



Développement d'un interféromètre optique à chemin commun pour l'acoustique picoseconde

Julien Chandezon

► To cite this version:

Julien Chandezon. Développement d'un interféromètre optique à chemin commun pour l'acoustique picoseconde. Mécanique [physics.med-ph]. Université de Bordeaux, 2015. Français. NNT : 2015BORD0225 . tel-01264540

HAL Id: tel-01264540

<https://theses.hal.science/tel-01264540>

Submitted on 3 Feb 2016

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

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

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Julien Chandezon**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : **Mécanique**

**Développement d'un interféromètre optique à chemin
commun pour l'acoustique picoseconde.**

Soutenue le 6 Novembre 2015

M. P. DJEMIA, Professeur à l'université Paris 13
M. L. BELLIARD, Professeur à l'université Pierre et Marie Curie
M. D. MOUNIER, Maître de conférences à l'université du Maine
M. B. AUDOIN, Professeur à l'université de Bordeaux
M. S. DILHAIRE, Professeur à l'université de Bordeaux
M. Y. GUILLET, Maître de conférences à l'université Bordeaux

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Examineur

Table des matières

Table des matières	i
Remerciements	v
Introduction générale	1
1 Interférométrie en acoustique picoseconde	5
1.1 Principe de l'acoustique picoseconde	9
1.1.1 Génération des impulsions acoustiques	9
1.1.2 Détection des impulsions acoustiques	14
1.2 Génération et détection d'ondes acoustiques avec un dispositif pompe-sonde hétérodyne	20
1.2.1 Principe de l'échantillonnage homodyne	21
1.2.2 Principe du dispositif pompe-sonde hétérodyne	22
1.2.3 Acquisition de signaux de référence dans un milieu fortement ab- sorbant	25
1.2.4 Acquisition de signaux de référence dans un milieu faiblement ab- sorbant	29
1.3 Apport de l'interférométrie en acoustique picoseconde	31
1.3.1 Détection des déplacements de surface en réflectométrie	32
1.3.2 Interféromètres de Mach-Zehnder et de Michelson	36
1.3.3 Interféromètre de Sagnac	38
1.4 Conclusion	39
2 Interféromètre entièrement passif à chemin commun basé sur l'utilisa- tion d'un cristal biréfringent	41

2.1	Principe de fonctionnement de l'interféromètre à chemin commun développé	45
2.1.1	Interféromètre à chemin commun utilisant des cristaux biréfringents	45
2.1.2	Cristal biréfringent	46
2.1.3	Description du montage	47
2.1.4	Système d'analyse	50
2.1.5	Photodétecteur différentiel	51
2.1.6	Conclusion	51
2.2	Modélisation de l'interféromètre sans perturbation de l'échantillon	51
2.2.1	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre idéal	52
2.2.2	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre en présence de biais expérimentaux	57
2.3	Modélisation de l'interféromètre avec perturbation de l'échantillon	62
2.3.1	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre idéal	63
2.3.2	Lien entre les mesures interférométriques et réflectométriques	66
2.3.3	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre en présence de biais expérimentaux	68
2.4	Conclusion	72
3	Détection interférométrique d'ondes acoustiques en acoustique picoseconde	75
3.1	Caractérisation expérimentale de l'interféromètre	78
3.1.1	Minimisation du biais induit par la différence de chemin optique . .	78
3.1.2	Caractérisation expérimentale du dichroïsme de l'objectif de micro- scope	80
3.2	Mesure interférométrique sur un film mince métallique	82
3.2.1	Description de l'échantillon et du protocole expérimental	82
3.2.2	Mesure interférométrique du changement de réflectivité de l'échan- tillon de tungstène	84
3.2.3	Détermination expérimentale des domaines de mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$	87
3.2.4	Quantification de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et $\text{Im}(\Delta\xi(t))$	97
3.2.5	Conclusion	98
3.3	Mesure interférométrique d'oscillations Brillouin dans la silice	100
3.3.1	Détection de la contribution des oscillations Brillouin à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.	101
3.3.2	Détection de la contribution des oscillations Brillouin à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.	102

3.3.3	Cartographie d'oscillations Brillouin	107
3.4	Perspectives	108
3.5	Conclusion	109
	Conclusion générale	111
	Liste des symboles	117
	Bibliographie	123

Je remercie Olivier Poncelet pour m'avoir accueilli au sein du département d'acoustique physique de l'I2M, afin de réaliser ces travaux de thèse.

Je remercie messieurs Laurent Belliard de l'université Pierre et Marie Curie et Denis Mounier de l'université du Maine du temps qu'ils ont consacré à la lecture de ce manuscrit.

Je remercie également Philippe Djemia de l'université Paris 13 pour avoir accepté de faire partie du jury.

Je remercie mes encadrants, Bertrand Audoin, Yannick Guillet et Stefan Dilhaire, qui m'ont fait confiance afin de développer le dispositif interférométrique décrit dans ce manuscrit. Je les remercie également pour leur disponibilité et leur patience notamment pendant la phase de rédaction!!!

Je remercie profondément Béatrice Desoudin et Sandrine Guit qui arrivent à faire tourner cette petite machine! Un grand merci également à Cathy Blanchard qui œuvre jour après jour pour le bien être du laboratoire. Je ne pourrai malheureusement plus vous fournir aussi facilement en fromage maintenant.

Pour finir dans la partie sérieuse de ces lignes, je remercie également Michel, Mathieu, Anissa, ainsi que l'ensemble des membres du département d'acoustique physique pour leur accueil durant ces trois ans.

Je tiens à remercier les maîtres chocolatiers L***t sans qui ces travaux n'auraient sans doute pas vu le jour. En effet, il aura fallu un énorme apport de magnésium pour surmonter la fatigue.

Je tiens à remercier Marion C. dit "la rousse" , qui fût la première personne que j'ai connue sur Bordeaux et avec qui je parlais des joies de faire une thèse expérimentale : "C'est bon j'ai réussi à faire marcher la manip à 18H, tout va bien!", "Vive le scotch double face et les post it!". Maintenant qu'on n'est plus dans la même ville tu ne prendras plus de poids à cause de moi!!!

Je tiens à remercier très sincèrement Aurore, qui a été très présente durant les derniers

mois de cette thèse. Tu m'as beaucoup aidé à la rédaction mais j'ai également trouvé en toi une oreille attentive quand j'avais le moral assez bas. Je t'ai finalement appris à jouer au billard, enfin plutôt à faire moins de mauvais coups ! Je rajoute à ces remerciements Coraly qui m'a énormément apporté pour la rédaction également mais surtout pour la préparation à la soutenance.

Je remercie également Sarah et Xavier pour leur soutien, pour leur présence pour aller voir des mangas au cinéma, pour m'avoir fait découvrir l'abomination de la raclette aux légumes ! La prochaine fois que vous traversez la France d'ouest en est en moto pensez à vous arrêter prendre du fromage. J'espère que vos projets futurs se concrétiseront.

Un grand merci à Marion M. pour ses encouragements ainsi que ses petites phrases anodines qui m'ont remontés le moral de nombreuses fois (sans que tu ne t'en rendes compte à mon avis), pour ses conseils sur les livres à lire, sur les peluches et également pour les grandes discussions sur les films Disney ainsi que leurs chansons !!! Je regrette seulement de ne pas t'avoir connue plus tôt.

Merci à Alexis, qui devient le dernier doctorant de l'équipe. Merci de m'avoir expliqué ce qu'était une onde transverse ! A toi maintenant de gérer l'organisation du poulet du mercredi, ne t'en fait pas cela ne demande pas beaucoup de temps. Bon courage pour la fin de ta thèse. Merci également à Maroun, le Laurent Gerra libanais, pour nous avoir fait rire par ces imitations et pour nous avoir fait à lui tout seul une réunion de 3h30 !! En espérant que tous se passe bien pour toi !

Merci à Sandrine et Anissa pour les différents goûters passés à déguster du chocolat et des cookies, les différentes discussions plus ou moins sérieuses que l'on a pu avoir, les quelques restaurants fait ensemble pour sortir du labo !

Un grand merci à Pierric, le seul doctorant à soutenir avec moi cette année, pour son soutien, pour sa participation au poulet du mercredi et pour m'avoir fait découvrir des auteurs de BD. Je transmets également mes remerciements à son ex collègue de bureau, Samuel qui a réussi à nous supporter durant cette période.

Je remercie les doctorants et post-doc de l'équipe "collage", Aurore, Coraly, Gaëlle, Racine, Mohamed, Timothée, pour le travail acharné qu'ils fournissent à l'amélioration du collage des gommettes des œufs K****r (mais si il faut le dire que votre travail sert à ça !!) ainsi que pour l'ensemble des déjeuners dépayants passés ensemble. On aura appris

finalement beaucoup de chose concernant les chats, le choix du paquet de riz, le concombre et les chaussettes dépareillées.

