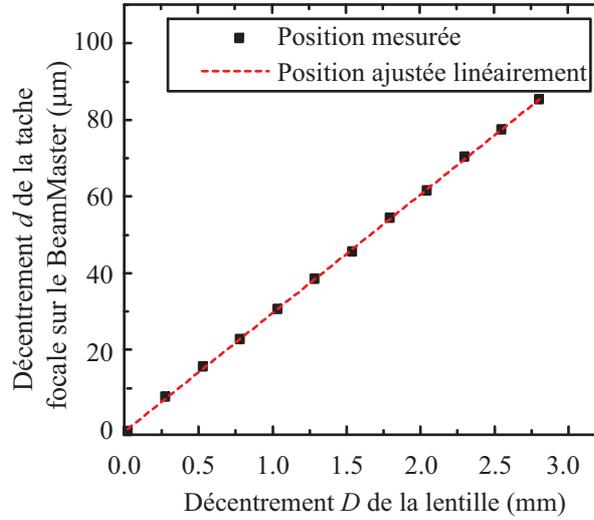


FIGURE 3.3: Calibration du déplacement d de la tache focale sur l'échantillon en fonction du déplacement D de la lentille $L1$. Pour $D = 0$, les tâches focales de la pompe et de la sonde sont superposées.

système d'asservissement[90] afin de le stabiliser et de supprimer les sources de bruits basses fréquences.

Deux méthodes alternatives, relativement simples à mettre en place, permettent de suivre l'évolution de ces perturbations acoustiques de surface : la déflectométrie [75, 91, 92, 93, 94] et la détection de distorsion du faisceau réfléchi, ou « Beam Distortion Detection » en anglais (BDD)[49, 93]. Ces deux méthodes reposent sur les conséquences qu'un déplacement de surface a sur la vergence du faisceau réfléchi (en BDD) ou sur son pointé (en déflectométrie)

3.1.3.1 Principe de la BDD

Comme l'illustre la figure 3.4, le principe de détection du déplacement de surface par BDD, formulé en acoustique picoseconde par N. Chigarev et al.[49] repose sur le fait que le passage d'une onde de surface modifie la distance entre l'objectif de microscope et l'échantillon étudié. Cette modification engendre alors une défocalisation du faisceau sonde réfléchi. La différence de vergence entre le faisceau perturbé par l'onde (en traits tiretés sur la figure) et le faisceau réfléchi par la surface au repos (pointillés fins) est détectée grâce à un iris inséré sur le trajet entre l'échantillon et le photodétecteur. Cette modification de vergence est responsable d'une variation du signal enregistré par la photodiode du banc. La variation de signal ΔV est alors proportionnelle au déplacement de surface U :

$$\Delta V \propto U . \quad (3.2)$$

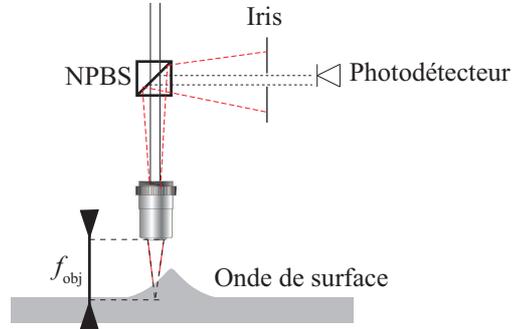


FIGURE 3.4: Principe de la BDD : le passage d'une onde de surface modifie la distance entre l'échantillon et l'objectif de microscope. Il en résulte une variation de vergence du faisceau sonde réfléchi. La différence de vergence entre le faisceau perturbé par l'onde (en traits tiretés) et le faisceau réfléchi par la surface au repos (pointillés fins) est détectée grâce à un iris inséré sur le chemin entre l'échantillon et le photodétecteur. L'effet BDD peut être amplifié en défocalisant la surface de l'échantillon vers l'objectif de microscope. Schéma d'après [93]. NPBS : cube non polarisant.

3.1.3.2 Principe de la déflectométrie

En déflectométrie, le principe de détection de l'onde repose sur le fait que la propagation de cette dernière engendre un gradient de déplacement le long de la surface qu'elle parcourt. Ce gradient modifie alors l'angle de réflexion du faisceau sonde par l'échantillon. Le changement d'angle est traditionnellement détecté en insérant, sur le trajet de retour du faisceau sonde sur l'échantillon, un couteau dont le bord est orthogonal au déplacement du faisceau sonde induit par l'effet déflectométrique[91]. La photodiode du banc de mesure enregistre alors une variation du niveau de signal de la sonde réfléchie ΔV proportionnelle au gradient radial du déplacement de surface². Pour visualiser le déplacement d'une onde de surface dans toutes les directions, il faut donc être en mesure de faire tourner l'axe du couteau dans toutes les directions de l'espace, et ce, en fonction des positions relatives des tâches focales des faisceaux sonde et pompe sur l'échantillon. Cette complexité rend impossible l'utilisation d'un couteau pour imager la propagation d'ondes de surface. Pour outrepasser cette difficulté et utiliser la déflectométrie dont la sensibilité est plus élevée que la BDD [93], il a été choisi de remplacer le couteau par un iris. L'insertion de cet élément permet d'enregistrer sur la photodiode un signal proportionnel au gradient radial du déplacement de surface

2. Ce résultat est valable pour des petites modifications de l'angle de réflexion du faisceau sonde à la surface de l'échantillon, approximation qui reste valable dans le cadre d'expériences d'acoustique picoseconde [93].

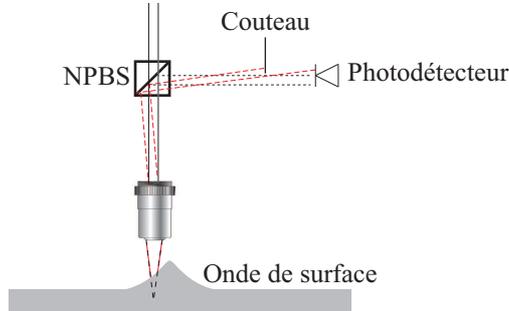


FIGURE 3.5: *Le passage d'une onde de surface modifie l'angle d'incidence du faisceau sonde. De ce fait, la direction du faisceaux sonde réfléchi par une surface au repos (ici en noir) est légèrement différente de celle réfléchi par une surface perturbée par une onde (ici en rouge). Cette différence peut être détectée en insérant un couteau sur le trajet entre l'échantillon et le photodétecteur. Au final, la variation d'intensité collectée par la photodiode est proportionnelle au gradient de déplacement de la surface. D'après [93]. NPBS : cube non polarisant.*

3.1.4 Résultats expérimentaux : suivi de la propagation d'ondes acoustiques de surface

L'étude de la propagation d'ondes de surface est réalisée sur l'échantillon présenté dans la section 2.3.1. Pour rappel, il s'agit d'une fine couche de 255 nm de tungstène déposée sur un substrat de silicium orienté (100). Une coupe de cet échantillon et la localisation des faisceaux lasers sont illustrées sur la figure 3.6.

3.1.4.1 Cartographie dynamique des ondes de surface

Lorsque les diamètres des tâches focales des lasers sur l'échantillon sont voisins des dimensions de la zone balayée par la pompe, les phénomènes détectés sont les mêmes que ceux exposés au chapitre 2 : la diffusion thermique, détectée par couplage photo-thermique, et les ondes acoustiques de volume, détectées en surface par couplage photo-élastique. La visualisation d'ondes de surface est optimisée lorsque les valeurs de d sont choisies de façon à ce que la diffusion thermique et les ondes de volumes ne soient pas présentes. Pour cela la distance pompe-sonde minimale choisie doit être plus grande que le diamètre de la tâche focale.

A proximité de l'épicentre, l'analyse du profil de diffusion thermique permet de mesurer la conductivité thermique du matériau [57, 95]. L'analyse du temps d'arrivée des ondes acoustiques de volume permet quant à elle de caractériser l'épaisseur du film mince de tungstène comme il a été vu dans la partie 2.3.1.

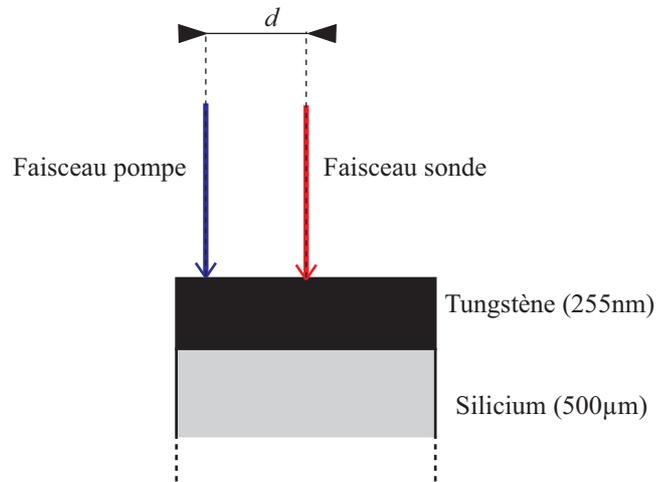


FIGURE 3.6: La propagation d'ondes de surface est étudiée sur un échantillon composé d'une fine couche de 255 nm de tungstène déposée sur un substrat de silicium orienté (100). La distance d qui sépare la tâche focale du laser pompe et du laser sonde sur l'échantillon est contrôlée en translatant la lentille L1 (se référer aux explications de la sous-section 3.1.2).

La figure 3.7 présente le changement relatif du coefficient de réflectivité enregistré par la sonde à la surface de l'échantillon de tungstène (a) 6 ps, (b) 26 ps, (c) 136 ps et (d) 503 ps après l'absorption de l'impulsion pompe. Les images constituant la figure sont extraites d'une animation, laquelle a été réalisée en balayant à l'aide de la pompe une surface de 12 μm par 12 μm autour de la sonde. Au cours de ce balayage, les mesures des réponses transitoires de 400 (20x20) positions ont été enregistrées : cela représente donc pour cette expérience un pas spatial de 630 nm dans les deux directions. Chacun des enregistrements a nécessité de moyennner 10^4 acquisitions afin d'accroître le rapport signal sur bruit. Les dynamiques de chacun des signaux ont été enregistrées pour 26000 retards pompe-sonde : la résolution temporelle de l'animation n'est donc limitée que par la gigue relative des deux lasers (1 ps environ). La mesure a nécessité un temps d'acquisition de 2 h 30. L'étude de la figure permet de constater que 6 ps après l'absorption de l'impulsion pompe, la température est parfaitement confinée au voisinage de la zone impactée [fig. 3.7(a)]. Puis la température de la zone éclairée diminue [fig. 3.7 (b) et (c)] jusqu'à revenir à l'équilibre [fig. 3.7(d)].

Afin de favoriser l'étude de la propagation des ondes de surface, la même expérience est réalisée en balayant une aire de 80 μm x 80 μm autour de la sonde. Les mesures sont faites sur 900 points (30x30) répartis sur la surface évoquée. Ici la mesure nécessite environ 5 h 20 de temps d'acquisition. Après soustraction du fond thermique, les signaux bruts sont ici convolués avec une gaussienne de 50 ps afin de supprimer les composantes hautes fréquences du bruit. Dans le domaine spatial, les images sont interpolées d'un facteur 2. Au final, c'est une animation qui illustre la propagation d'ondes de surface avec une résolution temporelle, dictée par la largeur temporelle de la gaussienne de filtrage, soit d'environ 50 ps et une résolution spatiale, dictée par la largeur de la tâche focale de la sonde sur l'échantillon, de

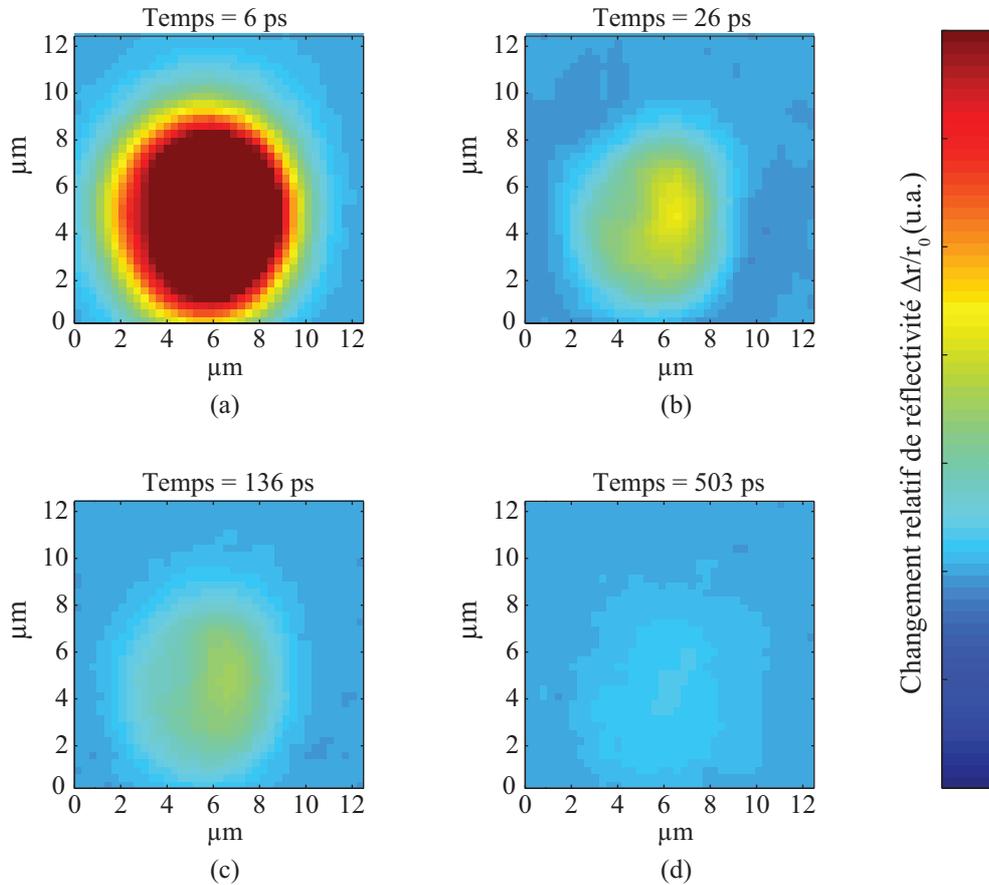


FIGURE 3.7: Évolution, en unité arbitraire, du changement du coefficient de réflexion de l'échantillon suite à l'absorption d'une impulsion laser pour des retards pompe-sonde de (a) 6 ps, (b) 26 ps, (c) 136 ps et (d) 505 ps.

2 μm environ, qui est obtenue. La nature de ces ondes est déduite de l'analyse de la figure 3.10.

La figure 3.8 représente le gradient radial du déplacement de surface de l'échantillon (a) 1930 ps, (b) 3760 ps, (c) 8760 ps et (d) 13380 ps après la coïncidence. L'étude de cette figure révèle que deux ondes s'y propagent. La plus rapide ne semble pas dispersive alors que la plus lente semble l'être. L'étude de cette figure révèle aussi le caractère isotrope de la propagation : les ondes se propagent à la même vitesse dans toutes les directions de la surface de l'échantillon, ce qui se manifeste par des fronts d'ondes de forme circulaire. Dans leurs travaux[84], Tachizaki et al. ont démontré que pour de telles longueurs d'onde, la détection de l'anisotropie du substrat de silicium enfoui était possible mais pour des épaisseurs de couche plus minces (50 nm dans leur cas). Dans le cas présenté ici, la couche de tungstène de 255 nm masque cette anisotropie.

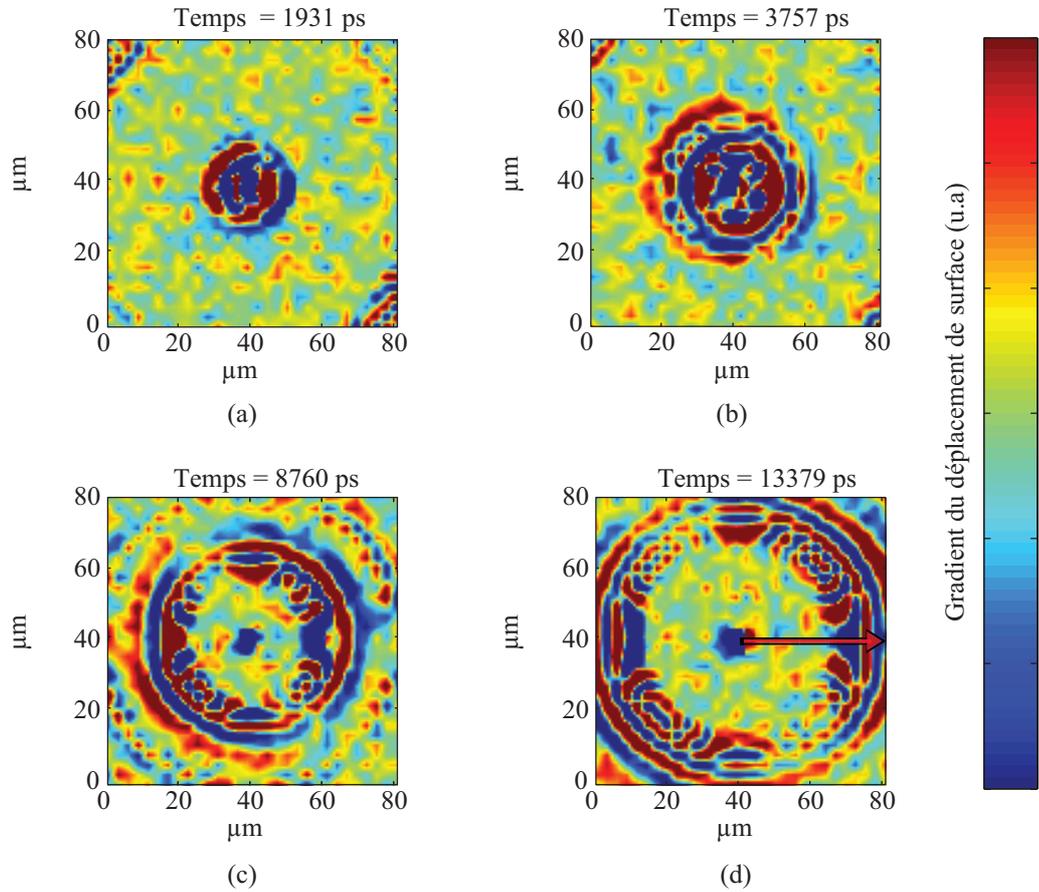


FIGURE 3.8: L'analyse des mesures permet de rendre compte de l'existence de deux ondes se propageant à la surface du tungstène. La propagation de ces ondes est figée sur cette figure (a) 1930 ps, (b) 3760 ps, (c) 8760 ps et (d) 13380 ps après la coïncidence optique. La nature quasi-circulaire des fronts d'onde montre une propagation isotrope des ondes de surface.

Du fait du caractère isotrope des résultats de mesure, l'analyse de la propagation des ondes suivant une seule direction suffit à les caractériser. Dans la suite de cette étude, l'axe sur lequel cette propagation est étudiée est représenté par la flèche rouge de la figure 3.8. Une double transformée de Fourier, temporelle et spatiale (ici elle a été réalisée sur une ligne horizontale), permet d'obtenir les courbes de dispersion des ondes considérées. Celles-ci sont reportées sur la figure 3.9. L'analyse de cette figure confirme l'hypothèse de l'existence de deux ondes qui parcourent la surface de l'échantillon. L'étude des pentes des courbes de dispersion permet de conclure quant aux vitesses des ondes détectées : celles-ci sont d'environ $5.2 \mu\text{m}/\text{ns}$ pour la plus rapide et $2.6 \mu\text{m}/\text{ns}$ pour la plus lente.

La figure 3.10 reproduit les signaux enregistrés, pour différentes distances pompe-sonde dans la direction portée par la flèche de la figure 3.8, dans le domaine temporel. Cette figure constitue une représentation plus adéquate au support papier et possède de nombreux

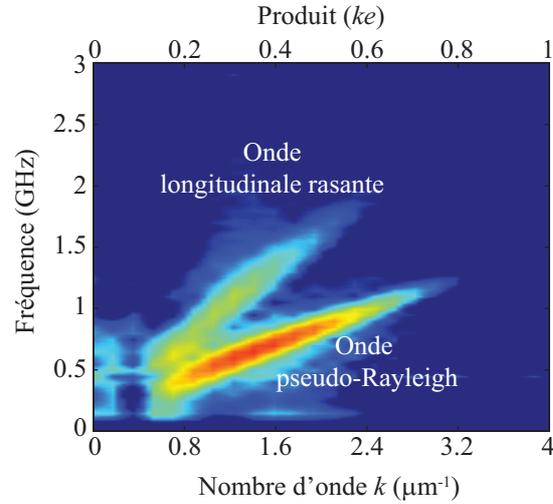


FIGURE 3.9: *Courbes de dispersion des ondes observées. Deux ondes sont clairement distinguables : l'onde longitudinale rasante et la pseudo-onde de Rayleigh qui exhibe un caractère dispersif. Ici la fréquence a été représentée en fonction du vecteur d'onde k (échelle du bas) et du produit ke (échelle du haut) où e est l'épaisseur de la couche de tungstène.*

avantages. Elle permet d'une part de confirmer les vitesses des ondes de surface mesurées à l'aide des courbes de dispersion. D'autre part, la figure renforce les observations évoquées précédemment sur les caractères dispersifs de ces ondes : l'onde la plus lente est bien dispersive alors que la plus rapide ne l'est pas. Enfin cette représentation spatio-temporelle permet de confronter les mesures aux résultats simulés pour une couche de tungstène de 252 nm d'épaisseur à l'aide du code de calcul (en pointillés rouges) que Mathieu Perton a développé lors de sa thèse [46, 97, 96, 98]. Les résultats de mesure et de simulation sont en parfait accord.

3.1.4.2 Nature des ondes détectées

La plus rapide des perturbations détectées se propage à la célérité des ondes acoustiques longitudinales dans le tungstène ($5.2 \mu\text{m}/\text{ns}$) [99] : il s'agirait donc d'une onde longitudinale rasante se déplaçant au voisinage de l'interface tungstène/air. Cette onde a déjà été détectée en acoustique picoseconde [100, 83, 93].

La seconde onde détectée est une onde de surface de type Rayleigh. Chez cette famille d'ondes, l'énergie des différentes composantes spectrales est confinée au voisinage de la surface, pénétrant dans la matière à des profondeurs de l'ordre de la longueur d'onde considérée. Lorsque les ondes sont générées par un laser focalisé sur une tâche de rayon r_0 à la surface de l'échantillon, la longueur d'onde λ de l'onde de Rayleigh générée est sensiblement voisine de r_0 :

$$\lambda \approx r_0 . \quad (3.3)$$

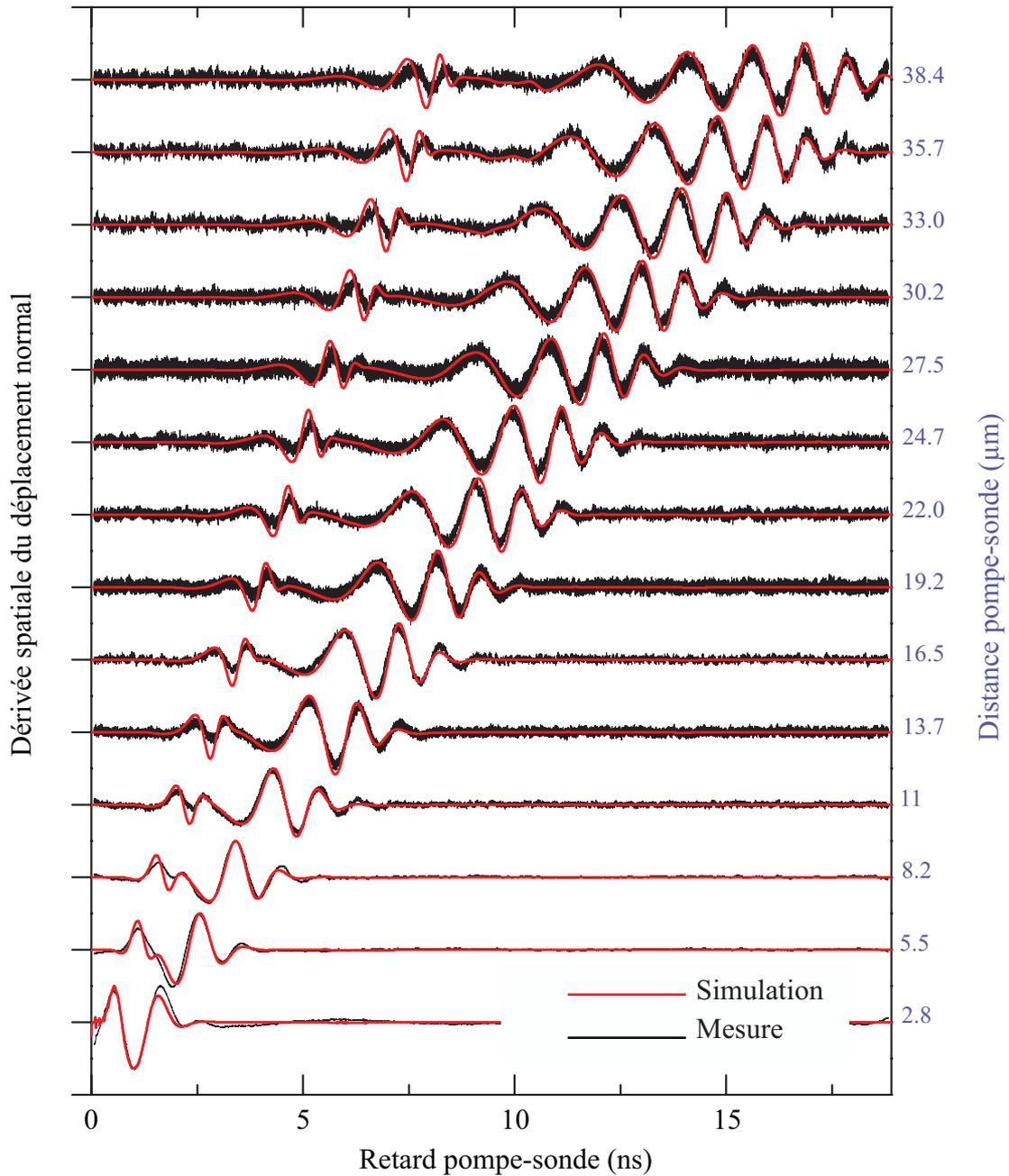


FIGURE 3.10: Signaux temporels enregistrés en différents points portés par la flèche rouge de la figure 3.8 (d). L'étude de la déformation de la surface de l'échantillon permet de constater que deux ondes s'y propagent : la première à une célérité d'environ $5 \mu\text{m/s}$ et la seconde, de dispersion positive, à une célérité comprise entre 2 et $3 \mu\text{m/s}$. En traits noirs : résultats des mesures. En traits rouges : résultats du code de calcul développé par Mathieu Perton[96].

Ainsi la longueur d'onde générée dans le cas présent est d'environ $2 \mu\text{m}$. L'épaisseur de la couche mince est donc inférieure à la longueur d'onde de l'onde générée. La perturbation

mécanique est localisée dans les deux couches qui forment l'échantillon : il s'agit donc d'une onde appelée onde pseudo-Rayleigh. Ce type d'onde a fait l'objet de nombreux travaux en acoustique picoseconde[81, 82, 100, 66, 84, 85, 101, 102]. L'intérêt de ces ondes est que leur courbes de dispersion renseigne sur les propriétés élastiques des couches qu'elles parcourent (épaisseur, constantes élastiques, densité), que ces couches soient enfouies[75] ou non[69].

Dans le cas d'une couche d'épaisseur inférieure à λ , les composantes spectrales de l'onde pseudo-Rayleigh qui ont les plus petites longueurs d'onde se propagent essentiellement dans le tungstène tandis que celles de grandes longueurs d'onde voient la majeure partie de leur énergie se propager dans le silicium. Or la vitesse de propagation des ondes de Rayleigh dans le silicium est plus élevée que dans le tungstène. Les composantes hautes fréquences de l'onde de Rayleigh, confinées dans le tungstène, se propagent plus lentement que les composantes basses fréquences. Ce résultat a déjà été constaté expérimentalement et évoqué dans la littérature [69, 103]. Il se retrouve ici sur la figure 3.10 où les composantes basses fréquences de l'onde de Rayleigh sont enregistrées plus tôt que leurs homologues hautes fréquences.

3.1.5 Conclusion

Cette partie du manuscrit a permis de mettre en évidence l'aptitude du banc hétérodyne à générer et à détecter la propagation d'ondes de surface. Ici, le suivi de ces ondes a été optimisé en tirant parti d'un des avantages majeurs qu'offre l'échantillonnage hétérodyne : obtenir des mesures présentant des bons rapports signal sur bruit sur de larges fenêtres temporelles en très peu de temps. Ce point a permis d'observer la propagation d'ondes sur 900 points répartis sur une surface de $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$ avec une résolution spatiale de $2.6 \mu\text{m}$, non pour une dizaine[85] mais pour 26000 retards pompe-sonde entre la coïncidence et un retard pompe-sonde de 20 ns, offrant ainsi une très bonne résolution temporelle et spectrale. L'observation des animations a permis de conclure quant au caractère isotrope de la propagation des ondes de surface : ici, la couche de tungstène de 255 nm est trop épaisse pour que le substrat de silicium anisotrope n'influence ce caractère. En revanche 255 nm de tungstène permet à la couche d'être assez épaisse pour pouvoir être détectée par les ondes de surface. Ces dernières manifestent en effet un caractère dispersif qui trouve son explication dans la différence de propriétés acoustiques des matériaux qui composent les deux couches de l'échantillon.

Le banc de mesure, grâce à sa résolution temporelle, ouvre donc ici naturellement la voie de l'imagerie d'ondes acoustiques dont les fréquences s'étendent au delà de la centaine de gigahertz.

3.2 Imagerie acoustique à l'échelle submicronique

Alors que l'objet de la partie 3.1 de ce chapitre a été d'imager la propagation d'ondes acoustiques de surface, grâce à un maillage de l'espace autour de l'excitation, cette partie

va maintenant mettre en lumière la capacité du système à détecter et à caractériser avec une grande précision des hétérogénéités acoustiques submicroniques. Dans la suite de ce chapitre, la pompe et la sonde balayent la surface de l'échantillon en restant superposées. Du fait de la configuration géométrique des faisceaux pompe et sonde, le terme de « balayage configuration colinéaire » peut être retrouvé dans la littérature pour décrire ce type de mesure[13].

L'échantillon hétérogène qu'il a été choisi d'étudier afin de montrer que le banc est apte à détecter des hétérogénéités submicroniques est une lamelle de microscope en silice sur laquelle sont déposées aléatoirement des sphères d'or dont les rayons mesurent quelques centaines de nanomètres.

Dans la suite de ce chapitre, il va être démontré dans un premier temps que l'utilisation du banc d'acoustique picoseconde rend la détection de ces particules possible en quelques dizaines de minutes par contraste interférométrique. Dans un second temps, il sera démontré que les particules, lorsqu'elles sont déposées sur un substrat aux propriétés optiques différentes, le tout formant alors un échantillon hétérogène, peuvent être caractérisées mécaniquement et géométriquement en quelques heures. Cette caractérisation se fait alors à l'aide d'ultrasons dont les fréquences s'étendent au delà du gigahertz. L'aptitude du banc à générer et à détecter ces ultrasons aux fréquences très élevées avec une très bonne résolution spectrale permettra de conclure quant aux diamètres des particules imagées avec une incertitude de l'ordre de la dizaine de nanomètres.