Je n'oublie pas non plus les différents collègues de bureau. Manu qui se caractérise par sa discrétion. Certains jours il nous indiqué sa présence par ces différents "Tssss" lorsqu'il avait des problèmes de programmation. Feng qui m'a également supporté pendant un an, mais avec qui j'ai bien rigolé. Romain aussi qui a été là pendant les des périodes les plus difficiles pour moi, merci à toi. Puis le petit dernier, Valentin, mais je ne m'attarde pas dessus car il n'est pas intéressant (mais merci quand même pour ta ceinture) !

Je n'oublie pas non plus mes amis de Strasbourg, Mag, Thomas, Jo, Priscilla, Alex, qui se sont délocalisés dans la région bordelaise. Certains sont sans doute revenus 4 ans en arrière en m'entendant parler de la rédaction du manuscrit. Il y a aussi ceux qui sont restés en région parisienne, Lulu et Matéo, merci.

Je remercie Alexandre pour avoir fait vibrer entièrement mon bureau durant les premiers mois de ma thèse sans que le plafond me tombe dessus. C'était sympa de travailler avec ce petit bruit ambiant.

Pour tous les autres, ainsi que les personnes que j'ai pu connaître pendant ces 3 années sur Bordeaux : Julien, Mélanie, Corinne, Lycia, Agathe, Rim, Antoine, Olga, Allaoua, Jean-Michel, Benoit T, Benoit M, Abdoulaye, Karim : merci !

Il y a également un groupe de personne sans qui je ne serai pas là aujourd'hui : l'équipe QILM ainsi que les autres personnes que j'ai pu côtoyer durant mon stage au LPMC à Nice. Parmi eux, Anders, Olivier, Lutfi, Laurent, Florent, Mathieu, Claire, Djeylan, merci à vous ! Je remercie très chaleureusement Amandine et Florian qui m'ont énormément appris et aidé durant ces mois passés avec eux. Enfin, un très grand merci à Sébastien Tanzilli qui m'a énormément apporté durant cette année passée à Nice.

Enfin, il y a bien évidemment ma famille, toujours présente dans les moments difficiles : mes parents, mes sœurs, Nicolas, je vous dis un grand merci !

*Il pleure dans mon cœur
Comme il pleut sur la ville,
Quelle est cette langueur
Qui pénètre mon cœur ?*

*Ô bruit doux de la pluie
Par terre et sur les toits !
Pour un cœur qui s'ennuie
Ô le chant de la pluie !*

*Il pleure sans raison
Dans ce cœur qui s'écœure.
Quoi ! nulle trahison ?
Ce deuil est sans raison.*

*C'est bien la pire peine
De ne savoir pourquoi,
Sans amour et sans haine,
Mon cœur a tant de peine !*

Paul Verlaine

Introduction générale

Au début des années 1880, l'effet photoélastique, c'est-à-dire la génération d'ondes sonores avec de la lumière, a été observé par A. G. Bell lors de la conception du photophone [1–3]. Cet effet permet de transmettre une onde sonore en modulant et en focalisant un faisceau lumineux sur des matériaux absorbants. Cette invention fût cependant vite oubliée à cause des nombreuses contraintes techniques.

Ce n'est qu'en 1960, grâce à la création des lasers [4], que l'idée développée par Bell est reprise. En focalisant un faisceau laser, c'est-à-dire une onde électromagnétique unidirectionnelle de haute énergie, sur un matériau absorbant à la longueur d'onde du faisceau, la brusque élévation locale de température engendre une contrainte thermique dans l'échantillon. Cela crée des ondes acoustiques qui se propagent dans ce dernier. En 1963, R. M. White [5] montre la possibilité de générer des ondes acoustiques sur différents types de matériaux : métaux, semi conducteurs, liquides. À travers ses résultats, il établit la capacité de générer des ondes acoustiques ayant une fréquence de l'ordre du mégahertz et de mesurer les propriétés élastiques mais aussi thermiques des matériaux à une échelle micrométrique. Cependant, la technologie laser de l'époque, malgré ses nombreuses avancées, ne permet pas de surpasser les bandes de fréquences acoustiques accessibles en utilisant des transducteurs piézoélectriques. Dans les années 1970, les premiers lasers délivrant des impulsions subpicosecondes [6] font leur apparition. Les fréquences acoustiques, théoriquement accessibles avec de telles impulsions, peuvent atteindre le terahertz là où les transducteurs piézoélectriques sont limités au gigahertz. À partir de cette période, le procédé de génération d'ondes acoustiques par l'utilisation d'impulsions laser progresse énormément.

Durant la première moitié des années 1980, l'équipe de H. J. Maris, à l'université Brown aux États-Unis, utilise cette nouvelle technologie pour démontrer qu'il est possible de générer mais aussi de détecter des ondes acoustiques par l'utilisation d'impulsions lasers ultracourtes [7]. Deux ans plus tard, la théorie de ce processus de génération et de détection ainsi que des mesures sur des films métalliques sont présentées par la même équipe [8]. L'acoustique picoseconde est ainsi née. Pendant cette même période, les mesures interférométriques de phénomènes ultrarapides (de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes à quelques centaines de picosecondes) émergent sous l'impulsion de C. L. Tang [9] dans le domaine de l'optique non linéaire. Cette technique fût très rapidement reprise dans de nombreux domaines notamment dans la physique de la matière condensée [10–14]. Cependant, il faudra attendre l'année 1996 pour que les premiers montages interférométriques soient intégrés à des dispositifs d'acoustique picoseconde [15, 16]. L'avantage des montages interférométriques intégrés aux dispositifs d'acoustique picoseconde réside dans leur capacité à pouvoir mesurer les composantes réelle et imaginaire du changement du coefficient de réflexion.

Grâce à l'émergence des lasers femtosecondes et à la possibilité de générer des ondes acoustiques très hautes fréquences, les domaines d'utilisation des techniques d'acoustique picoseconde se sont multipliés, notamment dans le contrôle non destructif pour les domaines de la microélectronique et de la nanotechnologie [17]. En effet, l'acoustique picoseconde est particulièrement adaptée car, d'une part cette technique est sans contact et d'autre part, ces dispositifs offrent la possibilité de changer rapidement la position de la zone à analyser. Aujourd'hui, cette méthode est également utilisée pour caractériser des nanoobjets uniques [18–27] des ensembles de nanoparticules [28–33], des fibres de carbone micrométriques [34], l'atténuation des phonons dans des polymères [35], dans des quasicristaux [36] ou dans le mercure [37] ou la mesure des propriétés mécaniques d'une cellule biologique unique [38–42].

Les ultrasons peuvent pénétrer à l'intérieur des milieux biologiques sans les endommager. Il est alors possible d'imager les structures internes de ces milieux, la résolution de l'image augmentant avec la fréquence des ultrasons utilisés. Plus la fréquence des ondes acoustiques est grande plus elles sont sensibles aux variations à petites échelles. L'acoustique picoseconde permet de générer des ultrasons de plusieurs dizaines de gigahertz de

fréquence, permettant ainsi une caractérisation des milieux biologiques à une échelle sub-micrométrique.

En 2008, la première application biologique de l'acoustique picoseconde est réalisée à Bordeaux [38]. Depuis, un des axes de recherche de l'équipe Ultrasons Laser concerne l'étude et la caractérisation de milieux biologiques. L'objectif est de réaliser une imagerie acoustique d'une cellule biologique à l'échelle nanométrique. Pour cela il est nécessaire d'une part de pouvoir générer et détecter des ondes acoustiques gigahertz, et d'autre part d'avoir accès à un montage d'acoustique picoseconde permettant de très nombreuses acquisitions en un temps court afin de pouvoir réaliser des cartographies. Cela a été mis en place durant la thèse de A. Abbas [43], période pendant laquelle un banc de mesure pompe-sonde d'acoustique picoseconde hétérodyne (ou asynchrone) [44–47] a été entièrement développé et caractérisé. Il a ainsi été montré que ce dispositif est capable de réaliser très rapidement des images de la propagation d'ondes de surface ou de la réponse acoustique de particules d'or submicroniques individuelles.

L'objectif de cette thèse est de modéliser, d'intégrer et de réaliser la caractérisation expérimentale d'un montage interférométrique à chemin commun au montage d'acoustique picoseconde existant afin de mesurer des vitesses d'interface induites par la propagation d'ondes acoustiques. Pour cela nous avons besoin de décrire la génération et la détection d'ondes acoustiques par l'utilisation d'impulsions lasers dans une expérience d'acoustique picoseconde en réflexion. Nous effectuerons ensuite la détection d'ondes acoustiques sur différents échantillons afin d'obtenir des signaux de référence nous permettant par la suite d'analyser les mesures qui seront réalisées en interférométrie. Un état de l'art sur les différentes techniques existantes réalisant la détection de déplacement d'interface sera présenté afin de pouvoir comparer ces méthodes avec l'interféromètre développé durant cette thèse. Suite à cela, nous décrirons le principe puis la modélisation de l'interféromètre à chemin commun utilisé. Puis, une caractérisation expérimentale sera réalisée. Nous présenterons alors des mesures interférométriques effectuées sur les échantillons utilisés précédemment qui ont permis d'acquérir des signaux de référence. Nous pourrons alors comparer les résultats pour justifier le fonctionnement du montage.