3.2.1 Présentation de l'échantillon

3.2.1.1 Choix de l'échantillon

De par leur capacité, à être utilisées comme transducteurs photo-élastiques pour générer des ondes longitudinales[104, 105] ou transverses[106], la réponse de nanostructures a constitué l'un des thèmes d'étude de l'acoustique picoseconde de ces quinze dernières années. Historiquement[107, 108, 109], les réponses étudiées ne provenaient pas de structures sondées individuellement mais collectivement. Ces corps se présentaient alors sous la forme de solutions colloïdales ou déposés de façon aléatoire sur des substrats[110] ou nanostructurés de façon périodique. Dans ce dernier cas, il a été montré, qu'en plus de contenir des informations intrinsèques aux structures, les spectres des réponses acoustiques renseignaient sur leurs dispositions[111]. En 2005, M. Orrit et al. étudient la réponse acoustique d'une nanoparticule unique[112] après avoir réussi à l'isoler. Par interférométrie, ils montrent qu'ils sont aptes à suivre les vibrations de nanoparticules sphériques. Par la suite, plusieurs travaux de recherche ont permis de montrer que l'étude de la réponse acoustique des nanoparticules peut renseigner sur les dimensions de ces dernières[113].

Récemment, Y. Guillet et al. ont démontré que lorsqu'une particule est déposée sur un substrat, leur réponse acoustique manifeste un nouveau mode de vibration. Ce dernier est alors propre au contact entre la particule et le substrat [114]. Dans le cadre de ce travail, c'est

ce type d'échantillon qu'il a été choisi d'étudier afin d'illustrer l'apport de l'échantillonnage hétérodyne dans l'imagerie d'hétérogénéités élastiques. Dans la suite de ce chapitre il va être montré qu'en balayant à l'aide de la sonde et de la pompe la surface d'un échantillon hétérogène, matérialisé par une lamelle de silice sur laquelle sont déposées des particules submicroniques d'or, le banc d'acoustique picoseconde est apte à détecter ces hétérogénéités élastiques, à les imager et à enregistrer leurs réponses acoustiques. Il sera montré comment l'étude de ces réponses permet de différencier la taille des particules présentes sur la lamelle avec une précision de l'ordre de la dizaine de nanomètres.

3.2.1.2 Description des particules

Les particules utilisées dans le cadre de cette thèse se présentent sous forme de solution colloïdales. Elles sont préparées par l'équipe de Serge Ravaine du Centre de Recherche Paul Pascal (CRPP, UPR CNRS 8641). Ces particules ont la forme de sphères dont le diamètre moyen est de 500 nm. Chacune d'elles est composée de grains élémentaires mésoscopiques dont les diamètres sont d'environ 30 nm. La figure 3.11, extraite de la référence [115], est une image de ces particules prise au microscope électronique à balayage. L'allure générale de l'agrégat explique pourquoi le terme de « meatball » est employé pour désigner ces particules.

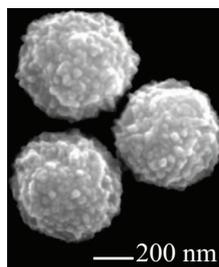


FIGURE 3.11: Les particules d'or se présentent sous la forme d'agglomérats dont le diamètre moyen est d'environ 500 nm. Chacun de ces agglomérats est composé de plusieurs grains d'or d'environ 30 nm de diamètre. Figure extraite de [115]

La préparation des échantillons étudiés s'effectue simplement en déposant une goutte de la solution colloïdale sur une lamelle de microscope et en laissant l'eau s'évaporer.

3.2.2 Réponse impulsionnelle d'une particule d'or déposée sur un substrat

3.2.2.1 Mécanisme d'excitation

Lorsqu'une impulsion laser est absorbée par une particule submicronique d'or, cette particule convertit, après plusieurs étapes, la radiation lumineuse en énergie thermique. Cette énergie thermique est la cause d'une dilatation brutale de la particule. Cette dilatation provoque alors l'excitation de la particule au travers d'un large spectre acoustique. Pour les

particules considérées dans la suite, l'analyse de ce spectre révèle la présence de deux modes privilégiés. Le premier mode est propre à la particule et contient des informations sur ses propriétés géométriques et mécaniques. Le second mode dépend quant à lui de la nature du contact entre la particule et le substrat. Les deux prochains paragraphes présentent l'origine et les caractéristiques de ces deux modes. Dans la suite de ce chapitre, au vue de la pénétration optique de la lumière dans l'or à 1030 nm[47] et de la longueur de diffusion des électrons dans ce matériau [116, 117], les particules, dont le diamètre moyen est d'environ 500 nm, seront considérées comme uniformément chauffées.

3.2.2.2 Dynamique de la particule

3.2.2.2.1 Modes propres de vibration d'une sphère

Dans cette partie du manuscrit, il sera supposé que le contact entre la particule et le substrat n'a pas d'influence sur les modes propres de la particule[113].

Pour une sphère placée dans une matrice isotrope et dont le rayon est supérieur à 2 nm le comportement acoustique peut être déduit par un traitement classique[118]. La résolution de l'équation de Navier en tenant compte des conditions de continuité des contraintes à la surface fait apparaître deux familles de modes vibratoires [118, 119, 120]. Ces modes sont illustrés sur la figure 3.12. Les modes de torsion [fig. 3.12(a) et (b)] traduisent la mise en mouvement de la particule sans que cette dernière ne change de volume. Les modes sphéroïdaux [fig. 3.12(c) et (d)] se caractérisent quant à eux par un changement de volume. Chacun des modes de vibration est caractérisé par un nombre l et un nombre n . Ces nombres se rapportent respectivement à la nature de la vibration considérée et à son numéro d'harmonique[121].

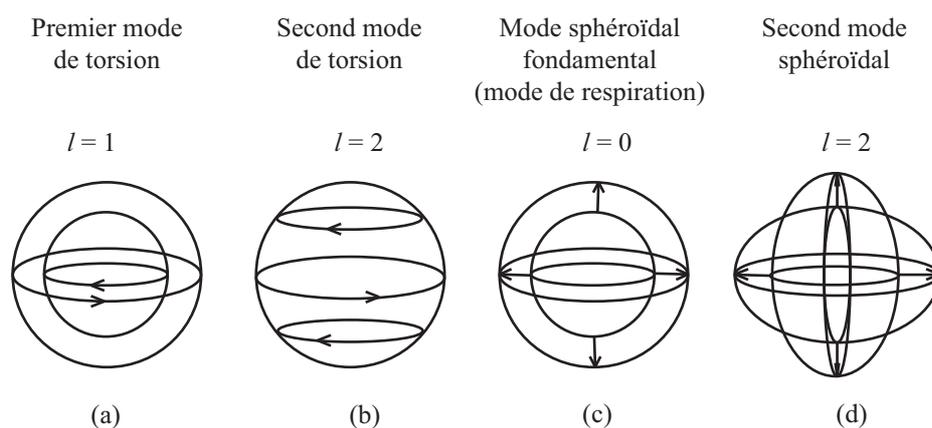


FIGURE 3.12: Illustrations des premiers modes de vibration d'une sphère. Les modes de torsion (a) et (b) sont caractérisés par un déplacement radial nul. Les modes sphéroïdaux (c) et (d) se caractérisent quant à eux par un déplacement de la surface de la sphère. Figure d'après [121].

La fréquence $f_{n,l}$ d'un mode (n, l) de vibration d'une sphère est liée à la vitesse des ondes acoustiques longitudinales dans la sphère c_l , à son rayon R et à un terme correctif $\varrho_{n,l}$. Ce dernier prend en considération la géométrie de la particule et dépend aussi d'une combinaison des vitesses longitudinales et transversales des ondes acoustiques dans la particule et la matrice environnante. La relation qui lie ces grandeurs est donnée par[122] :

$$f_{n,l} = \varrho_{n,l} \frac{c_l}{R} . \quad (3.4)$$

Dans la suite de cette section c'est la fréquence du mode sphéroïdal fondamental qui est étudiée pour déduire les dimensions des particules. Ce mode, aussi appelé mode de respiration, correspond au couple $(n = 0, l = 0)$. Sa fréquence sera par la suite notée f_0 . La fréquence de ce mode est donnée pour une particule d'or par la formule approchée[120] :

$$f_0 = \frac{2.95c_l}{2\pi R} . \quad (3.5)$$

3.2.2.2 Mode d'adhésion au substrat

Lorsqu'une particule est déposée sur un substrat, de nouvelles composantes spectrales apparaissent. Parmi celles-ci, l'une correspond à un mouvement de translation axiale. La fréquence de ce mode est propre au contact entre la particule et le substrat. Ce contact peut être schématisé par un système masse-ressort [114], comme l'illustre la figure 3.13.

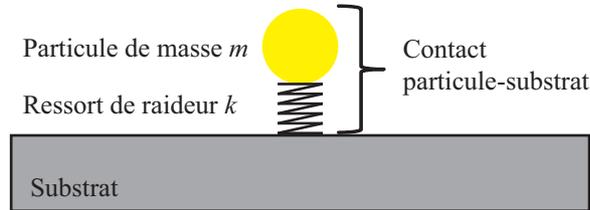


FIGURE 3.13: Le contact entre une particule de masse m posée sur une substrat peut être modélisé par un système masse-ressort. Ce dernier exhibe alors une fréquence propre $f_a = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m}}$ où k est la raideur du ressort.

La fréquence du mode propre du contact ainsi modélisé est donnée par la relation :

$$f_a = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m}} , \quad (3.6)$$

où k est la constante de raideur du ressort et m la masse de la particule. La valeur de k en fonction des propriétés mécaniques du substrat et de la particule est donnée en annexe C.

En considérant les paramètres du problème, il peut être montré (se référer à l'annexe C pour le développement des calculs) que[114] :

$$f_a \propto r^{-\frac{7}{6}}. \quad (3.7)$$

En conclusion, lors de l'excitation impulsionnelle d'une particule submicronique sphérique, déposée sur un substrat, deux modes sont préférentiellement excités : le mode de respiration, de fréquence f_0 , propre à la particule et un mode axial, de fréquence f_a , sensible au contact entre le substrat et la particule. Une loi de puissance lie alors les deux fréquences :

$$f_a \propto f_0^{\frac{7}{6}}. \quad (3.8)$$

3.2.2.3 Principe de détection par contraste interférométrique

La détection du mouvement des particules se fait ici par contraste interférométrique [104]. Ce mode de détection, présentée sur la figure 3.14, est effectif dans le cas présent puisque le diamètre moyen des particules (environ 500 nm) est plus petit que le diamètre de la surface éclairée par la sonde (environ 2 μm). De ce fait, lorsqu'elle est positionnée sur une particule, une partie de la sonde se réfléchit sur la surface supérieure de cette dernière et l'autre partie se réfléchit sur le substrat. La différence de marche entre les deux faisceaux réfléchis donne alors naissance à un état interférentiel. Un déplacement vertical de la surface de la particule conduit à une variation de la différence de marche des faisceaux réfléchis. Pour des petits déplacements, cette différence se traduit par une variation de tension aux bornes du photodétecteur proportionnelle au déplacement considéré.

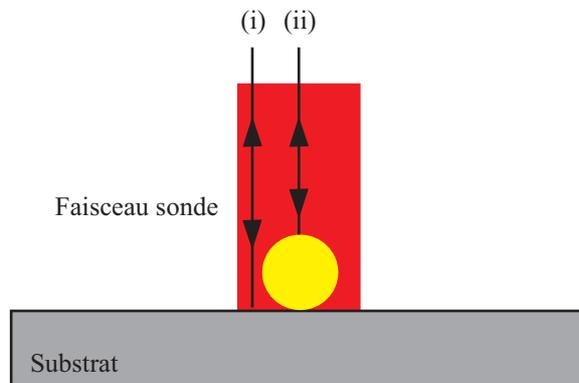


FIGURE 3.14: Pour des particules dont le diamètre est inférieur à celui de la tâche focale du laser sonde, la détection du mouvement de surface peut se faire par interférométrie. En effet (i) une partie du faisceau se réfléchit sur le substrat et (ii) l'autre sur la particule. La différence de marche entre les deux faisceaux réfléchis conduit alors à des interférences constructives ou destructives qui permettent de mesurer le déplacement vertical de la particule étudiée.

Le déplacement de la surface supérieure de la particule est non seulement dû à la déformation de la particule (mode de respiration) mais aussi au déplacement d'ensemble

de la particule (mode axial). La figure 3.15 illustre le signal typique obtenu en excitant une particule d'or déposée sur un substrat de silice. La basse fréquence f_a correspond à la fréquence du mouvement axial de la sphère alors que la haute fréquence f_0 , mise en évidence dans l'insert de la figure, correspond à la fréquence fondamentale du mode de respiration de la particule.

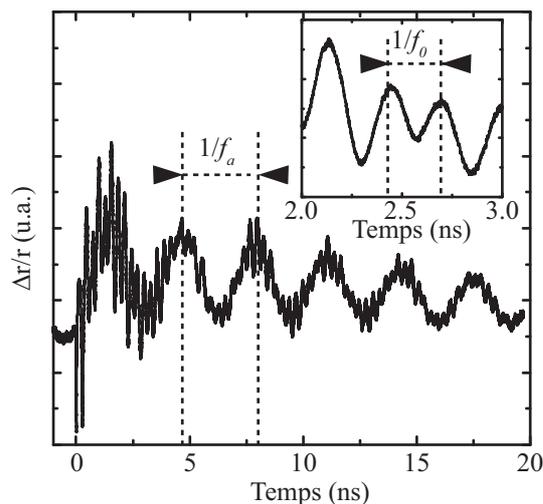


FIGURE 3.15: Lors de l'excitation d'une particule d'or déposée sur un substrat, la réponse acoustique exhibe deux fréquences : la première, notée ici f_0 et mise en évidence dans l'insert, est inversement proportionnelle au rayon de la particule. La seconde fréquence, de valeur plus faible et notée ici f_a est propre au contact entre la particule et le substrat.

3.2.3 Cartographies

Afin de montrer que le système est capable de détecter, d'imager et de caractériser des hétérogénéités submicroniques, il a été choisi de cartographier l'échantillon sur une surface de $84 \mu\text{m}^2$ sur laquelle sont disposées trois particules. La figure 3.16 présente une image optique de la surface de l'échantillon. Sur cette image obtenue à l'aide d'un objectif de microscope à grossissement $\times 50$, il n'est pas possible d'attribuer un diamètre aux trois sphères A, B et C mises en évidence dans l'insert.

3.2.3.1 Imagerie de particules par contraste interférométrique

Avant de réaliser une cartographie dynamique de la surface de l'échantillon, il est nécessaire de repérer les positions des particules déposées sur le substrat. Pour ce faire, une image par contraste interférométrique est réalisée.

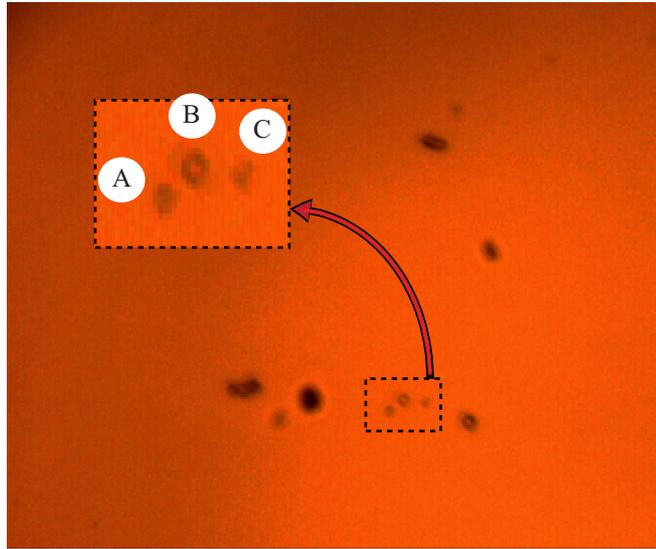


FIGURE 3.16: Image optique de la surface de l'échantillon. Cette image a été obtenue à l'aide d'un microscope à coefficient de grossissement $\times 50$. Sur cette image, il est difficile de faire la distinction et de donner une taille aux particules A, B et C.

L'imagerie par contraste interférométrique ne fait appel qu'au laser sonde. Le principe de mesure est illustré par la figure 3.17 : la surface de l'échantillon est balayée par le faisceau sonde. Pour ce faire, l'échantillon est placé sur une platine motorisée xy . Afin de ne pas perturber les mesures, la pompe est occultée. La sonde réfléchiée d'une part par les nanoparticules et d'autre part par le substrat est orientée vers le photo-détecteur. La tension générée par ce dernier est alors enregistrée pour différentes positions de la sonde sur l'échantillon. La mesure est réalisée en balayant une surface de $10\ \mu\text{m} \times 5.5\ \mu\text{m}$. Le pas dans chaque direction est de $150\ \text{nm}$: la mesure est réalisée en 20 minutes sur 2479 points (67×37).

La représentation de la tension mesurée en chaque point de l'échantillon permet alors d'obtenir l'image par contraste interférométrique présentée sur la figure 3.18. Sur cette image, chaque tâche correspond à une particule. L'étude de cette figure révèle que les positions relatives des particules détectées par interférométrie sont conformes à celles constatées à l'aide du microscope optique et reportées sur la figure 3.16.

3.2.3.2 Cartographie dynamique des particules

Alors que le protocole précédent permettait de détecter avec une précision de l'ordre du micron les positions des particules, cette partie expose la méthode utilisée pour étudier la réponse dynamique globale d'un échantillon composé d'un substrat de silice sur lequel sont déposées des sphères d'or aux diamètres submicroniques. Pour ce faire, les lasers pompe et sonde sont ici utilisés.

L'acquisition de la dynamique de l'échantillon est réalisée en déplaçant ce dernier à l'aide

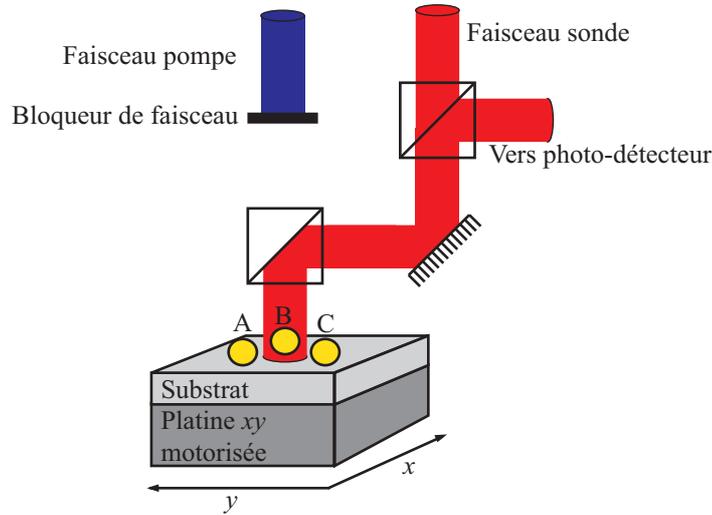


FIGURE 3.17: Détection des particules par contraste interférométrique. Pour cette mesure, seul le laser sonde est utilisé. Celui-ci balaye l'échantillon et se réfléchit vers le photo-détecteur. Le balayage s'effectue en déplaçant l'échantillon à l'aide d'une platine motorisée.

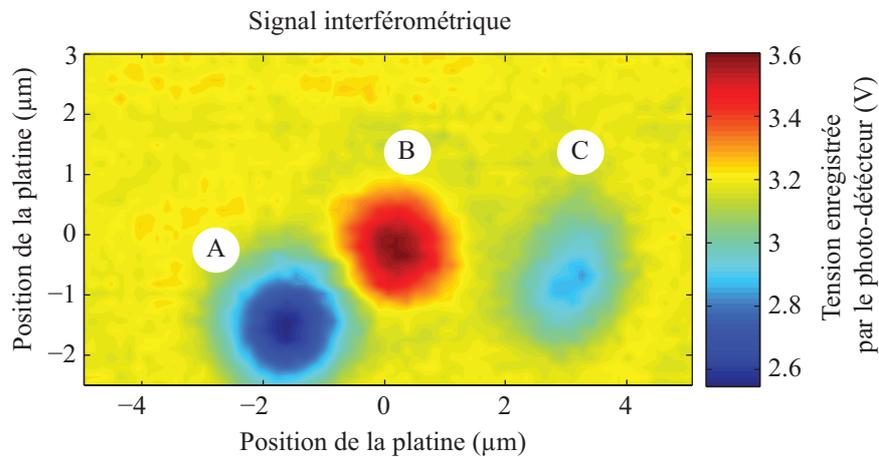


FIGURE 3.18: Image par contraste interférométrique de la surface de l'échantillon balayée. A chaque tâche de couleur correspond une particule. Les positions des trois particules sont bien corrélées avec celles de la figure 3.16.

d'une platine motorisée xy comme l'illustre la figure 3.19. Ce déplacement est alors à l'origine du balayage de la surface de l'échantillon par la pompe et la sonde. Il permet d'en enregistrer les réponses transitoires en différents points de l'espace. Par la suite, le balayage est réalisé sur 111 points par 71 avec un pas de 100 nm dans les deux directions. La dynamique de chaque pixel est enregistrée pour 26000 retards pompe-sonde répartis entre la coïncidence et un retard pompe-sonde de 20 ns. Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit, les signaux sont à chaque fois moyennés 4000 fois. La fréquence de battement entre les cavités lasers pompe et sonde est fixée à 400 Hz. L'ensemble de la mesure nécessite 24 h. Les puissances

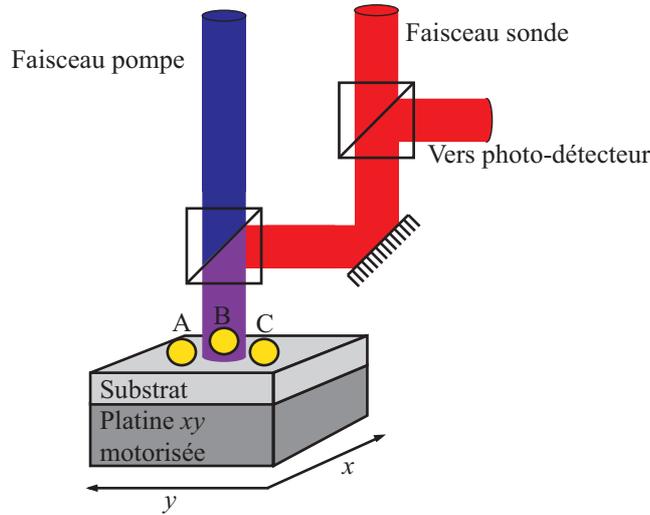


FIGURE 3.19: Le balayage de l'échantillon par les tâches focales pompe et sonde est réalisé en le déplaçant à l'aide d'une platine xy motorisée. Ce balayage permet de faire l'acquisition des réponses transitoires du matériau en différents points de l'espace. L'étude de ces réponses permet alors de mettre en évidence des hétérogénéités acoustiques.

de pompe et de sonde mises en jeu sont de 18 mW chacune : il s'agit ici des valeurs qui permettent d'obtenir des mesures présentant le meilleur rapport S/B sans que les fluences des lasers dégradent l'échantillon.

3.2.3.2.1 Réponses temporelles des nanoparticules

Le mécanisme de détection étant par contraste interférométrique (cf. section 3.2.3.1), l'amplitude du signal transitoire enregistré par le photo-détecteur est directement proportionnelle au déplacement de la surface de l'échantillon. Le signal transitoire enregistré par le photo-détecteur est nul lorsque la pompe et la sonde sont focalisées sur le substrat transparent. En revanche lorsque les lasers éclairent une particule, celle-ci exhibe sa réponse transitoire dont la forme typique est illustrée par la figure 3.15 présentée précédemment.

L'exploitation directe des signaux de mesure permet alors d'obtenir une animation qui illustre les réponses impulsionnelles des nanoparticules A, B et C. Deux échelles de temps sont alors à considérer : la première est de l'ordre de la centaine de picosecondes. Elle permet d'observer les modes fondamentaux de respiration des trois sphères. La seconde échelle de temps, plus longue, de l'ordre de la nanoseconde, permet d'observer les modes de translation axiale propres aux contacts entre les particules et le substrat. Ces échelles sont mises en évidence par les cadres en pointillés de la figure 3.20 qui illustrent le déplacement de la particule B à différents instants après l'absorption de l'impulsion pompe. Dans le cadre du haut, la particule est observée dans une fenêtre temporelle de 700 ps. Elle exhibe clairement un mouvement dont la période propre est d'environ 480 ps. Pour mettre cette période en

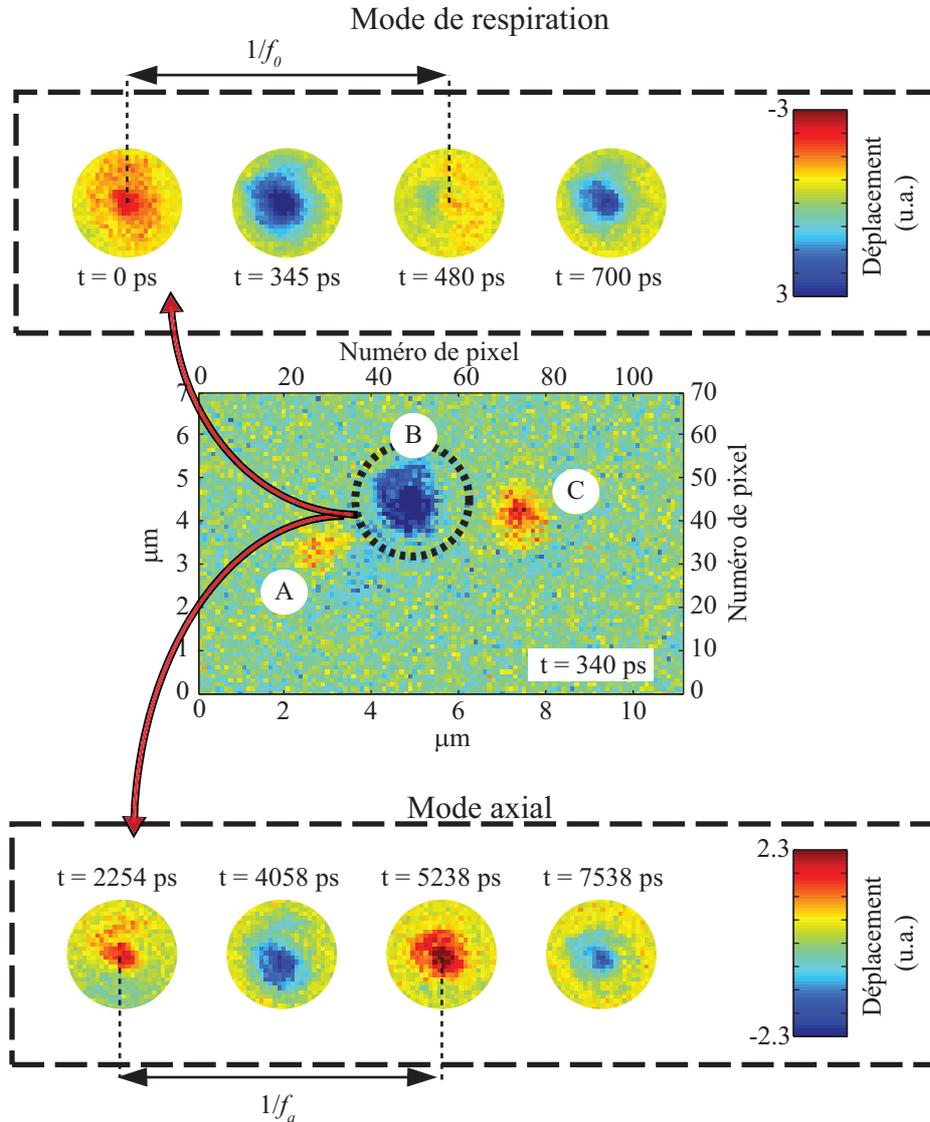


FIGURE 3.20: L'excitation de particules submicroniques déposées sur un substrat se manifeste par un déplacement de surface selon les fréquences de respiration et d'adhésion respectivement notées f_0 et f_a . Pour mettre en évidence ces fréquences, deux échelles de temps sont à considérer : la première de l'ordre de la centaine de picosecondes permet de mettre en évidence le mouvement de respiration de la particule en représentant cette dernière 345 ps, 480 ps et 700 ps après qu'elle ait absorbé l'impulsion pompe (insert du haut). Une seconde échelle de temps, de l'ordre de la nanoseconde, permet quant à elle d'observer le mouvement d'adhésion de la particule (insert du bas). En représentant cette dernière aux temps 2.3 ns, 4 ns, 5.2 ns et enfin 7.5 ns, une période apparaît clairement.

évidence, la particule B est représentée à 345 ps, 480 ps et 700 ps après son excitation par l'impulsion pompe.

Le second mode de vibration observé, est quant à lui propre au contact entre le substrat et la particule. Il est mis en évidence dans le second encadré de la figure. Son analyse nécessite d'observer la particule sur une plus grande fenêtre temporelle : ici la largeur de cette dernière est d'environ 5 ns. Ce mouvement se caractérise par une translation d'ensemble de la particule dont le caractère périodique est mis en évidence sur la figure en imageant le déplacement de la surface de la sphère à 2 ns, 4 ns, 5.2 ns et enfin 7.5 ns après son excitation.

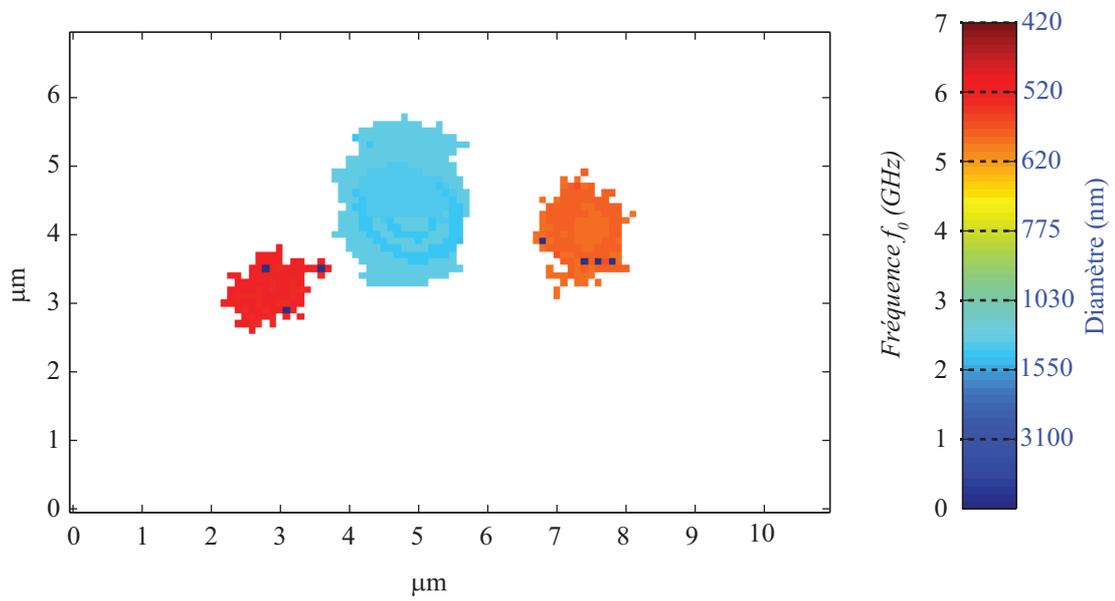
3.2.3.2.2 Cartographie des modes de respiration et d'adhésion

Comme il vient d'être expliqué, la cartographie dynamique présentée sur la figure 3.20 permet d'observer, avec une résolution d'une picoseconde environ³, le comportement temporel des particules étudiées. En revanche cette représentation ne permet pas d'en extraire les fréquences f_0 et f_a nécessaires à la description de l'échantillon. C'est la présence de plusieurs modes de vibration qui rend cette opération délicate dans le domaine temporel. L'idée est de réaliser une transformée de Fourier des signaux temporels acquis en chaque point de l'espace. Les deux fréquences f_a et f_0 en sont alors extraites de façon automatisée en recherchant les raies présentes dans une certaine plage fréquentielle. Afin de ne pas tenir compte d'éventuelles fréquences parasites, seules les raies dont l'amplitude dépasse un certain seuil sont prises en compte. Les cartographies 3.21(a) et 3.21(b), qui représentent respectivement les fréquences de respiration et d'adhésion détectées en chaque point de l'échantillon, peuvent alors être réalisées. Les nanoparticules se trouvent au final matérialisées sur ces figures par leur différentes fréquences de vibration.