Le manuscrit s'organise autour de trois chapitres.

Le premier chapitre commencera par exposer les principes de génération et de détection

des ondes acoustiques dans une expérience d'acoustique picoseconde. Nous expliquerons le fonctionnement du montage d'acoustique picoseconde utilisé pour la détection d'ondes acoustiques en réflexion. Ensuite, nous présenterons des mesures en réflectométrie permettant de détecter des ondes acoustiques soit dans un milieu fortement absorbant soit dans un milieu transparent aux longueurs d'ondes considérées. Ces mesures serviront lors de la caractérisation de l'interféromètre. Enfin, nous détaillerons les différentes techniques actuellement utilisées en acoustique picoseconde pour réaliser une détection dépendant du déplacement d'une interface.

Dans le deuxième chapitre nous expliquerons le principe de fonctionnement de l'interféromètre que nous souhaitons utiliser. Puis nous développerons une modélisation de ce dernier. Dans un premier temps, nous détaillerons le calcul de l'expression de l'intensité en sortie de l'interféromètre en considérant un échantillon non perturbé. Dans un second temps, nous exprimerons la variation de l'intensité induite par une perturbation de l'échantillon par une impulsion lumineuse. De plus, dans ces deux cas, nous expliciterons l'influence des biais expérimentaux sur les différentes expressions de l'intensité. Nous montrerons que cet interféromètre permet de mesurer indépendamment la dérivée temporelle de l'amplitude ou la dérivée temporelle de la phase du changement de réflectivité en ajustant l'orientation d'un polariseur et d'une lame quart-d'onde.

Enfin, dans le troisième chapitre, nous réaliserons une caractérisation expérimentale de l'interféromètre. Tout d'abord, nous quantifierons les biais expérimentaux présentés lors de la modélisation de l'interféromètre. Ensuite, nous illustrerons les mesures interférométriques à travers des expériences menées sur un échantillon fortement absorbant puis sur un échantillon transparent. Nous comparerons ces mesures à celles présentées lors du premier chapitre afin de confirmer le bon fonctionnement de l'interféromètre. Pour finir, nous décrirons les perspectives ouvertes par l'utilisation de l'interféromètre développé.

Interférométrie en acoustique picoseconde

Sommaire

1.1 Principe de l'acoustique picoseconde	9
1.1.1 Génération des impulsions acoustiques	9
1.1.2 Détection des impulsions acoustiques	14
1.2 Génération et détection d'ondes acoustiques avec un dispositif pompe-sonde hétérodyne	20
1.2.1 Principe de l'échantillonnage homodyne	21
1.2.2 Principe du dispositif pompe-sonde hétérodyne	22
1.2.3 Acquisition de signaux de référence dans un milieu fortement absorbant	25
1.2.4 Acquisition de signaux de référence dans un milieu faiblement absorbant	29
1.3 Apport de l'interférométrie en acoustique picoseconde	31
1.3.1 Détection des déplacements de surface en réflectométrie	32
1.3.2 Interféromètres de Mach-Zehnder et de Michelson	36
1.3.3 Interféromètre de Sagnac	38
1.4 Conclusion	39

C. Bukowski

*The problem with the world is that the intelligent people are full of doubts
while the stupid ones are full of confidence.*

Dans cette partie nous allons d'abord décrire les mécanismes permettant la détection d'ondes en acoustique picoseconde en utilisant un montage classique de réflectométrie. Par la suite, nous utiliserons cette description pour justifier le fonctionnement du montage interférométrique développé. Nous verrons qu'une impulsion lumineuse focalisée sur un échantillon génère une onde acoustique qui se propage dans le milieu. Une deuxième impulsion permet alors de détecter les changements de réflectivité transitoire de l'échantillon induits par la propagation de l'onde acoustique. Ce changement de réflectivité transitoire dépend de la déformation induite par l'absorption d'une impulsion laser ainsi que du déplacement de surface créé par l'onde acoustique se propageant dans le milieu. Nous présenterons ensuite le banc de mesure d'acoustique picoseconde utilisé dans ce travail de thèse et qui repose sur l'échantillonnage optique hétérodyne, appelé aussi échantillonnage optique asynchrone (ASynchronous OPTical Sampling ou ASOPS en anglais). Nous exposerons les résultats issus de mesures effectuées sur un échantillon présentant soit une forte soit une faible absorption optique. Un montage classique de réflectométrie permet de mesurer un signal qui dépend de la déformation. Afin de détecter les déplacements de surfaces induits par l'onde acoustique à la surface du matériau, des dispositifs interférométriques, en outre, peuvent être utilisés. Nous présenterons alors un état de l'art de ces

différentes techniques utilisées jusqu'à présent en acoustique picoseconde.

1.1 Principe de l'acoustique picoseconde

1.1.1 Génération des impulsions acoustiques

La génération d'une perturbation acoustique est réalisée par l'absorption d'une impulsion lumineuse par un échantillon, par exemple un film absorbant (cf. figure 1.1). Cette absorption est traduite par une élévation soudaine de la température de la zone éclairée. Cette élévation de température provoque une dilatation rapide de l'échantillon, couplée à des contraintes thermomécaniques, et qui a pour effet de générer des ondes élastiques.

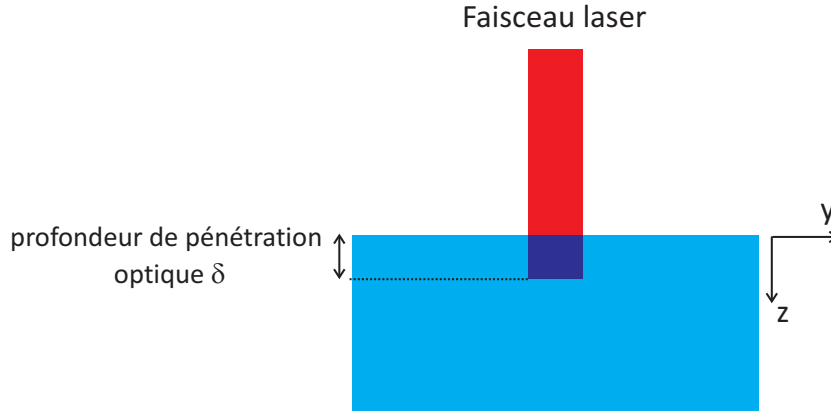


FIGURE 1.1: Configuration géométrique de la génération d'une perturbation acoustique par absorption d'une impulsion lumineuse.

L'énergie $W(z, t)$ absorbée par unité de volume à la profondeur z dans l'échantillon s'écrit [8] :

$$W(z, t) = \frac{(1 - R)Q}{\delta S} e^{-z/\delta} H(t), \quad (1.1)$$

avec S la surface éclairée par l'impulsion incidente, R le coefficient de réflexion optique à la surface du matériau, δ la profondeur de pénétration optique, Q l'énergie de l'impulsion optique et $H(t)$ la fonction d'Heaviside.

Ce dépôt d'énergie induit une élévation de température dans le film absorbant. À l'échelle des temps caractéristiques associés aux ondes acoustiques considérées dans la suite du manuscrit (> 10 ps), l'élévation de température peut être considérée comme instantanée. L'apport d'énergie $W(z, t)$ induit une variation de la température :

$$\Delta T(z, t) = \frac{W(z, t)}{C_v}, \quad (1.2)$$

avec C_v la capacité calorifique du matériau. Dans un second temps, cette élévation de température crée une contrainte thermique dans le volume du matériau et entraîne une déformation. Cette contrainte thermique est définie par :

$$\sigma_{ij}^{\text{th}}(z, t) = - \sum_{kl} C_{ijkl} \beta_{kl} \Delta T(z, t), \quad (1.3)$$

où β_{kl} représente les composantes du tenseur de dilatation et C_{ijkl} les composantes du tenseur d'élasticité. Dans la configuration étudiée, la profondeur de pénétration optique δ et l'épaisseur des matériaux servant de transducteur sont faibles comparées au diamètre de la surface éclairée par l'impulsion incidente. En effet, la dimension de la tâche focale d'une impulsion est limitée par la diffraction optique, ce qui dans notre cas donne une tâche focale de l'ordre d'un micromètre de diamètre. Ainsi, grâce à ces hypothèses, nous pouvons nous ramener à un problème à une dimension (selon z) [8]. Afin de simplifier les écritures nous omettrons, par la suite, les indices spécifiant cette direction. La contrainte thermique s'écrit alors [8, 48] :

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{th}}(z, t) &= -\beta \Delta T (C_{11} + 2C_{12}) \\ &= -\frac{3\beta B(1-R)Q}{\delta C_v S} e^{-z/\delta} H(t), \end{aligned} \quad (1.4)$$

avec β le coefficient de dilatation thermique et $B = \frac{(C_{11}+2C_{12})}{3}$ le module de compressibilité (la notation contractée a été employée pour les coefficients du tenseur d'élasticité).

Ce champ de contrainte thermique produit une déformation élastique qui se propage dans l'échantillon. Cette déformation $\eta(z, t)$ est reliée à la contrainte mécanique par la loi de Hooke :

$$\sigma_{\text{m}}(z, t) = \varrho v^2 \eta(z, t), \quad (1.5)$$

avec ϱ la masse volumique et v la vitesse suivant l'axe z de l'onde acoustique longitudinale

pour le matériau considéré. La contrainte totale est la somme des contraintes mécanique et thermique définies respectivement par σ_m et σ_{th} :

$$\begin{aligned}\sigma(z, t) &= \sigma_m(z, t) + \sigma_{th}(z, t) \\ &= \varrho v^2 \eta(z, t) + \sigma_{th}(z, t).\end{aligned}\tag{1.6}$$

De plus, la déformation est reliée au déplacement par

$$\eta(z, t) = \frac{\partial u(z, t)}{\partial z},\tag{1.7}$$

avec $u(z, t)$ le déplacement suivant la direction z . Ainsi, avec les résultats des équations 1.4 à 1.7, la contrainte totale devient :

$$\sigma(z, t) = \varrho v^2 \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} - \varrho v^2 \eta_0 e^{-z/\delta} H(t),\tag{1.8}$$

avec η_0 le paramètre sans dimension qui détermine l'amplitude de la déformation induite par l'impulsion laser,

$$\eta_0 = \frac{3\beta B(1-R)Q}{\delta \varrho v^2 C_v S}.\tag{1.9}$$

La relation fondamentale de la dynamique permet de relier la contrainte $\sigma(z, t)$ et le déplacement $u(z, t)$ par :

$$\varrho \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma(z, t)}{\partial z}.\tag{1.10}$$

L'équation de propagation du déplacement $u(z, t)$ s'écrit donc,

$$\frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial z^2} - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = -\frac{\eta_0}{\delta} e^{-z/\delta} H(t).\tag{1.11}$$

Cette équation de propagation peut se résoudre par l'utilisation d'une transformation de Fourier temporelle. Nous obtenons ainsi une expression de la déformation dans le domaine de Fourier de la forme [48] :

$$\eta(z, \omega) = \eta_0 \left(\frac{\left(\frac{\omega}{v}\right)^2}{\left(\frac{\omega}{v}\right)^2 + \left(\frac{1}{\delta}\right)^2} e^{-i\frac{\omega}{v}z} + \frac{\left(\frac{1}{\delta}\right)^2}{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 + \left(\frac{1}{\delta}\right)^2} e^{-z/\delta} \right) H(\omega), \quad (1.12)$$

avec $H(\omega)$ la transformée de Fourier de la fonction d'Heaviside. L'expression de la déformation temporelle $\eta(z, t)$ s'obtient par calcul de la transformée de Fourier inverse,

$$\eta(z, t) = \eta_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\left(\frac{\omega}{v}\right)^2}{\left(\frac{\omega}{v}\right)^2 + \left(\frac{1}{\delta}\right)^2} e^{-i\frac{\omega}{v}z} + \frac{\left(\frac{1}{\delta}\right)^2}{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 + \left(\frac{1}{\delta}\right)^2} e^{-z/\delta} \right) H(\omega) e^{i\omega t} d\omega. \quad (1.13)$$

Après intégration la déformation prend la forme [48] :

$$\eta(z, t) = \frac{\eta_0}{2} \left((2 - e^{-vt/\delta}) e^{-z/\delta} - \text{sgn}(z - vt) e^{-|z - vt|/\delta} \right), \quad (1.14)$$

avec sgn la fonction signe. Le second terme de cette équation nous permet de voir l'influence de la pénétration optique sur l'étalement spatial de la déformation. Nous remarquons que celui-ci est égal à deux fois la longueur de pénétration optique. La figure 1.2 montre le profil de la déformation en fonction de la profondeur à trois instants différents [8]. Nous observons que la déformation a une forme bipolaire. De plus, sur les trois courbes représentées, nous retrouvons bien que l'étalement spatial de cette déformation est le double de la longueur de pénétration optique [8].

Quand $t \rightarrow 0$, le profil de déformation est nul ; en effet, l'échauffement venant de se produire, la variation de contrainte interne n'a pas encore impliqué une déformation du milieu. Lorsque $vt/\delta \gg 1$, seul le premier terme de contrainte statique induit par l'élévation de température subsiste à proximité de l'interface et persiste dans le temps puisque la diffusion thermique est négligée dans ce modèle. Le second terme, dont les arguments en $z - vt$ indiquent un phénomène propagatif, correspond à l'impulsion acoustique qui se propage dans le milieu. Si l'on suppose maintenant que le film est déposé sur un substrat, l'impulsion acoustique se réfléchit à l'interface couche métallique-substrat avec un coefficient de réflexion acoustique $r_{ac} = \frac{Z_S - Z_M}{Z_S + Z_M}$, où Z_S et Z_M sont les impédances acoustiques respectivement du substrat et de la couche absorbante. Après réflexion sur l'interface, la déformation acoustique transitoire revient vers la surface libre pour produire un écho, s'y réfléchit avec un coefficient de réflexion égal à -1 puis se propage de nouveau dans la

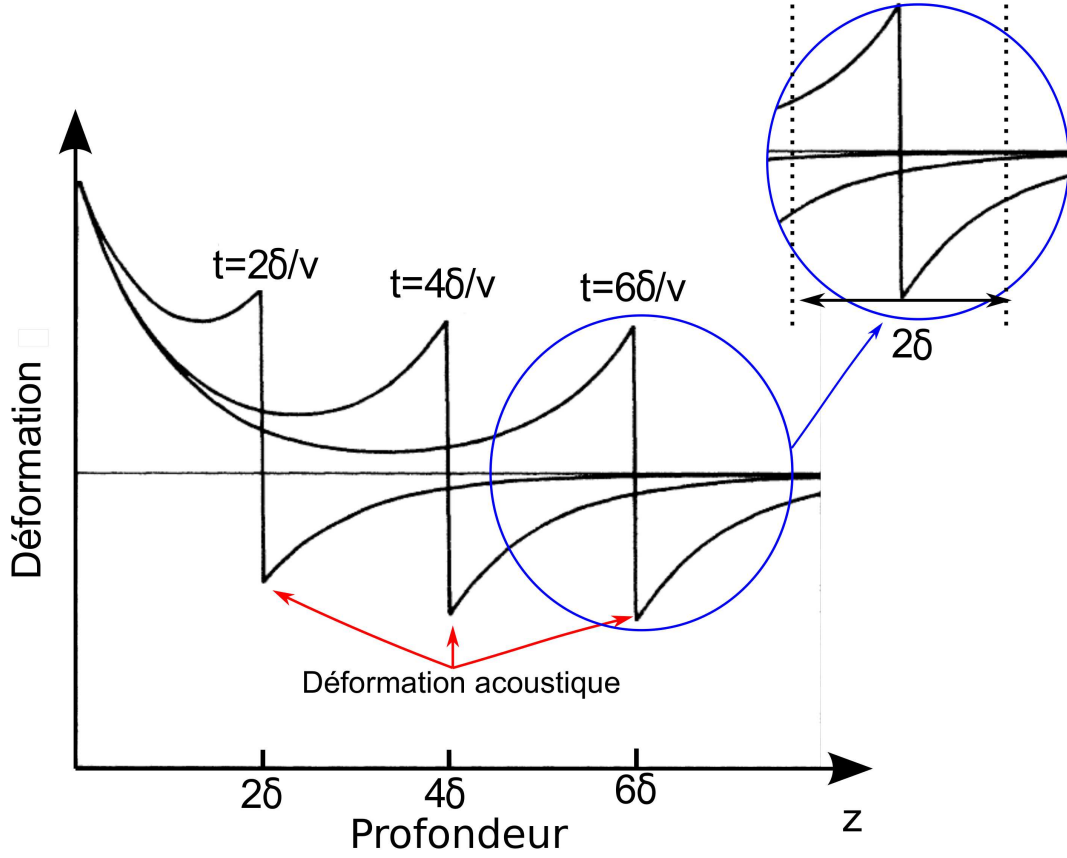


FIGURE 1.2: Profil spatial de la déformation en fonction de la profondeur pour différents temps. Cette déformation possède une forme dipolaire. En insert : l'étalement spatial de l'onde acoustique générée dépend de la profondeur de pénétration optique δ de l'impulsion pompe (d'après [8]).

couche opaque. Ainsi si l'on décale l'origine temporelle pour que $t = 0$ corresponde au temps d'arrivée du centre de l'écho acoustique sur la surface, la déformation devient :

$$\eta(z, t) = \frac{\eta_0 r_{ac}}{2} \left(\text{sgn}(z - vt) e^{-|z - vt|/\delta} + \text{sgn}(z + vt) e^{-|z + vt|/\delta} \right). \quad (1.15)$$

La déformation étant égale à la dérivée spatiale du déplacement, le déplacement à la surface de l'échantillon s'écrit :

$$u(z = 0, t) = \int_0^\infty \eta(z, t) dz = \eta_0 r_{ac} \delta e^{-v|t|/\delta}. \quad (1.16)$$

Pour obtenir ces expressions, l'impulsion pompe est supposée de durée nulle. Dans les expériences présentées dans la suite de ce manuscrit, l'impulsion pompe a une durée de 400 fs. Pendant ce laps de temps, les déformations acoustiques se propagent sur une dis-

tance $d = vt$ avec v la vitesse de l'onde acoustique. Pour les métaux, la vitesse acoustique est de l'ordre de 5 nm/ps ce qui donne un parcours de 2 nm. Cette distance est petite devant les profondeurs de pénétration optique des métaux qui sont de quelques dizaines de nanomètres [49]. L'effet de la durée des impulsions optiques sera donc négligé.