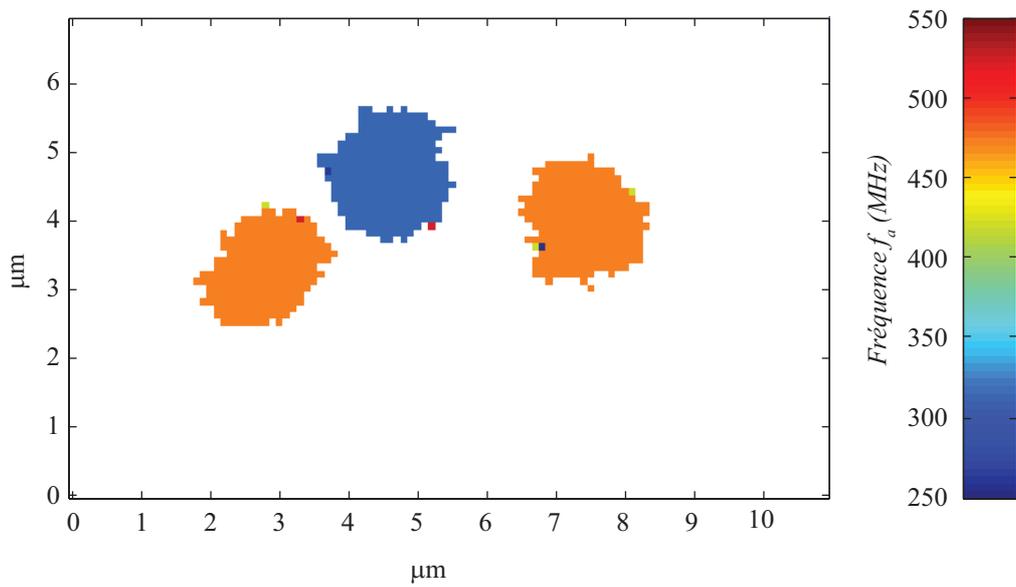
Les données statistiques relatives à la distribution des différentes fréquences de respiration relevées pour chacune des particules permettent d'en estimer, à partir de l'équation (3.5) et de la célérité des ondes acoustiques dans l'or massif (3300 m/s), les diamètres associés. Une synthèse de l'estimation de la taille des particules est présentée dans le tableau 3.1 : elles sont de 554 nm, 1380 nm et 611 nm respectivement pour les particules A, B et C. Ces tailles sont données avec une erreur relative de l'ordre de 5% pour la particule B et de 2% pour les particules A et C. Ces incertitudes ont été calculées en étudiant la dispersion des fréquences mesurées et en étendant l'écart type de ces fréquences d'un facteur 2. Elles sont donc données, en supposant la vitesse des ondes acoustique dans les sphères d'or parfaitement connues, avec une certitude de 95%.

Une étude plus poussée des fréquences f_a permettrait quant à elle de caractériser la raideur du contact de chacune des particules étudiées [114]. Cette étude sort du cadre de cette thèse.

3. Il est rappelé que cette résolution est ici donnée par la gigue relative des deux lasers.



(a)



(b)

FIGURE 3.21: Cartographie des fréquences de respiration (a) et des fréquences axiales (b) détectées lors du balayage de l'échantillon par la pompe et la sonde.

	Particule A	Particule B	Particule C
f_0 mesurée (GHz)	5.91	2.37	5.35
Ecart-type (GHz)	0.04	0.08	0.06
Diamètre (nm)	554 ± 6	1380 ± 84	611 ± 13

TABLE 3.1: *Résumé des propriétés physiques des particules cartographiées. La connaissance des réponses acoustiques des nanoparticules et l'exploitation de ces dernières permet de donner une estimation de leur diamètre avec une incertitude de quelques dizaines de nanomètres.*

3.2.4 Conclusion

La seconde section de ce chapitre a démontré que le système pompe-sonde hétérodyne était apte à détecter des particules submicroniques en quelques minutes. Une fois ces particules détectées, l'enregistrement des réponses transitoires de 8000 points localisés sur la zone d'intérêt a permis d'observer les modes de vibration de ces particules sur une fenêtre de 21 ns. Le fait que l'échantillonnage hétérodyne autorise l'enregistrement de la dynamique des échantillons pour 26000 retards pompe-sonde permet de conclure qu'ici la gigue dicte la résolution temporelle du banc. Cette résolution est d'environ une picoseconde. L'étude du mouvement des particules, réalisable grâce à des mesures présentant de bons rapports signal sur bruit, combinée aux points qui viennent d'être exposés, a permis de conclure quant aux diamètres des sphères, et ce avec une résolution de quelques dizaines de nanomètres. Les résultats présentés dans cette partie auraient nécessité plusieurs mois d'acquisition à l'aide d'un banc homodyne. L'acoustique picoseconde, associée à des temps d'acquisition rapides, constitue un bon moyen de détection et de caractérisation de particules submicroniques et plus généralement d'hétérogénéités dans des échantillons.

En bref, cette section a démontré comment l'étude de la dynamique des échantillons ouvrirait la voie de l'imagerie acoustique à l'aide de fréquences qui s'étendent bien au delà du gigahertz. Ces fréquences permettent la caractérisation de la taille d'hétérogénéité acoustiques submicroniques avec une résolution de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Cette résolution, autorisée par la finesse spectrale du banc de mesure et conséquente aux taux de répétition des sources laser relativement bas, n'est ni envisageable à l'aide de microscopes acoustiques traditionnels, au vu de leurs bandes passantes, ni à l'aide de microscopes optiques, car les longueurs d'onde optiques visibles sont bien trop grandes par rapport aux corps étudiés.

3.3 Conclusion du chapitre

Ce dernier chapitre a permis d'illustrer l'apport de l'échantillonnage hétérodyne en acoustique picoseconde. Il est ainsi possible d'acquérir des animations avec des résolutions temporelles de l'ordre de la picoseconde et ce sur des fenêtres d'observation larges de plusieurs

dizaines de nanosecondes. Cet apport a été illustré au travers de deux exemples : la propagation d'ondes de surface et la caractérisation d'échantillons hétérogènes à une échelle submicronique.

En ce qui concerne les ondes de surface, la capacité du banc à les générer et à imager leur propagation a été démontrée expérimentalement ici. La résolution temporelle des signaux acquis, de l'ordre de la picoseconde, permet d'envisager l'étude future d'ondes de surface dont le contenu pourra s'étendre au delà du gigahertz. Cette génération et détection sans contact n'aurait pas été réalisable avec des transducteurs classiques au vu de leurs bandes passantes limitées et des dimensions des structures étudiées. Quant à l'utilisation d'un banc homodyne, elle n'aurait pas pu offrir la résolution spectrale et temporelle (dans des temps de mesure raisonnables) nécessaires au tracé de courbes de dispersion, lesquelles constituent un outil formidable pour le contrôle non destructif ou la caractérisation de couches minces.

En ce qui concerne l'analyse d'échantillons hétérogènes, c'est à travers la détection et la caractérisation de particules d'or submicroniques que la démonstration a été faite. Il a été montré que le banc était apte non seulement à détecter ces particules en quelques minutes grâce à de l'interférométrie, mais en plus, à les caractériser à l'aide de leurs réponses transitoires. Il n'existe à ce jour aucune autre méthode capable d'imager acoustiquement des structures de si petites tailles, ce qui permet d'estimer leurs dimensions avec une résolution de quelques dizaines de nanomètres.

Conclusion générale

L'objectif de ce travail était de réaliser les premières images à l'aide d'ondes acoustiques picoseconde à l'I2M. Pour ce faire, un banc pompe-sonde hétérodyne y a été mis en place. La description du travail réalisé pour arriver à cette fin s'est articulé en trois principales parties.

Dans un premier temps, les différences de principe entre les bancs d'acoustique picoseconde homodyne et hétérodyne ont été évoquées. Puis les méthodes mises en œuvre afin d'adapter les caractéristiques optiques de la double cavité laser aux besoins des expériences d'acoustique picoseconde ont été présentées. Le principe de l'asservissement en fréquence des cavités lasers, nécessaire pour obtenir une moindre gigue sur des fenêtres temporelles relativement larges, a ensuite été décrit. Une méthode tout-optique de mesure des performances de cet asservissement a été présentée. Cette méthode a permis de montrer que la gigue relative des deux lasers est inférieure à 500 fs. Cette valeur a permis de conclure qu'en théorie, la source est bien compatible avec les applications d'acoustique picoseconde visées.

Dans un second temps, les principes de l'acoustique picoseconde ont été brièvement présentés. Puis l'étude de la réflectivité transitoire d'une couche nanométrique de tungstène déposée sur un substrat de silicium a montré que le système est apte à générer et à détecter des ultrasons dont le contenu spectral s'étend au delà de la centaine de gigahertz avec un très bon rapport signal sur bruit de 75 dB et sans nécessiter plus de 4 min d'acquisition. Enfin une mesure du temps de vie des phonons dans la silice a permis d'illustrer comment la haute résolution spectrale du banc, autorisée par les taux de répétition des cavités lasers relativement bas (par rapport à ce qui est déployé traditionnellement en acoustique picoseconde hétérodyne), permet d'effectuer l'étude de phénomènes transitoires avec une grande précision.

Enfin la troisième partie a été consacrée à l'application de l'échantillonnage hétérodyne dans le domaine de l'imagerie en acoustique picoseconde. Dans un premier temps l'imagerie de la propagation d'ondes de surface dans une couche de tungstène déposée sur un substrat de silicium a été réalisée. Cette expérience a permis de montrer que les ondes de surface générées étaient sensibles à la présence d'une couche d'épaisseur nanométrique. Dans un second temps, il a été montré que le système était apte à imager la réponse de particules d'or submicroniques individuelles. L'étude de ces images a permis de montrer que le banc permettait de détecter et de quantifier la taille d'hétérogénéités submicronique avec une résolution

relative de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Il a aussi été montré que les mesures contiennent de l'information relative à l'adhésion de ces particules d'or au substrat, information qui se manifeste par la présence d'un mode spectral de fréquence relativement basse.

En 2008, notre équipe présentait les premières expériences d'acoustique picoseconde réalisées dans des cellules vivantes individuelles. Ces expériences ont permis de montrer, entre autres, que la vitesse des ultrasons dans la cellule et dans le noyau sont différentes. L'idée, à moyen terme, est de réaliser une cartographie des propriétés élastiques d'une cellule. Cette cartographie constituera alors la première échographie à l'échelle cellulaire. A long terme, l'utilisation de ces échographies pourra par exemple, en nanomédecine, renseigner sur l'état de santé des cellules : de même qu'un cancer est détectable par palpation lorsque son développement est macroscopique, il pourrait être détectable à l'échelle cellulaire à un stade moins avancé à l'aide de l'acoustique picoseconde.

Annexes

Annexe A

Relation entre la gigue et la bande passante d'un banc hétérodyne

A.1 Effet local de la gigue sur la mesure réalisée

Qu'elles soient homodynes ou hétérodyne, les expériences pompe-sonde font appel à de l'échantillonnage. Cet échantillonnage peut être décrit mathématiquement comme la convolution du signal à échantillonner $s(t)$ avec un dirac $\delta(nTe)$. L'expression $s(n)$ du signal échantillonné est alors donnée par :

$$s(n) = \int_0^{\infty} s(t)\delta(t - nTe)dt \quad (\text{A.1})$$

L'équation (A.1) présente une acquisition dont la fréquence d'échantillonnage $f_e = \frac{1}{Te}$ ne fluctue pas. Or, du fait de la gigue temporelle du train d'impulsion sonde, Te présente certaines variations aléatoires. Afin d'en tenir compte, il faut rajouter un terme $\Delta T(t)$ dans l'expression de $s(n)$ qui devient alors :

$$s(n) = \int_0^{\infty} s(t)\delta(t - nTe + \Delta T(t))dt = s(nTe + \Delta T(t)) \quad (\text{A.2})$$

Lors d'une expérience pompe-sonde, la réponse d'un échantillon ne peut être déduite suite à l'analyse d'un seul signal $s(n)$ car celui ci manifeste généralement un trop faible rapport de signal sur bruit (S/B). Afin de connaître la réponse physique recherchée, les expérimentateurs ont souvent recours à des moyens statistiques. L'estimation par la variance est un de ces moyens, elle permet d'augmenter le rapport S/B lorsque le bruit est de type aléatoire.

La variance $\bar{s}(n)$ de N' signaux est donnée par :

$$\bar{s}(n) = \frac{1}{N'} \sum_{k=1}^{N'} s_k(n) \quad (\text{A.3})$$

En injectant (A.2) dans l'expression de la variance, il vient :

$$\bar{s}(n) = \frac{1}{N'} \sum_{k=1}^{N'} s(nTe + \Delta T(t, k)) \quad (\text{A.4})$$

Or l'espérance mathématique de la variable $s(n)$ peut aussi être reliée aux valeur de $s(n)$ et à leur densités de probabilité $P(s)$:

$$\bar{s}(n) = \frac{1}{N'} \sum_{-\infty}^{+\infty} s_k(nTe + \Delta T(t, k)) P(s_k(nTe + \Delta T(t, k))) \quad (\text{A.5})$$

La distribution de ΔT est en forme de gaussienne, ce qui peut être justifié par la suite en analysant les traces d'intercorrelation. L'écart type de cette distribution est défini comme étant la valeur de la gigue. L'expression (A.6) devient :

$$\bar{s}(n) = \frac{1}{N'} \sum_{-\infty}^{+\infty} s_k(nTe + \Delta T(t, k)) \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp^{-\frac{(t-nTe)^2}{2\sigma^2}} \quad (\text{A.6})$$

D'après la définition du produit de convolution, il vient :

$$\bar{s}(n) = s(t) \otimes \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp^{-\frac{(t-nTe)^2}{2\sigma^2}} \quad (\text{A.7})$$

La dernière équation montre que la gigue combinée à une estimation des signaux par leur variance a tendance à moyennner localement les signaux. La partie qui suit va quantifier la relation qu'il y a entre cette sommation locale et la chute de bande passante. La figure A.1 illustre cette chute de bande passante due à la sommation de points numérisés par un système présentant une gigue.