1.1.2 Détection des impulsions acoustiques

Nous avons jusqu'à présent synthétisé les mécanismes gouvernant la génération d'une déformation suite à l'absorption d'une impulsion lumineuse. Cette déformation modifie localement la réponse optique de l'échantillon et, en particulier, son coefficient de réflexion.

1.1.2.1 Expression du coefficient de réflectivité dans le cas de faibles perturbations

Pour mesurer cette variation du coefficient de réflectivité, une autre impulsion laser est utilisée. Elle est appelée impulsion sonde. Suite à la réflexion sur l'échantillon, le champ électrique de la sonde s'écrit $\mathbf{E}_r = r\mathbf{E}_{in}$, avec $\mathbf{E}_{in}$ le champ électrique incident. Le coefficient de réflexion r peut se mettre sous la forme suivante :

$$r(t) = r_0 + \Delta r(t), \quad (1.17)$$

avec r_0 le coefficient de réflexion sans perturbation et $\Delta r(t)$ la variation du coefficient de réflexion. En faisant apparaître la variation ρ de l'amplitude et la variation φ de la phase du changement du coefficient de réflectivité, $r(t)$ s'exprime par :

$$r(t) = r_0(1 + \rho(t))e^{i\varphi(t)}. \quad (1.18)$$

Dans les expériences d'acoustique picoseconde, le changement relatif de réflectivité induit est faible ($10^{-3} - 10^{-6}$) [8]. Ainsi, en considérant de faibles variations, la réflectivité de l'échantillon perturbé devient en effectuant un développement limité au premier ordre en $\rho(t)$ et $\varphi(t)$:

$$r(t) = r_0(1 + \rho(t) + i\varphi(t)). \quad (1.19)$$

Le changement relatif de réflectivité s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta r(t)}{r_0} &= \frac{r(t) - r_0}{r_0} \\ &= \rho(t) + i\varphi(t). \end{aligned} \quad (1.20)$$

La variation totale de réflectivité relative induite par un champ acoustique a pour expression [15, 50, 51] :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = -2ik_0 u(0, t) + ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1 - n^2} \int_0^\infty e^{2ik_0 n z} \eta(z, t) dz. \quad (1.21)$$

Nous allons à présent expliquer l'origine de chacun des termes de l'expression précédente.

1.1.2.2 Contribution du déplacement d'une interface à la réflectivité transitoire

On suppose que le faisceau sonde est en incidence normale sur la surface de l'échantillon. Lorsque la surface de l'échantillon n'est pas perturbée, le champ électrique incident $\mathbf{E}_{\text{in}}$ est partiellement réfléchi par la surface de l'échantillon. Nous notons $\mathbf{E}_{r_0}$ le champ électrique réfléchi tel que :

$$\mathbf{E}_{r_0}(t) = r_0 \mathbf{E}_{\text{in}}(t). \quad (1.22)$$

Supposons maintenant que la surface de l'échantillon se déplace d'une quantité $u(0, t)$ suivant sa direction normale, le champ électrique réfléchi $\mathbf{E}_r$ est déphasé par rapport au champ $\mathbf{E}_{r_0}$. Cette situation est représentée sur la figure 1.3.

Le déphasage φ entre ces deux champs est relié à la différence de marche $2u(0, t)$ entre les deux ondes par :

$$\varphi = -2k_0 u(0, t), \quad (1.23)$$

avec k_0 le vecteur d'onde du champ électrique dans le vide. Il est alors possible d'exprimer le champ $\mathbf{E}_r$ en fonction du champ incident $\mathbf{E}_{in}$:

$$\mathbf{E}_r = e^{-2ik_0 u(0, t)} r_0 \mathbf{E}_{in}. \quad (1.24)$$

La réflectivité $r(t)$ de la surface de l'échantillon excité est donc égale à :

$$r(t) = r_0 e^{-2ik_0 u(0, t)}. \quad (1.25)$$

Le déplacement de l'interface $u(0, t)$ est faible par rapport à la longueur d'onde du champ électrique, ainsi un développement limité au premier ordre par rapport à $k_0 u(0, t)$ peut être réalisé.

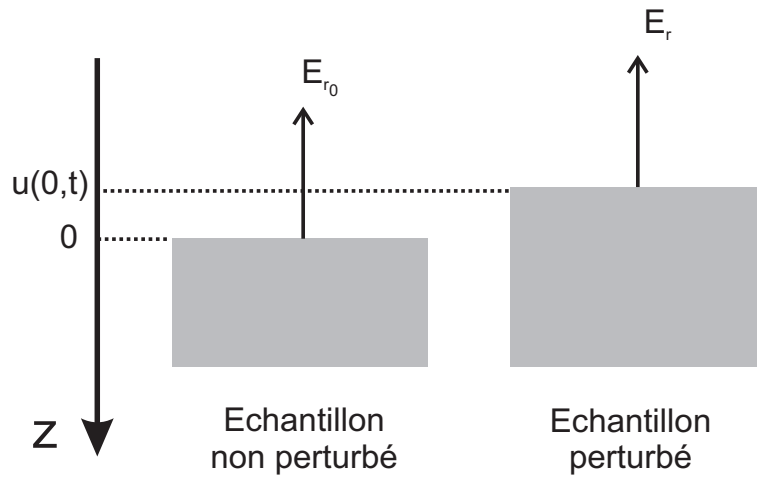


FIGURE 1.3: Réflexion du champ électrique par un échantillon non perturbé et par un échantillon perturbé dont la surface est en mouvement. Les champs électriques $\mathbf{E}_{r_0}$ et $\mathbf{E}_r$ sont déphasés d'une quantité $\varphi = -2k_0 u(0, t)$.

Le changement relatif de réflectivité suite au déplacement d'une interface est alors exprimé par :

$$\begin{aligned}\frac{\Delta r(t)}{r_0} &= \frac{r_0(1 - 2ik_0 u(0, t)) - r_0}{r_0} \\ &= -2ik_0 u(0, t).\end{aligned}\tag{1.26}$$

1.1.2.3 Contribution du couplage photoélastique à la réflectivité transitoire

Le second terme de l'équation 1.21 décrit la contribution du couplage photoélastique à la variation de réflectivité d'un échantillon parcouru par une perturbation acoustique. L'importance du couplage photoélastique dépend du matériau et est donnée par le coefficient photoélastique $\partial n / \partial \eta$, où n est l'indice de réfraction du milieu et η la déformation.

En l'absence d'ondes acoustiques, les amplitudes des champs électriques réfléchis et transmis ne dépendent que de l'indice n du matériau. Les coefficients de réflexion et de transmission d'une onde lumineuse traversant l'interface air/matériau sont donnés par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}r_1 &= \frac{1 - n}{1 + n} \\ t_1 &= \frac{2}{1 + n}.\end{aligned}\tag{1.27}$$

De chaque côté de l'interface, les champs électriques dans les deux milieux sont reliés par la relation matricielle suivante [51, 52] :

$$\begin{pmatrix} a_{\text{air}} \\ b_{\text{air}} \end{pmatrix} = \frac{1}{t_1} \begin{pmatrix} 1 & r_1 \\ r_1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{\text{mat}} \\ b_{\text{mat}} \end{pmatrix},\tag{1.28}$$

avec a_{air} l'amplitude du champ incident à l'interface air/matériau, b_{air} l'amplitude du champ traversant l'interface matériau/air, a_{mat} l'amplitude du champ transmis à l'interface air/matériau, b_{mat} l'amplitude du champ incident à l'interface matériau/air. Ceci est résumé sur la figure 1.4.

Lorsque l'onde acoustique se propage au sein d'un milieu, celui-ci est perturbé lo-

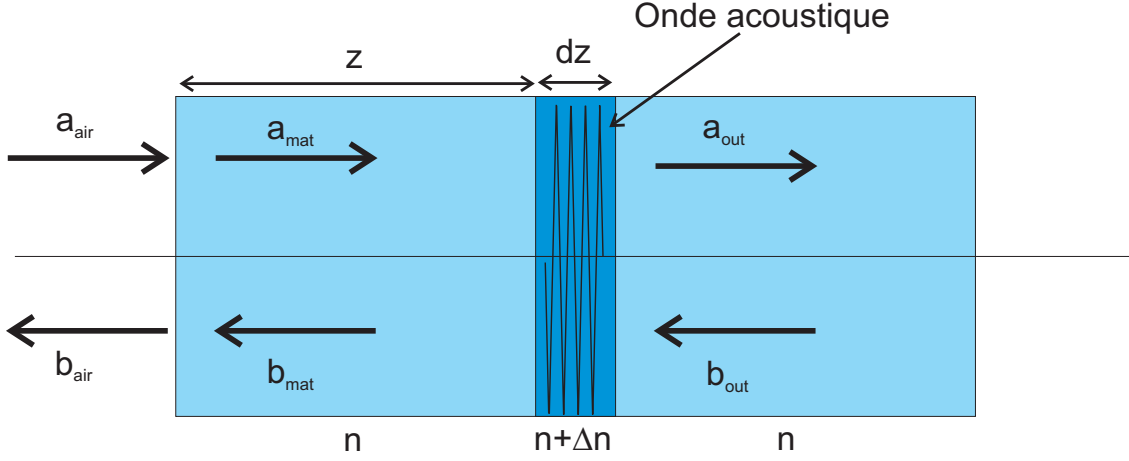


FIGURE 1.4: Interaction d'un champ électrique avec une perturbation acoustique située en z . L'onde électrique se propage dans un milieu d'indice variable.

calement. Nous pouvons schématiser cela comme une perturbation locale de l'indice du milieu à une profondeur z sur une épaisseur dz . Ainsi le champ électrique va successivement traverser un milieu d'épaisseur z non perturbé d'indice n , rencontrer l'interface entre la couche non perturbée et perturbée, traverser une couche d'épaisseur dz et d'indice $n + \Delta n$ perturbée par l'onde acoustique, une seconde interface entre un milieu perturbé et non perturbé et enfin se propager dans une couche non perturbée d'indice n . Le champ électrique en profondeur est relié au champ à la surface de l'échantillon par l'expression :

$$\begin{pmatrix} a_{\text{air}} \\ b_{\text{air}} \end{pmatrix} = \frac{1}{t_1 t_2 t_3} \begin{pmatrix} 1 & r_1 \\ r_1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-ik_0 n z} & 0 \\ 0 & e^{ik_0 n z} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & r_2 \\ r_2 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{\text{out}} \\ b_{\text{out}} \end{pmatrix}, \quad (1.29)$$

avec a_{out} l'amplitude du champ transmis à l'interface perturbé/non perturbé, b_{out} l'amplitude du champ incident à l'interface non perturbé/perturbé, r_2 et t_2 les coefficients de réflexion et de transmission à l'interface non perturbé/perturbé, r_3 et t_3 les coefficients de réflexion et de transmission à l'interface perturbé/non perturbé (cf. figure 1.4). La matrice

$$\begin{pmatrix} e^{-ik_0 n z} & 0 \\ 0 & e^{ik_0 n z} \end{pmatrix} \quad (1.30)$$

modélise la propagation d'une onde acoustique au sein d'une couche d'épaisseur z et d'indice n et la matrice

$$\begin{pmatrix} e^{-ik_0(n+\Delta n)dz} & 0 \\ 0 & e^{ik_0(n+\Delta n)dz} \end{pmatrix} \quad (1.31)$$

modélise la propagation d'une onde acoustique au sein d'une couche d'épaisseur dz et d'indice $n + \Delta n$.

Le terme b_{out} est nul car le milieu est considéré comme semi-infini. Nous calculons alors le coefficient de réflectivité totale par la relation $r = \frac{b_{\text{air}}}{a_{\text{air}}}$. Ainsi, en utilisant le fait que $r_2 = -r_3$, la réflectivité totale s'écrit

$$r(z) = \frac{(r_1 e^{-ik_0 n z} - r_3 e^{ik_0 n z}) e^{-ik_0(n+\Delta n)dz} + r_3 (e^{ik_0 n z} - r_1 r_3 e^{-ik_0 n z}) e^{ik_0(n+\Delta n)dz}}{(e^{-ik_0 n z} - r_1 r_3 e^{ik_0 n z}) e^{-ik_0(n+\Delta n)dz} + r_3 (r_1 e^{ik_0 n z} - r_3 e^{-ik_0 n z}) e^{ik_0(n+\Delta n)dz}}. \quad (1.32)$$

La perturbation est supposée faible donc un développement limité au premier ordre en Δn de l'expression de $r(z)$ peut être effectué. De plus, l'étalement spatial de la déformation est faible devant l'épaisseur du matériau, ainsi un développement limité au premier ordre en dz est également réalisable. Nous obtenons ainsi, au premier ordre en Δn et dz l'expression de $r(z)$:

$$r(z, t) = r_1 + ik_0(1 - r_1^2) e^{2ik_0 n z} \Delta n(z, t) dz. \quad (1.33)$$

La contribution totale de l'effet photo-élastique au coefficient de réflexion s'obtient en intégrant la déformation sur toute la longueur du matériau, ainsi :

$$r(t) = r_1 + ik_0(1 - r_1^2) \int_0^\infty e^{2ik_0 n z} \Delta n(z, t) dz. \quad (1.34)$$

Dans cette expression, nous remarquons que finalement r_1 représente le coefficient de réflexion de l'interface air/matériau sans la présence de la déformation. En effet, la contribution au changement de réflectivité est prise en compte dans le second terme de l'équation précédente. Ainsi nous avons l'égalité $r_1 = r_0$. De plus, la variation d'indice Δn est supposée ici dépendre uniquement du couplage photoélastique. La variation locale d'indice

peut alors s'écrire en fonction du coefficient photoélastique selon la relation :

$$\Delta n = \frac{\partial n}{\partial \eta} \eta(z, t). \quad (1.35)$$

Ainsi la contribution totale du couplage photoélastique à la variation relative de la réflectivité est donnée par l'expression [8, 15, 50, 51] :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1 - n^2} \int_0^\infty e^{2ik_0 n z} \eta(z, t) dz. \quad (1.36)$$

Nous allons maintenant présenter le dispositif d'acoustique picoseconde utilisé dans la suite de ce manuscrit puis illustrer au travers de mesures expérimentales la détection par couplage photoélastique d'ondes acoustiques. Nous regarderons dans un premier temps la réponse d'un échantillon pour lequel l'impulsion détectant l'onde acoustique présente une faible pénétration optique comparée à la longueur d'onde de l'onde acoustique. Puis nous illustrerons le cas opposé, à savoir lorsque le matériau au sein duquel se propage l'onde acoustique présente une faible absorption optique pour l'impulsion réalisant la détection. Ces deux mesures permettront au chapitre 3 de valider expérimentalement le fonctionnement de l'interféromètre développé au cours de cette thèse.

1.2 Génération et détection d'ondes acoustiques avec un dispositif pompe-sonde hétérodyne

Le principe des montages pompe-sonde d'acoustique picoseconde est d'obtenir une mesure résolue en temps de la variation du coefficient de réflectivité d'un échantillon perturbé. Cette mesure doit être réalisée avec une résolution temporelle de quelques picosecondes sur une durée de plusieurs nanosecondes. La réalisation de cette mesure nécessite l'emploi de deux impulsions. Une impulsion excite l'échantillon et l'autre détecte la perturbation induite par la première. Pour reconstituer la dynamique transitoire il faut introduire un retard temporel variable entre l'impulsion excitatrice et l'impulsion venant

sonder l'échantillon. Pour cela il existe différentes méthodes. La première historiquement utilisée, qui sera décrite brièvement par la suite, est appelée méthode d'échantillonnage homodyne et est basée sur l'utilisation d'une ligne à retard mécanique [8]. Nous avons opté pour une autre technique qui s'est largement répandue depuis une dizaine d'année. Cette technique est basée sur le principe de l'échantillonnage optique hétérodyne, appelé aussi échantillonnage optique asynchrone [45] (ASynchronous OPTical Sampling ou ASOPS en anglais). Nous expliquerons dans un premier temps son principe en détails. Ensuite nous présenterons des mesures de variation du coefficient de réflectivité effectuées avec un banc pompe-sonde hétérodyne sur un film métallique puis sur une couche de silice. Ces mesures serviront dans le dernier chapitre à analyser les résultats obtenus avec l'interféromètre développé.

1.2.1 Principe de l'échantillonnage homodyne

L'échantillonnage homodyne consiste à séparer dans un premier temps les trajets de l'impulsion pompe et de l'impulsion sonde. La longueur du trajet de l'impulsion sonde est contrôlée grâce à une ligne à retard constituée d'un jeu de miroirs et d'une platine de translation mécanique. La distance parcourue par l'impulsion sonde avant d'être recombinaisonnée avec l'impulsion pompe est donc ajustable. Ainsi, le décalage temporel entre les impulsions pompe et sonde est variable et permet une reconstruction complète de la réponse transitoire de l'échantillon. Le mouvement de la platine de translation, pour contrôler le retard entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde, induit des vibrations mécaniques ce qui a pour effet de rajouter une source de bruit supplémentaire aux divers bruits de mesures. Pour effectuer une mesure il est nécessaire de moyenner plusieurs acquisitions pour avoir un signal avec un bon rapport signal-sur-bruit. L'acquisition d'une mesure peut prendre plusieurs dizaines de minutes. Or, à terme, nous souhaitons effectuer de l'imagerie résolue en temps, ce qui demande l'acquisition d'un grand nombre de mesures. L'utilisation du montage basé sur l'échantillonnage homodyne pour réaliser de l'imagerie demanderait alors plusieurs jours pour réaliser l'acquisition d'une image. C'est pourquoi nous avons opté pour l'utilisation d'un banc pompe-sonde hétérodyne. En effet, un banc d'échantillonnage hétérodyne est jusqu'à 100 fois plus rapide [53] pour obtenir un signal avec un même rapport signal-sur-bruit. Nous allons donc maintenant décrire cette

technique.