A.2 Relation entre la valeur de la gigue et la bande passante d'un système

Le calcul de la bande passante d'un système se fait en déterminant la fréquence $f_{-3 \text{ dB}}$ fréquence pour laquelle la réponse de ce système est atténuée de 3 dB lorsqu'il est excité par une impulsion temporelle (autrement dit un dirac). Dans le cas présent, il suffit de faire la transformée de Fourier du produit de convolution présenté au dessus A.7, lorsque $s(t) = \delta(0)$. Il en vient :

$$\bar{s}(f) = s_0 \exp^{-(2\pi\sigma f)^2} \quad (\text{A.8})$$

La fréquence de coupure $f_{-3 \text{ dB}}$ est la fréquence pour laquelle l'amplitude des signaux est divisée par $\sqrt{2}$:

$$\bar{s}(f_{-3 \text{ dB}}) = \frac{s_0}{\sqrt{2}} \quad (\text{A.9})$$

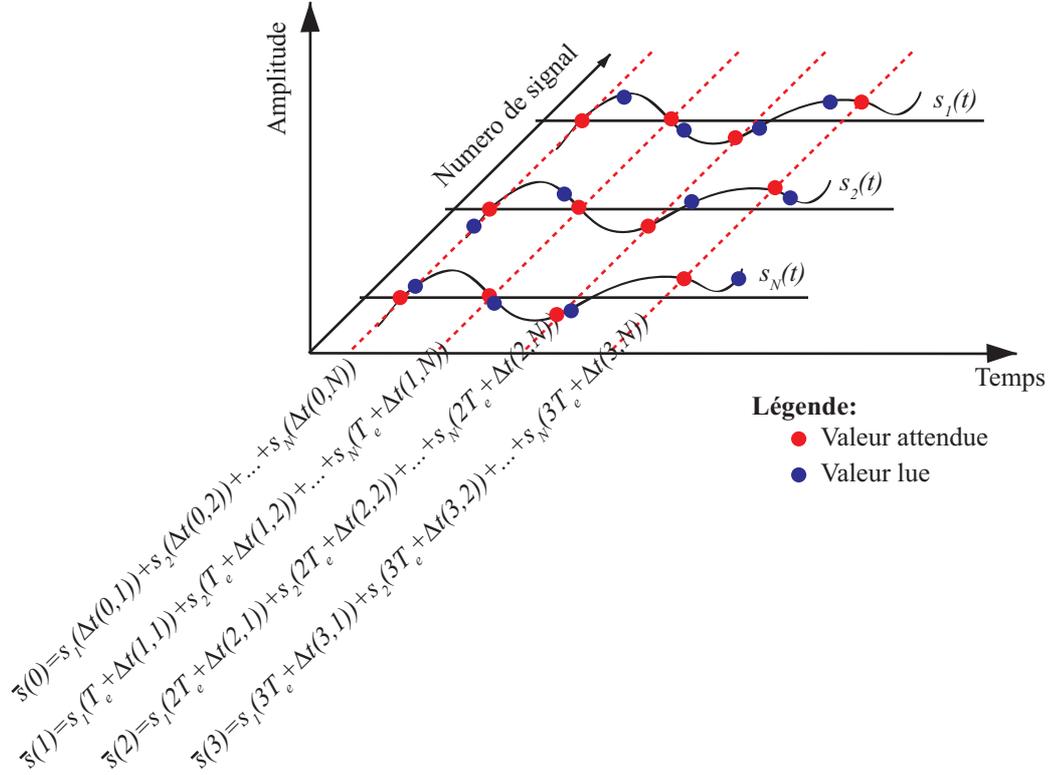


FIGURE A.1: L'estimation de la réponse transitoire d'un matériau, dans le cadre d'une expérience pompe-sonde, se fait en calculant la variance de N acquisitions. En supposant que l'échantillon possède une réponse parfaitement reproductible et que la gigue du système soit nulle, c'est à dire que le temps d'échantillonnage T_e soit parfait, l'estimateur final reproduira parfaitement la réponse de l'échantillon. Si en revanche T_e présente une fluctuations aléatoires $\Delta T(i, j)$ qui varie non seulement pour différents points d'un même signal mais aussi pour les points de signaux différents qui doivent être sommés, alors l'estimateur final sera dégradé. Cette dégradation se manifestera par un lissage temporel de la dynamique enregistrée.

Il vient en remplaçant $s(f_{-3 \text{ dB}})$ par son expression :

$$f_{-3 \text{ dB}} = \frac{\sqrt{\log 2}}{2\sqrt{2\pi}\sigma} \sim 0.09 \frac{1}{\sigma} \quad (\text{A.10})$$

Le produit de la bande passante par la valeur de la gigue rms d'un système est donc sensiblement égal à un dixième.

Annexe B

Relation entre le spectre d'un signal mesuré et la gigue temporelle.

B.1 Définition des termes.

Soit un signal $V(t)$ de fréquence nominale ν_0 . L'expression de $V(t)$ est :

$$V(t) = [V_0 + \varepsilon(t)] \sin(2\pi\nu_0 t + \phi(t)) . \quad (\text{B.1})$$

L'introduction des quantités aléatoires $\varepsilon(t)$ et $\phi(t)$ permet de prendre en compte des fluctuations respectives d'amplitude et de phase du signal. La phase instantanée $\Phi(t)$ du signal, est définie comme étant la quantité :

$$\Phi(t) = 2\pi\nu_0 t + \phi(t) . \quad (\text{B.2})$$

La fréquence instantanée $\nu(t)$ d'un signal est définie comme étant le rapport de la dérivée temporelle de la phase divisée par 2π :

$$\nu(t) = \frac{1}{2\pi} \frac{d\Phi(t)}{dt} = \nu_0 + \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi}{dt} = \nu_0 + \Delta\nu(t) . \quad (\text{B.3})$$

La fréquence instantanée $\nu(t)$ d'un signal est donc donnée par sa valeur nominale ν_0 , à laquelle s'ajoute une composante aléatoire $\Delta\nu(t)$.

Le problème est que la fréquence instantanée d'un signal est une grandeur qui n'est pas directement observable[27]. Les chercheurs qui travaillent sur le sujet ont donc recours à des estimateurs. Deux types d'estimateurs sont utilisés : les estimateurs fréquentiels et les estimateurs statistiques. Dans le chapitre 1 de ce manuscrit, l'écart type des périodes a été mesuré pour définir la valeur de la gigue et il a été expliqué à plusieurs reprises dans le corps du texte que la valeur de la gigue dépendait des bornes sur laquelle le bruit de phase était intégré. Cet annexe établit le lien entre la valeur de la gigue d'un signal mesuré et la densité spectrale de ce dernier afin de prouver cette dernière affirmation.

B.2 Relations entre la densité spectrale de signal mesuré, le bruit de phase et le bruit de fréquence

La densité spectrale du signal $V(t)$ est donnée par [27, 123] :

$$S_V(f) = \frac{V_0^2}{2} (\delta(f - \nu_0) + S_\phi^{TS}(f - \nu_0) + S_A^{TS}(f - \nu_0)) , \quad (\text{B.4})$$

où S_ϕ^{TS} et S_ϕ^A sont respectivement les densité spectrale monolatérales des bruits de phase et d'amplitudes et $\delta(f - \nu_0)$ la distribution de Dirac centrée en ν_0 . Il vient :

$$S_\phi^{TS}(f - \nu_0) = \frac{2}{V_0^2} S_V(f) - \delta(f - \nu_0) - S_A^{TS}(f - \nu_0) . \quad (\text{B.5})$$

Le bruit fréquentiel peut être déterminé en utilisant cette dernière relation et l'équation (B.3) :

$$S_v^{TS}(f - \nu_0) = \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 S_\phi^{TS}(f - \nu_0) = \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{2}{V_0^2} S_V(f) - \delta(f - \nu_0) - S_A^{TS}(f - \nu_0)\right) , \quad (\text{B.6})$$

et donc :

$$S_v^{TS}(f) = \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 S_\phi^{TS}(f) = \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{2}{V_0^2} S_V(f + \nu_0) - \delta(f) - S_A^{TS}(f)\right) . \quad (\text{B.7})$$

Cette dernière relation montre que la densité spectrale du bruit de fluctuation des fréquences d'un oscillateur est surtout contenue dans les fréquences élevées du bruit de phase.

B.3 Relation entre la densité spectrale du bruit de fréquence et de la gigue mesurée

Dans la suite de cette démonstration, il sera supposé que les fluctuations de fréquence ont une valeur moyenne nulle : la valeur moyenne de la fréquence du signal étudiée est f_0 . Par conséquent, l'écart type des fluctuations de fréquence est donné par :

$$\langle \Delta v^2(t) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} \Delta v^2(t) dt . \quad (\text{B.8})$$

En utilisant le théorème de Parseval, il vient :

$$\langle \Delta v^2(t) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} \Delta v^2(t) dt = \int_0^\infty S_{\Delta v}(f) df . \quad (\text{B.9})$$

La relation qui existe (règle de trois) entre la gigue spectrale et temporelle est donnée par

$$\langle \Delta T \rangle = \frac{\Delta v}{(v_0 + \Delta v)v_0} \approx \frac{\Delta v}{(v_0)^2} . \quad (\text{B.10})$$

Il vient en combinant (B.7) , (B.9) et (B.10) il vient :

$$\langle \Delta T^2 \rangle = \frac{1}{(v_0)^4} \int_0^\infty \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{2}{V_0^2} S_V(f + v_0) - \delta(f) - S_A^{TS}(f)\right) df . \quad (\text{B.11})$$

et donc il vient :

$$\langle \Delta T \rangle = \frac{1}{(v_0)^2} \sqrt{\int_0^\infty \left(\frac{f}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{2}{V_0^2} S_V(f + v_0) - \delta(f) - S_A^{TS}(f)\right) df} \quad (\text{B.12})$$

$$= \frac{1}{(v_0)^2} \sqrt{\int_0^\infty S_\phi^{TS} df} . \quad (\text{B.13})$$

Ce dernier résultat montre que la gigue est surtout contenu dans les hautes fréquences du bruit de phase. De plus, il montre bien que la valeur de la gigue dépend des bornes d'intégration du bruit de phase qui dans la pratique sont finies.

Annexe C

Mode d'adhésion de la particule au substrat : résolution linéaire.

Le calcul liant le mode de vibration d'adhésion au rayon d'une particule, dont le résultat a été présenté dans la partie 3.2.2.2.2 est ici développé.

Pour calculer le mode propre d'adhésion d'une nanoparticule au substrat, il faut dans un premier temps prendre en considération les forces auxquelles elle est soumise. Traditionnellement deux forces sont à prendre en compte : la première la force de Van der Waals qui possède un caractère attractif, la seconde, quant à elle est répulsive : c'est la force de Hertz[124, 125]. Ces deux forces sont liées au rayon de la sphère r à considérer, à la distance de pénétration h , à l'énergie d'adhésion ϑ et au module d'Young conjugué \overline{E} par la relation[124] :

$$F = -2\pi r \vartheta + h^{\frac{3}{2}} r^{\frac{1}{2}} \overline{E}, \quad (\text{C.1})$$

où la valeur de \overline{E} est donnée par :

$$\overline{E} = \frac{2}{4} \left(\frac{1 - \nu^2}{E} + \frac{1 - \nu_p^2}{E_p} \right), \quad (\text{C.2})$$

avec E , E_p , ν et ν_p respectivement les coefficients d'Young et de Poisson du substrat et de la particule. Cette force dérive d'un potentiel d'interaction U dont la valeur est donnée par :

$$U = -2\pi r h \vartheta + \frac{2}{5} h^{\frac{5}{2}} r^{\frac{1}{2}} \overline{E}. \quad (\text{C.3})$$

La représentation de la valeur du potentiel en fonction de la profondeur du contact, illustrée par la figure C.1, montre l'existence d'un puit de potentiel à la profondeur h_0 .

La position d'équilibre de la nanoparticule, posée sur le substrat peut être déterminée en trouvant quelle est la position h_0 pour laquelle la dérivée du potentiel U s'annule. La force F dérivant de ce potentiel U , cela revient à trouver la valeur de h_0 pour laquelle F s'annule. En utilisant l'équation (C.1), il vient immédiatement :

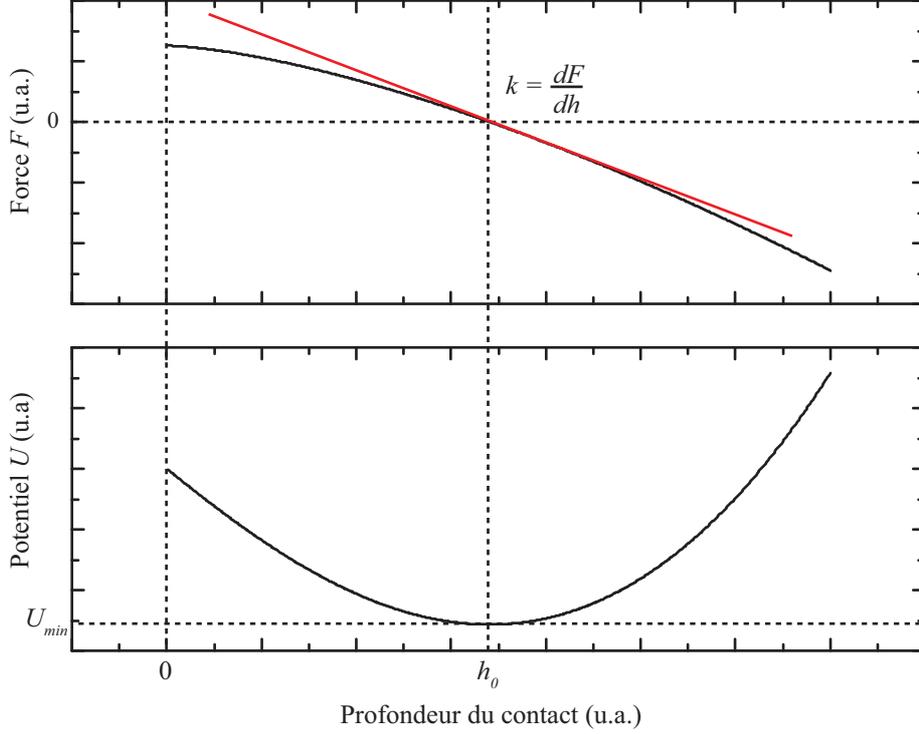


FIGURE C.1: La position d'équilibre de la particule ne se situe pas en surface du substrat mais à une profondeur h_0 , là où le potentiel d'interaction U est minimal. Lorsque la particule se met en mouvement, suite à une excitation, la seule translation d'ensemble qu'elle puisse avoir, à l'étude de la symétrie du problème est un mouvement porté par la normale à la surface sur laquelle elle est déposée.

$$h_0 = \left(\frac{2\pi\vartheta}{E} \right)^{\frac{2}{3}} r^{\frac{1}{2}}. \quad (\text{C.4})$$

La position à l'équilibre de la nanoparticule n'est pas en surface : celle-ci interpénètre légèrement dans le substrat comme l'illustre la figure C.2.

Pour un petit déplacement δh autour de sa position d'équilibre h_0 , la force qui s'applique à la bille est donnée par :

$$F(h_0 + \delta h) = -2\pi r \vartheta + (h_0 + \delta h)^{\frac{3}{2}} r^{\frac{1}{2}} \overline{E} \quad (\text{C.5})$$

$$= -2\pi r \vartheta + h_0^{\frac{3}{2}} \left(1 + \frac{\delta h}{h_0} \right)^{\frac{3}{2}} r^{\frac{1}{2}} \overline{E} \quad (\text{C.6})$$

$$\sim -2\pi r \vartheta + h_0^{\frac{3}{2}} \left(1 + \frac{3}{2} \frac{\delta h}{h_0} \right) r^{\frac{1}{2}} \overline{E}. \quad (\text{C.7})$$

En linéarisant le problème, la raideur k du contact peut être déterminée en calculant la dérivée de F en h_0 , il vient :

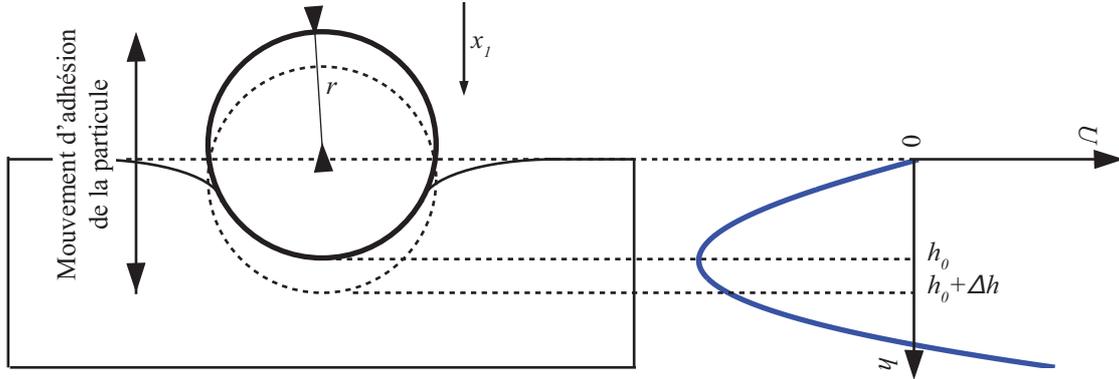


FIGURE C.2: La position d'équilibre de la particule ne se situe pas en surface du substrat mais à une profondeur h_0 , là où le potentiel d'interaction U entre la particule et le substrat est minimal. Lorsque la particule se met en mouvement, suite à une excitation, la seule translation d'ensemble qu'elle puisse avoir, à l'étude de la symétrie du problème est un mouvement porté par la normale à la surface sur laquelle elle est déposée.

$$k = \frac{dF(h_0)}{dh} = -\frac{3}{2}(h_0 r)^{\frac{1}{2}} \bar{E}. \quad (\text{C.8})$$

En remplaçant h_0 par son expression donnée par (C.4), il vient :

$$k = \frac{3}{2} \left(\frac{2\pi\vartheta}{\bar{E}} \right)^{\frac{1}{3}} r^{\frac{2}{3}} \quad (\text{C.9})$$

Toujours en s'appuyant sur l'hypothèse de linéarité, le mode propre ω_0 d'oscillation de l'adhésion de la particule sur son substrat est relié à la masse de la particule m par la relation :

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}} \quad (\text{C.10})$$

Il vient en exprimant m par $\frac{4}{3}r^3\rho_p$ et k par son expression (C.9) :

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{\frac{3}{2} \left(\frac{2\pi\vartheta}{\bar{E}} \right)^{\frac{1}{3}} r^{\frac{2}{3}}}{\frac{4}{3}r^3\rho_p}} = \sqrt{\frac{\frac{9}{8} \left(\frac{2\pi\vartheta}{\bar{E}} \right)^{\frac{1}{3}}}{\rho_p} r^{-\frac{7}{6}}} \quad (\text{C.11})$$

$$\propto r^{-\frac{7}{6}} \quad (\text{C.12})$$

Alors que le mode propre d'une sphère est inversement proportionnel à son rayon, le mode d'adhésion est quant à lui inversement proportionnel au rayon selon la loi de puissance ci-dessus.