1.2.2 Principe du dispositif pompe-sonde hétérodyne

L'échantillonnage hétérodyne est une technique basée sur l'utilisation de deux lasers impulsionnels ayant des taux de répétition légèrement différents [45]. Une résolution temporelle subpicoseconde dans les expériences pompe-sonde est atteinte par un asservissement actif des taux de répétition [43, 53, 54]. Une étude préliminaire des performances d'un tel dispositif a été réalisée durant la thèse de H. Michel [53]. Par la suite, une analyse complète du banc utilisé pour réaliser les mesures présentées dans ce manuscrit a été effectuée lors de la thèse de A. Abbas [43, 47].

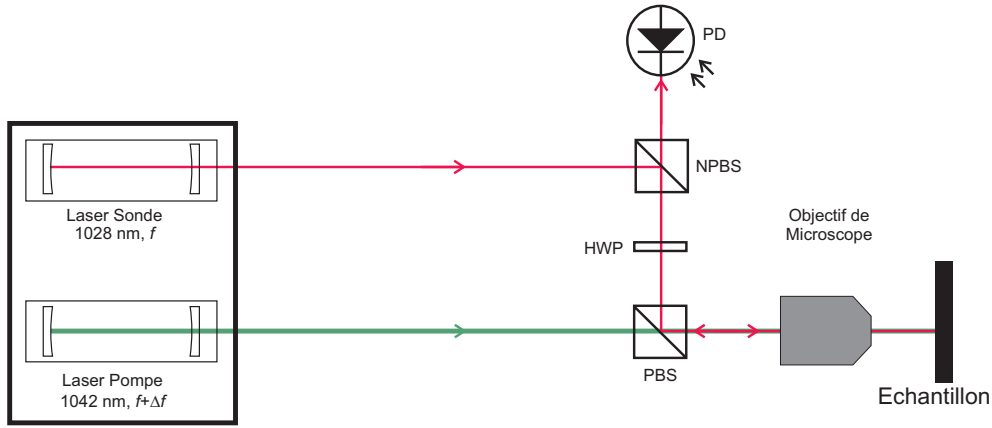


FIGURE 1.5: Schéma du dispositif pompe-sonde hétérodyne. Les faisceaux pompe et sonde sont recombinés avant d'être focalisés sur l'échantillon. Une partie de l'impulsion sonde réfléchie par l'échantillon est prélevée pour être détectée par un photodétecteur possédant un étage d'amplification.

Un banc pompe-sonde hétérodyne permet entre autre de s'affranchir des vibrations mécaniques dues à l'utilisation d'une ligne à retard. Le montage pompe-sonde hétérodyne est présenté sur la figure 1.5. Le laser sonde fournit des impulsions de durée 330 fs à la longueur d'onde $\lambda_s = 1028$ nm avec un taux de répétition de $f = 48$ MHz. Le laser pompe quant à lui délivre des impulsions de 430 fs à la longueur d'onde $\lambda_p = 1042$ nm avec un taux de répétition de $f + \Delta f$, avec $\Delta f = 500$ Hz la fréquence de battement entre les deux lasers. Ce battement de fréquence est stabilisé par une boucle de rétroaction [44]. L'impulsion pompe est focalisée via un objectif de microscope sur l'échantillon. Ce dernier absorbe une partie de l'énergie de l'impulsion pompe, donnant naissance à des ondes acoustiques.

La combinaison d'une lame demi-onde (HWP) et d'un cube polarisant (PBS) permet de superposer les trajets pompe et sonde. Le faisceau sonde est focalisé par le même objectif de microscope sur l'échantillon. Après réflexion sur ce dernier, le faisceau sonde traverse une nouvelle fois l'objectif. Une partie de l'impulsion réfléchie est prélevée par un cube non polarisant (NPBS) afin d'être dirigée sur un photodétecteur possédant un étage d'amplification (Thorlabs, modèle PDB450C). Le photodétecteur mesure l'intensité de l'impulsion sonde ayant vu l'échantillon perturbé.

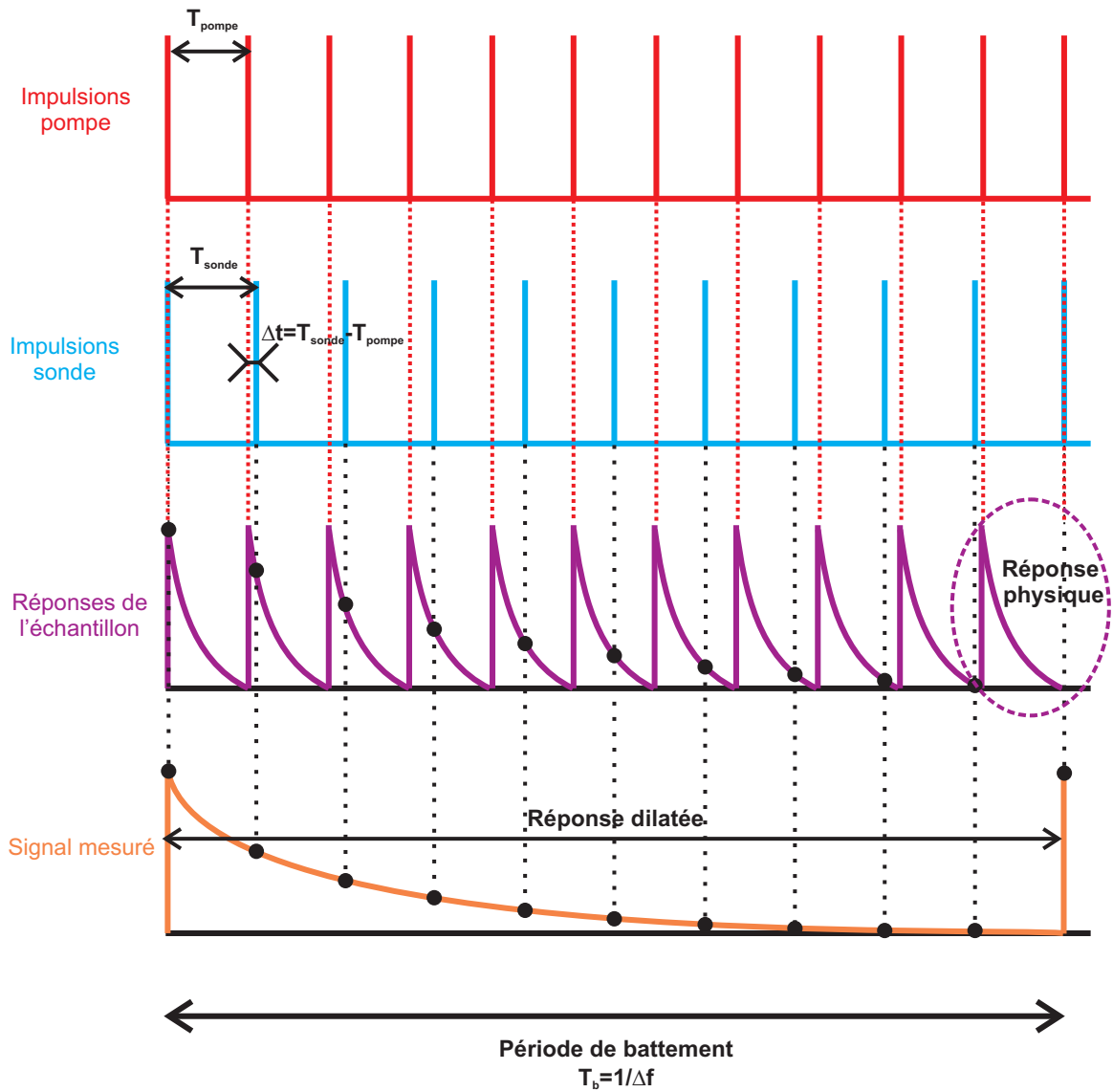


FIGURE 1.6: Principe de l'échantillonnage hétérodyne. Le décalage Δf entre les taux de répétition des deux lasers permet d'augmenter le retard pompe-sonde d'une quantité Δt à chaque excitation de l'échantillon par l'impulsion pompe. Le signal obtenu correspond à la réponse physique de l'échantillon dilatée dans le temps (d'après [43]).