Bibliographie

- [1] J. BOK et C. KOUNELIS : Paul langevin (1872-1946). *Europhys. News*, 38(1):19–21, 2007.
- [2] S. SOKOLOFF : **Brevet soviétique n° 49**, 1936.
- [3] S. SOKOLOFF : The ultrasonic microscope. *Doklady*, 67:333–345, 1949.
- [4] C. THOMSEN, J. STRAIT, Z. VARDENY, H.J. MARIS, J. TAUC et J.J. HAUSER : Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 53:989, 1984.
- [5] R. M. WHITE : Generation of elastic waves by transient surface heating. *J. Appl. Phys.*, 34(12):3559–3567, 1963.
- [6] S. DILHAIRE, W. CLAEYS, J-M. RAMPNOUX et C. ROSSIGNOL : Optical heterodyne sampling device - **Brevet international WO 2007/045773**, 2007.
- [7] C. RULLIÈRE : *Femtosecond Laser Pulses : Principles and Experiments*. Springer-Verlag, New York, 2nd édition, 2004.
- [8] L. R. KHUNDKAR, J. L. KNEE et A. H. ZEWEIL : Picosecond photofragment spectroscopy. i. microcanonical state-to-state rates of the reaction $\text{NCNO} \rightarrow \text{CN} + \text{NO}$. *J. Chem. Phys.*, 87(1):77–96, 1987.
- [9] N. F. SCHERER et A. H. ZEWEIL : Picosecond photofragment spectroscopy. ii. the overtone initiated unimolecular reaction $\text{H}_2\text{O}_2(\nu_{\text{OH}}=5) \rightarrow 2\text{OH}$. *J. Chem. Phys.*, 87(1):97–114, 1987.
- [10] J. L. KNEE, L. R. KHUNDKAR et A.H. ZEWEIL : Picosecond photofragment spectroscopy. iii. vibrational predissociation of van der waals clusters. *J. Chem. Phys.*, 87(1):115–127, 1987.
- [11] L.S MA, R. K. SHELTON, H.C. KAPTEYN, M.M. MURNANE et J. YE : Sub-10-femtosecond active synchronization of two passively mode-locked ti :sapphire oscillators. *Phys. Rev. A*, 64:021802, 2001.
- [12] P. A ELZINGA, F. E. LYTLE, Y. J., G.B. KING et N. M. LAURENDEAU : Pump/probe spectroscopy by asynchronous optical sampling. *Appl. Spectrosc.*, 41(1):2–4, 1987.
- [13] H. MICHEL : *Imagerie pompe-sonde femtoseconde : Application à l'étude thermique de nanomatériaux pour la microélectronique*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, 2008.

- [14] C. HÖNNINGER, R. PASCHOTTA, M. GRAF, F. MORIER-GENOUD, G. ZHANG, M. MOSER, S. BISWAL, J. NEES, A. BRAUN, G.A. MOUROU, I. JOHANNSEN, A. GIESEN, W. SEEBER et U. KELLER : Ultrafast ytterbium-doped bulk lasers and laser amplifiers. *Appl. Phys. B : Lasers Opt.*, 69:3–17, 1999.
- [15] R.M. KOLBAS, N.G. ANDERSON, W.D. LAIDIG, Y. SIN, Y.C. LO, K.Y. HSIEH et Y.J. YANG : Strained-layer ingaas-gaas-algaas photopumped and current injection lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 24(8):1605–1613, 1988.
- [16] HECHT : *Optics*. Pearson Education, Upper Saddle River, New Jersey, 4ème édition, 2008.
- [17] A. E. SIEGMAN : How to (maybe) measure laser beam quality. In *DPSS (Diode Pumped Solid State) Lasers : Applications and Issues*, page MQ1. Optical Society of America, 1998.
- [18] H. A. HAUS et A. MECOZZI : Noise of mode-locked lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 29(3):983–996, 1993.
- [19] D. LINDE : Characterization of the noise in continuously operating mode-locked lasers. *Appl. Phys. B : Lasers Opt.*, 39:201–217, 1986.
- [20] A. BARTELS, F. HUDERT, C. JANKE, T. DEKORSY et K. KÖHLER : Femtosecond time-resolved optical pump-probe spectroscopy at kilohertz-scan-rates over nanosecond-time-delays without mechanical delay line. *Appl. Phys. Lett.*, 88:041117, 2006.
- [21] A. BARTELS, R. CERNA, C. KISTNER, A. THOMA, F. HUDERT, C. JANKE et T. DEKORSY : Ultrafast time-domain spectroscopy based on high-speed asynchronous optical sampling. *Rev. Sci. Instrum.*, 78:035107, 2007.
- [22] G. KLATT, R. GEBS, C. JANKE, T. DEKORSY et A. BARTELS : Rapid-scanning terahertz precision spectrometer with more than 6 thz spectral coverage. *Opt. Express*, 17(25):22847–22854, 2009.
- [23] Y. KIM et D.S YEE : High-speed terahertz time-domain spectroscopy based on electronically controlled optical sampling. *Opt. Lett.*, 35(22):3715–3717, 2010.
- [24] R. K. SHELTON, S.M. FORMAN, L.S. MA, J.L. HALL, H.C. KAPTEYN, M.M. MURNANE, M. NOTCUTT et J. YE : Subfemtosecond timing jitter between two independent, actively synchronized, mode-locked lasers. *Opt. Lett.*, 27(5):312–314, 2002.
- [25] D. BANERJEE : *Fractional N frequency synthesis. Application note n° 1879*. Texas Instruments, 2008.
- [26] National communications System Technology and Standards Division. *Telecommunication : glossary of telecommunication terms-Federal standards 1037C*, 1996.
- [27] J. RUTMAN : Characterization of phase and frequency instabilities in precision frequency sources : Fifteen years of progress. *Proc. IEEE*, 66(9):1048–1075, 1978.
- [28] F. VERNOTTE : Stabilité temporelle et fréquentielle des oscillateurs : modèles. *Techniques de l'ingénieur : métrologie temps-fréquence*, base documentaire : TIB415DUO(ref. article : r680), 2013.

- [29] F. VERNOTTE : Stabilité temporelle et fréquentielle des oscillateurs : outils d'analyse. *Techniques de l'ingénieur : métrologie temps-fréquence*, base documentaire : TIB415DUO(ref. article : r681), 2013.
- [30] C. J. ZHU, J. F. HE et S. C. WANG : Generation of synchronized femtosecond and picosecond pulses in a dual-wavelength femtosecond titanium sapphire laser. *Opt. Lett.*, 30(5): 561–563, 2005.
- [31] R. PASCHOTTA, B. RUDIN, A. SCHLATTER, G.J. SPÜHLER, L. KRAINER, S.C. ZELLER, N. HAVERKAMP, H.R. TELLE et U. KELLER : Relative timing jitter measurements with an indirect phase comparison method. *Appl. Phys. B : Lasers Opt.*, 80:185–192, 2005.
- [32] L. A. JIANG, S. T. WONG, M. E. GREIN, E. P. IPPEN et H. A. HAUS : Measuring timing jitter with optical cross correlations. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 38(8):1047–1052, 2002.
- [33] R.W. BOYD : *Nonlinear Optics*. Academic Press, London, 3ème édition, 2008.
- [34] HAMAMATSU : Spectre d'absorption G1115-données constructeur, 2012.
- [35] L. A. JIANG, M. E. GREIN, H. A. HAUS et E. P. IPPEN : Noise of mode-locked semiconductor lasers. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 7(2):159–167, 2001.
- [36] AGILENT TECHNOLOGIES : Agilent : N5181A MXG RF Analog Signal Generator-données constructeur, 2012.
- [37] Y. LI, W. LI, Q. HAO, M. YAN, H. ZHOU et H. ZENG : Generation of synchronized three-color ultrashort laser pulses at high repetition rate. *Laser Phys. Lett.*, 7(1):50–54, 2010.
- [38] J.P. CALLAN : *Ultrafast Dynamics and Phase Changes in Solids Excited by Femtosecond Laser Pulses*. Thèse de doctorat, Harvard, 2000.
- [39] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, H. J. MARIS et J. TAUC : Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Phys. Rev. B*, 34(6):4129–4138, 1986.
- [40] Y. EZZAHRI, S. GRAUBY, J. M. RAMPNOUX, H. MICHEL, G. PERNOT, W. CLAEYS, S. DILHAIRE, C. ROSSIGNOL, G. ZENG et A. SHAKOURI : Coherent phonons in Si/SiGe superlattices. *Phys. Rev. B*, 75(19):195309, 2007.
- [41] A. HUYNH, B. PERRIN, N. D. LANZILLOTTI-KIMURA, B. JUSSERAND, A. FAINSTEIN et A. LEMAÎTRE : Subterahertz monochromatic acoustic wave propagation using semiconductor superlattices as transducers. *Phys. Rev. B*, 78(23):233302, 2008.
- [42] A. HUYNH, B. PERRIN, B. JUSSERAND et A. LEMAÎTRE : Terahertz coherent acoustic experiments with semiconductor superlattices. *Appl. Phys. Lett.*, 99(19):191908–191908–3, 2011.
- [43] C.K. SUN, F. VALLÉE, L. ACIOLI, E. P. IPPEN et J. G. FUJIMOTO : Femtosecond investigation of electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B*, 48(16):12365–12368, 1993.

- [44] S. LABORDE : *Acoustique picoseconde dans les multicouches métalliques*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Février 2006.
- [45] C.K. SUN, F. VALLÉE, L. H. ACIOLI, E. P. IPPEN et J. G. FUJIMOTO : Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B*, 50:15337–15348, 1994.
- [46] C. ROSSIGNOL, J. M. RAMPNOUX, M. PERTON, B. AUDOIN et S. DILHAIRE : Generation and detection of shear acoustic waves in metal submicrometric films with ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94:166106, Apr 2005.
- [47] Site internet de l’institut IOFFE - SPECTRE D’ABSORPTION DU TUNGSTÈNE : <http://www.ioffe.rssi.ru/sva/nsm/nk/index.html>, 2012.
- [48] T. PÉZERIL : *Génération et détection d’ondes acoustiques transverses picosecondes : théories et expériences*. Thèse de doctorat, Université du Mans, 2005.
- [49] N. CHIGAREV, C. ROSSIGNOL et B. AUDOIN : Surface displacement measured by beam distortion detection technique : Application to picosecond ultrasonics. *Rev. Sci. Instrum.*, 77(11):114901–114901–5, 2006.
- [50] C. ROSSIGNOL, B. PERRIN, B. BONELLO, P. DJEMIA, P. MOCH et H. HURDEQUINT : Elastic properties of ultrathin permalloy/alumina multilayer films using picosecond ultrasonics and brillouin light scattering. *Phys. Rev. B*, 70:094102, 2004.
- [51] C. KITTEL : *Physique de l’état solide*. Dunod, Paris, 8ème édition, 2007.
- [52] S. AYRINHAC : *Propagation et atténuation du son dans la silice-étude par spectroscopie Brillouin et acoustique picoseconde*. Thèse de doctorat, Université de Montpellier, 2008.
- [53] G. KLATT, R. GEBS, H. SCHÄFER, M. NAGEL, C. JANKE, A. BARTELS et T. DEKORSY : High-resolution terahertz spectrometer. *IEEE J. Quantum. Electron.*, 17(1):159–168, 2011.
- [54] THORLABS : Balanced photodetectors - Données du constructeur, 2012.
- [55] J.M. RAMPNOUX : *Développement de bancs d’acoustique picoseconde pour la caractérisation sans contact par impulsions laser ultracourtes de couches micrométriques et sub-micrométriques de composants microélectroniques*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, 2003.
- [56] D. G. CAHILL, W. K. FORD, K. E. GOODSON, G. D. MAHAN, A. MAJUMDAR, H. J. MARIS, R. MERLIN et S. R. PHILLPOT : Nanoscale thermal transport. *J. Appl. Phys.*, 93(2):793–818, 2003.
- [57] G. PERNOT, M. STOFFEL, I. SAVIC, F. PEZZOLI, P. CHEN, G. SAVELLI, A. JACQUOT, J. SCHUMANN, U. DENKER, I. MÖNCH, Ch. DENEKE, O. G. SCHMIDT, J. M. RAMPNOUX, S. WANG, M. PLISSONNIER, A. RASTELLI, S. DILHAIRE et N. MINGO : Precise control of thermal conductivity at the nanoscale through individual phonon-scattering barriers. *Nat. Mater.*, 9(6):491–495, 2010.

- [58] S. DILHAIRE, G. PERNOT, G. CALBRIS, J. M. RAMPNOUX et S. GRAUBY : Heterodyne picosecond thermoreflectance applied to nanoscale thermal metrology. *J. Appl. Phys.*, 110(11):114314–114314–13, 2011.
- [59] T. DEHOUX : *Génération et détection par couplage élasto-optique tridimensionnel de champs acoustiques picosecondes diffractés*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2007.
- [60] S. AYRINHAC, M. FORET, A. DEVOS, B. RUFFLÉ, E. COURTENS et R. VACHER : Subterahertz hypersound attenuation in silica glass studied via picosecond acoustics. *Phys. Rev. B*, 83:014204, 2011.
- [61] R. VACHER, E. COURTENS et M. FORET : Anharmonic versus relaxational sound damping in glasses. ii. vitreous silica. *Phys. Rev. B*, 72:214205, 2005.
- [62] T. C. ZHU, H. J. MARIS et J. TAUC : Attenuation of longitudinal-acoustic phonons in amorphous SiO₂ at frequencies up to 440 GHz. *Phys. Rev. B*, 44(9):4281–4289, 1991.
- [63] C. MASCIOVECCHIO, G. RUOCCO, F. SETTE, P. BENASSI, A. CUNSOLO, M. KRISCH, V. MAZZACURATI, A. MERMET, G. MONACO et R. VERBENI : High-frequency propagating modes in vitreous silica at 295 k. *Phys. Rev. B*, 55:8049–8051, 1997.
- [64] P. BENASSI, S. CAPONI, R. ERAMO, A. FONTANA, A. GIUGNI, M. NARDONE, M. SAMPOLI et G. VILIANI : Sound attenuation in a unexplored frequency region : Brillouin ultraviolet light scattering measurements in *v*-SiO₂. *Phys. Rev. B*, 71:172201, 2005.
- [65] C. MASCIOVECCHIO, A. GESSINI, S. DI FONZO, L. COMEZ, S. C. SANTUCCI et D. FIORETTO : Inelastic ultraviolet scattering from high frequency acoustic modes in glasses. *Phys. Rev. Lett.*, 92:247401, 2004.
- [66] M. SCHUBERT, M. GROSSMANN, O. RISTOW, M. HETTICH, A. BRUCHHAUSEN, E. C. S. BARRETTO, E. SCHEER, V. GUSEV et T. DEKORSY : Spatial-temporally resolved high-frequency surface acoustic waves on silicon investigated by femtosecond spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 101(1):013108–013108–4, 2012.
- [67] D. ROYER et E. DIEULESAINT : Rayleigh wave velocity and displacement in orthorhombic, tetragonal, hexagonal, and cubic crystals. *J. Acoust. Soc. Am.*, 76(5):1438–1444, 1984.
- [68] D. ROYER et E. DIEULESAINT : *Ondes élastiques dans les solides, tome 1 : Propagation libre et guidée*. Masson, Paris, 1997.
- [69] T. W. MURRAY, S. KRISHNASWAMY et J. D. ACHENBACH : Laser generation of ultrasound in films and coatings. *Appl. Phys. Lett.*, 74(23):3561–3563, 1999.
- [70] I. ARIAS et J.D. ACHENBACH : A model for the ultrasonic detection of surface-breaking cracks by the scanning laser source technique. *Wave Motion*, 39(1):61 – 75, 2004.
- [71] P. A. FOMITCHOV, Kromin A. K., Krishnaswamy S. et Achenbach J. D. : Imaging of damage in sandwich composite structures using a scanning laser source technique. *Composites Part B : Engineering*, 35(6-8):557 – 562, 2004.
- [72] R. S. EDWARDS, S. DIXON et X. JIAN : Enhancement of the rayleigh wave signal at surface defects. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 37(16):2291, 2004.

- [73] T. VALIER-BRASIER : *Propagation acoustique en guides fluides et solides à parois rugueuses : formulation intégrale pour ondes de pression, de cisaillement et de Lamb*. Thèse de doctorat, Université du Maine, septembre 2010.
- [74] T. VALIER-BRASIER, T. DEHOUX et B. AUDOIN : Scaled behavior of interface waves at an imperfect solid-solid interface. *J. Appl. Phys.*, 112(2):024904, 2012.
- [75] R. SALENBIEN, R. CÔTE, J. GOOSSENS, P. LIMAYE, R. LABIE et C. GLORIEUX : Laser-based surface acoustic wave dispersion spectroscopy for extraction of thicknesses, depth, and elastic parameters of a subsurface layer : Feasibility study on intermetallic layer structure in integrated circuit solder joint. *J. Appl. Phys.*, 109:093104, 2011.
- [76] S. SCHNEIDER et T. SCHWARZ : A photoacoustic method for characterising thin films. *Surf. Coat. Technol.*, 91(12):136–146, 1997.
- [77] L. QIXIAN et J.H. BUNGEY : Using compression wave ultrasonic transducers to measure the velocity of surface waves and hence determine dynamic modulus of elasticity for concrete. *Construction and Building Materials*, 10(4):237 – 242, 1996.
- [78] C-W. IN, J-Y KIM, K. E. KURTIS et L. J. JACOBS : Characterization of ultrasonic rayleigh surface waves in asphaltic concrete. *NDT & E International*, 42(7):610 – 617, 2009.
- [79] J. ATTAL : Microscopie acoustique. *Techniques de l'ingénieur : mesures de longueurs et d'angles*, base documentaire : TIB408DUO(ref. article : r1402), 2013.
- [80] M.J. ZIPPARO, K.K. SHUNG et T.R. SHROUT : Piezoceramics for high-frequency (20 to 100 MHz) single-element imaging transducers. *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr.*, 44(5):1038 –1048, 1997.
- [81] Y. SUGAWARA, O. B. WRIGHT, O. MATSUDA, M. TAKIGAHIRA, Y. TANAKA, S. TAMURA et V. E. GUSEV : Watching ripples on crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 88:185504, 2002.
- [82] Y. SUGAWARA, O. B. WRIGHT et O. MATSUDA : Real-time imaging of surface acoustic waves in thin films and microstructures on opaque substrates (invited). *Rev. Sci. Instrum.*, 74(1):519–522, 2003.
- [83] H. YAMAZAKI, O. MATSUDA et O.B. WRIGHT : Surface phonon imaging through the photoelastic effect. *Phys. Status Solidi C*, 1(11):2991–2994, 2004.
- [84] Takehiro TACHIZAKI, Toshihiro MUROYA, Osamu MATSUDA, Yoshihiro SUGAWARA, David H. HURLEY et Oliver B. WRIGHT : Scanning ultrafast sagnac interferometry for imaging two-dimensional surface wave propagation. *Rev. Sci. Instrum.*, 77(4):043713, 2006.
- [85] D. M. PROFUNSER, E. MURAMOTO, O. MATSUDA, O. B. WRIGHT et U. LANG : Dynamic visualization of surface acoustic waves on a two-dimensional phononic crystal. *Phys. Rev. B*, 80:014301, 2009.
- [86] D. H. HURLEY, R. LEWIS, O. B. WRIGHT et O. MATSUDA : Coherent control of gigahertz surface acoustic and bulk phonons using ultrafast optical pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 93(11):113101–113101–3, 2008.

- [87] Q. LI, K. HOOGBOOM-POT, D. NARDI, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN, M.E. SIEMENS, E.H. ANDERSON, O. HELLWIG, E. DOBISZ, B. GURNEY, R. YANG et K.A. NELSON : Generation and control of ultrashort-wavelength two-dimensional surface acoustic waves at nanoscale interfaces. *Phys. Rev. B*, 85:195431, 2012.
- [88] D.H. HURLEY et O.B. WRIGHT : Detection of ultrafast phenomena by use of a modified sagnac interferometer. *Opt. Lett.*, 24(18):1305–1307, 1999.
- [89] S. BRAMHAVAR, B. POUET et Murray T.W. : Superheterodyne detection of laser generated acoustic waves. *Appl. Phys. Lett.*, 94(11):114102, 2009.
- [90] R.G. WHITE et D.C. EMMONY : Active feedback stabilisation of a michelson interferometer using a flexure element. *J. Phys. E : Sci. Instrum.*, 18(8):658, 1985.
- [91] R. L. WHITMAN et A. KORPEL : Probing of acoustic surface perturbations by coherent light. *Appl. Opt.*, 8(8):1567–1576, 1969.
- [92] O. B. WRIGHT et K. KAWASHIMA : Coherent phonon detection from ultrafast surface vibrations. *Phys. Rev. Lett.*, 69:1668–1671, 1992.
- [93] J. HIGUET, T. VALIER-BRASIER, T. DEHOUX et B. AUDOIN : Beam distortion detection and deflectometry measurements of gigahertz surface acoustic waves. *Rev. Sci. Instrum.*, 82(11):114905–114905–8, 2011.
- [94] J.E. ROTHENBERG : Observation of the transient expansion of heated surfaces by picosecond photothermal deflection spectroscopy. *Opt. Lett.*, 13(9):713–715, 1988.
- [95] G. PERNOT : *Identification des propriétés thermiques et spectroscopie terahertz de nanostructures par thermoreflectance pompe-sonde asynchrone : application à l'étude du transport des phonons dans les super-réseaux*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 2010.
- [96] M. PERTON : *Ultrasons rayonnés par une source laser ponctuelle dans des milieux isotropes transverses et applications à la mesure du tenseur d'élasticité de cylindres et de couches minces*. Thèse de doctorat, Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2006.
- [97] Y. PAN, M. PERTON, C. ROSSIGNOL et B. AUDOIN : The transient response of a transversely isotropic cylinder under a laser point source impact. *Ultrasonics*, 44, Supplement(0):e823–e827, 2006.
- [98] B. AUDOIN, M. PERTON, N. CHIGAREV et C. ROSSIGNOL : Diffraction of picosecond bulk longitudinal and shear waves in micron thick films. application to their nondestructive evaluation. *Ultrasonics*, 48(6-7):574–577, 2008.
- [99] R.S. HIXSON et M.A. WINKLER : Thermophysical properties of solid and liquid tungsten. *Int. J. Thermophys.*, 11:709–718, 1990.
- [100] T. SAITO, O. MATSUDA, M. TOMODA et O.B. WRIGHT : Imaging gigahertz surface acoustic waves through the photoelastic effect. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(12):2632–2638, 2010.

- [101] T. TACHIZAKI, O. MATSUDA, A.A. MAZNEV et O.B. WRIGHT : Acoustic whispering-gallery modes generated and dynamically imaged with ultrashort optical pulses. *Phys. Rev. B*, 81:165434, 2010.
- [102] A.A. MAZNEV, O.B. WRIGHT et O. MATSUDA : Mapping the band structure of a surface phononic crystal. *New J. Phys.*, 13(1):013037, 2011.
- [103] J. DU, B.R. TITTMANN et H. S. JU : Evaluation of film adhesion to substrates by means of surface acoustic wave dispersion. *Thin Solid Films*, 518(20):5786 – 5795, 2010.
- [104] Y. GUILLET, C. ROSSIGNOL, B. AUDOIN, G. CALBRIS et S. RAVAINÉ : Optoacoustic response of a single submicronic gold particle revealed by the picosecond ultrasonics technique. *Appl. Phys. Lett.*, 95(6):061909–061909–3, 2009.
- [105] Y. GUILLET, B. AUDOIN, M. FERRIE et S. RAVAINÉ : Time-resolved probing of the acoustic field radiated by a single submicron gold particle. In SPIE, éditeur : *Ultrafast Phenomena in Semiconductors and Nanostructure Materials XV*, volume 7937, 2011.
- [106] A. AMZIANE, L. BELLIARD, F. DECREMPS et B. PERRIN : Ultrafast acoustic resonance spectroscopy of gold nanostructures : Towards a generation of tunable transverse waves. *Phys. Rev. B*, 83:014102, 2011.
- [107] M. NISOLI, S. DE SILVESTRI, A. CAVALLERI, A. M. MALVEZZI, A. STELLA, G. LANZANI, P. CHEYSSAC et R. KOFMAN : Coherent acoustic oscillations in metallic nanoparticles generated with femtosecond optical pulses. *Phys. Rev. B*, 55:R13424–R13427, 1997.
- [108] B. PERRIN, C. ROSSIGNOL, B. BONELLO et J.-C JEANNET : Interferometric detection in picosecond ultrasonics. *Physica B*, 263-264(0):571 – 573, 1999.
- [109] N. DEL FATTI, C. VOISIN, F. CHEVY, F. VALLÉE et C. FLYTZANIS : Coherent acoustic mode oscillation and damping in silver nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 110(23):11484–11487, 1999.
- [110] T. A. KELF, Y. TANAKA, O. MATSUDA, E. M. LARSSON, D. S. SUTHERLAND et O. B. WRIGHT : Ultrafast vibrations of gold nanorings. *Nano Lett.*, 11(9):3893–3898, 2011.
- [111] T. BIENVILLE, J.F. ROBILLARD, L. BELLIARD, I. ROCH-JEUNE, A. DEVOS et B. PERRIN : Individual and collective vibrational modes of nanostructures studied by picosecond ultrasonics. *Ultrasonics*, 44, Supplement(0):e1289 – e1294, 2006.
- [112] M.A. van DIJK, M. LIPPITZ et M. ORRIT : Detection of acoustic oscillations of single gold nanospheres by Time-Resolved interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, 95(26):267406, 2005.
- [113] P. ZIJLSTRA, A.L. TCHEBOTAREVA, J.W.M. CHON, M. GU et M. ORRIT : Acoustic oscillations and elastic moduli of single gold nanorods. *Nano Lett.*, 8(10):3493–3497, 2008.
- [114] Y. GUILLET, B. AUDOIN, M. FERRIE et S. RAVAINÉ : All-optical ultrafast spectroscopy of a single nanoparticle-substrate contact. *Phys. Rev. B*, 86:035456, 2012.

- [115] H. WANG et N.J. HALAS : Mesoscopic au meatball particles. *Adv. Mater.*, 20(4):820–825, 2008.
- [116] O. B. WRIGHT : Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver. *Phys. Rev. B*, 49:9985–9988, 1994.
- [117] T. DEHOUX, N. CHIGAREV, C. ROSSIGNOL et B. AUDOIN : Effect of lateral electronic diffusion on acoustic diffraction in picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. B*, 77:214307, 2008.
- [118] C. VOISIN, N. Del FATTI, D. CHRISTOFILOS et F. VALLÉE : Time-resolved investigation of the vibrational dynamics of metal nanoparticles. *Appl. Surf. Sci.*, 164(1-4):131 – 139, 2000.
- [119] L. SAVIOT et D.B. MURRAY : Longitudinal versus transverse spheroidal vibrational modes of an elastic sphere. *Phys. Rev. B*, 72:205433, 2005.
- [120] A. NELET, A. CRUT, A. ARBOUET, N. Del FATTI, F. VALLÉE, H. PORTALÈS, L. SAVIOT et E. DUVAL : Acoustic vibrations of metal nanoparticles : high order radial mode detection. *Appl. Surf. Sci.*, 226(1-3):209 – 215, 2004.
- [121] H. PORTALÈS : *Etude par diffusion Raman de nanoparticules métalliques en matrice diélectrique amorphe*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I, 2001.
- [122] C. VOISIN, D. CHRISTOFILOS, N. Del FATTI et F. VALLÉE : Environment effect on the acoustic vibration of metal nanoparticles. *Physica B*, 316-317(0):89 – 94, 2002.
- [123] J. RUTMAN : Relations between spectral purity and frequency stability. *In 28th Annual Symposium on Frequency Control. 1974*, pages 160– 165. IEEE, 1974.
- [124] N. ARNOLD : Resonance and steep fronts effects in nanosecond dry laser cleaning. *Appl. Surf. Sci.*, 197 :198(0):904 – 910, 2002.
- [125] E. BARTHEL : Adhesive elastic contacts : JKR and more. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 41(16):163001, 2008.

Résumé : l'acoustique picoseconde permet l'étude de structures aux dimensions sub-microniques grâce à l'utilisation d'ultrasons dont le contenu spectral peut s'étendre au-delà du THz. La génération et la détection de ces ondes sont rendues possibles par l'association de lasers impulsionnels femtosecondes à des dispositifs de type pompe-sonde. Ce manuscrit de thèse décrit la mise en place d'une expérience d'imagerie opto-acoustique avec une résolution spatiale submicronique. L'utilisation combinée d'un échantillonnage optique hétérodyne et de cavités lasers à bas taux de répétition (50 MHz) permet de gagner plusieurs ordres de grandeur sur les temps d'acquisition et de disposer d'une très bonne résolution spectrale. Le manuscrit s'articule autour de trois parties. Dans un premier temps les deux cavités laser aux taux de répétition légèrement différents permettant l'échantillonnage optique hétérodyne sont présentées. Puis l'architecture et les performances du système d'asservissement de leur taux de répétition sont décrites. Dans la seconde partie du manuscrit, l'implémentation de cette double cavité dans une expérience pompe-sonde est détaillée et la possibilité de détecter des ondes acoustiques sub-THz avec une résolution de 50 MHz est démontrée. Enfin, dans le dernier chapitre, la puissance de cette expérience pour réaliser de l'imagerie ultra-rapide est illustrée au travers de deux exemples : l'étude d'ondes acoustiques de surfaces GHz dont la dispersion est induite par la présence d'une couche nanométrique et la détection d'hétérogénéités élastiques submicroniques.

Mots clefs : acoustique picoseconde, imagerie acoustique, échantillonnage optique hétérodyne, pompe-sonde, asservissement de peignes de fréquence.

Abstract : acoustic waves in the Gigahertz or Terahertz frequency range allow the mechanical characterization of submicronic structures. The generation and the detection of these waves can be performed with the use of femtosecond lasers combined with pump-probe setups. This report describes the setting-up of an opto-acoustic imaging experiment with a submicronic spatial resolution. The association of asynchronous optical sampling with the use of low repetition rate femtosecond lasers considerably increases acquisition rates and offers a high spectral resolution, respectively. The first part of this report presents the two laser cavities with slightly different repetition rates in order to perform asynchronous optical sampling. The scheme and the performances of the synchronization stage are described. In the second part, the implementation of this dual-oscillator in a pump-probe experiment is detailed and the ability to detect sub-THz acoustic waves with a 50 MHz-spectral resolution is demonstrated. Finally, in the last chapter, the strong potential of this experiment to perform ultrafast imaging is illustrated through two examples : the measurement of the dispersion of GHz surface acoustic waves due to the presence of a thin film and the imaging and the sizing of submicronic elastic heterogeneities.

Key-words : picosecond ultrasonics, acoustic imaging, asynchronous optical sampling, pump-probe, frequency comb stabilization.