Nous avons expliqué le principe général d'un banc pompe-sonde hétérodyne. Nous allons à présent montrer comment la mesure temporelle du changement de réflectivité est réalisée grâce au battement de fréquence entre les deux taux de répétition des lasers. Le principe de l'échantillonnage hétérodyne est synthétisé sur la figure 1.6. Supposons qu'à un certain instant, l'impulsion sonde arrive au même moment que l'impulsion pompe sur l'échantillon. Cet instant est appelé coïncidence. La différence de fréquence retarde de plus en plus les impulsions sonde par rapport aux impulsions pompe successives. À chaque excitation de l'échantillon par une impulsion pompe, le retard pompe-sonde est augmenté d'une quantité Δt :

$$\begin{aligned}\Delta t &= T_{\text{sonde}} - T_{\text{pompe}} \\ &= \frac{\Delta f}{f(f + \Delta f)} \\ &\approx \frac{\Delta f}{f^2},\end{aligned}\tag{1.37}$$

où T_{sonde} et T_{pompe} sont respectivement la durée entre deux impulsions successives des lasers sonde et pompe.

Ce retard pompe-sonde augmente jusqu'à ce que la sonde soit de nouveau en coïncidence avec la pompe. Le temps entre les deux coïncidences est égal à l'inverse de la fréquence de battement $T_b = 1/\Delta f$. La réponse transitoire d'un échantillon perturbé obtenue en étudiant la variation de l'intensité de l'impulsion sonde arrivant sur le photodétecteur pendant une période de battement correspond à la réponse physique de l'échantillon dilatée dans le temps. 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 :

$$\begin{aligned}\frac{T_{\text{physique}}}{T_{\text{dilaté}}} &= \frac{\Delta f}{f + \Delta f} \\ &\approx \frac{\Delta f}{f}.\end{aligned}\tag{1.38}$$

La rapidité d'acquisition d'un banc pompe-sonde hétérodyne a été exploitée pour

réaliser la cartographie des propriétés mécaniques de cellules biologiques individuelles [42]. Ces cartographies sont composées de quelques milliers de signaux moyennés. L'utilisation d'un dispositif hétérodyne permet de réaliser ce type de cartographie en quelques heures.

Nous avons illustré le principe du dispositif pompe-sonde hétérodyne utilisé. Nous allons maintenant présenter des mesures de réflectivité sur des échantillons successivement très absorbants puis transparents à l'impulsion sonde. Ces mesures serviront de référence, au chapitre 3, pour analyser le fonctionnement de l'interféromètre mis en place.

1.2.3 Acquisition de signaux de référence dans un milieu fortement absorbant

1.2.3.1 Description de l'échantillon et du protocole expérimental

Nous avons choisi d'étudier un film fortement absorbant composé d'une couche métallique submicronique de tungstène déposée sur un substrat de silicium d'environ $500\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur. Les énergies des impulsions pompe et sonde sont respectivement de 1 nJ et de 0.5 nJ . La configuration est présentée sur la figure 1.7. Les impulsions sont focalisées par un objectif de microscope $\times 20$. La mesure présentée est le résultat d'une moyenne de 200 000 mesures du changement de réflectivité transitoire de l'échantillon.

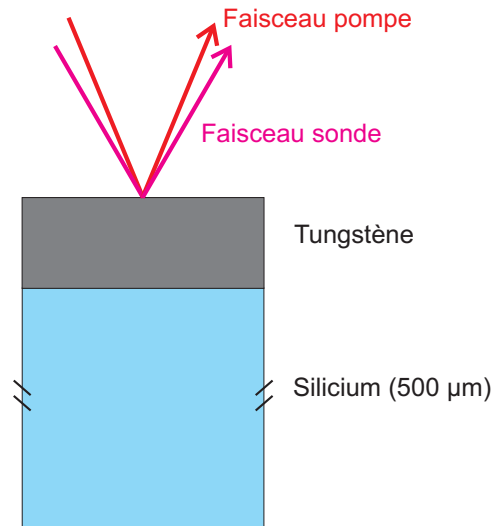


FIGURE 1.7: Représentation de l'échantillon étudié. Une couche submicronique de tungstène est déposée sur un substrat de silicium de $500\text{ }\mu\text{m}$. Le faisceau pompe est absorbé par le film de tungstène. L'impulsion sonde détecte le changement de réflectivité transitoire induit par la propagation des ondes acoustiques suite à l'absorption de l'impulsion pompe.

1.2.3.2 Analyse de la réponse de l'échantillon de tungstène

Lors de l'absorption de l'impulsion pompe par la couche de tungstène, la température de l'échantillon augmente sur une profondeur $\delta_W \approx 25$ nm [49] correspondant, en négligeant la diffusion thermique, à la longueur de pénétration optique pour le tungstène à la longueur d'onde de $\lambda_p = 1042$ nm. La largeur du faisceau pompe au niveau de l'échantillon est très supérieure à la profondeur de pénétration optique et à l'épaisseur de la couche métallique. La diffraction acoustique subie par les ondes longitudinales sera donc négligée dans la suite. Lorsque l'onde arrive à l'interface tungstène/silicium une partie de l'onde est réfléchiée par cette interface, et l'autre partie est transmise dans le substrat de silicium. L'onde réfléchiée est alors détectée par couplage photoélastique lorsqu'elle atteint à nouveau la surface libre de l'échantillon (paragraphe 1.1.2.3). À l'interface tungstène/air, l'onde acoustique se réfléchiée et se propage à nouveau dans l'échantillon.

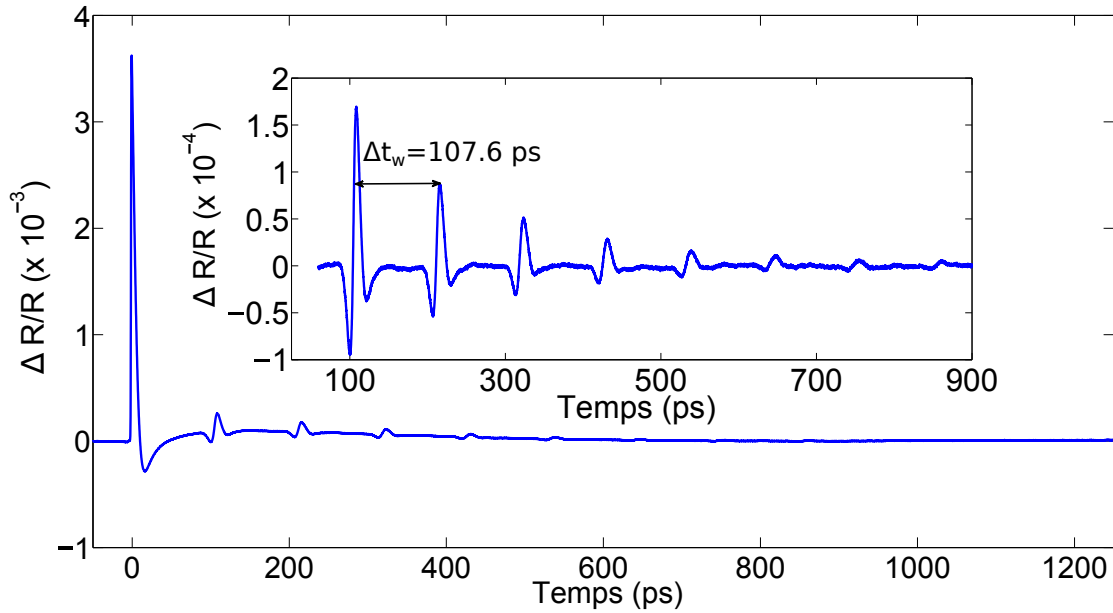


FIGURE 1.8: Réponse transitoire de l'échantillon de tungstène. Le pic de coïncidence correspond à l'augmentation de la température par l'absorption de l'impulsion pompe. La température de l'échantillon perturbé décroît de façon exponentielle afin de revenir à température ambiante. À cette lente décroissance se superposent des échos acoustiques qui sont détectés à leur retour au niveau de la surface libre de l'échantillon par couplage photoélastique. En insert, nous pouvons voir un agrandissement de la réponse acoustique. Δt_w représente l'écart temporel entre l'arrivée de deux échos successifs.

Le signal temporel de la mesure du changement de réflectivité transitoire de l'échantillon est présenté sur la figure 1.8. La présence du pic à $t = 0$ ps 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 par absorption de l'impulsion pompe. La réponse de l'échantillon est composée pour partie d'une décroissance lente qui est très faible et peu visible dans les mesures présentées. Il s'agit de la relaxation thermique de l'échantillon qui revient à la température ambiante après son excitation. L'étude de cette décroissance permettrait d'extraire les propriétés thermiques de l'échantillon [46, 55–57].

La contribution acoustique se superpose à cette décroissance thermique. La composante acoustique du signal est extraite par soustraction du fond thermique. Le résultat de cette soustraction est illustré sur l'insert de la figure 1.8. Cette contribution acoustique se compose d'une succession périodique de pics de formes quasi tripolaires. Ces pics correspondent aux différents échos acoustiques réfléchis par l'interface tungstène/silicium qui sont détectés au retour de l'onde vers la surface libre du tungstène. Cette détection, décrite au paragraphe 1.1.2.3, est sensible à la déformation se propageant dans l'échantillon. À cause de la forte absorption optique du tungstène, la déformation associée à l'onde acoustique est détectée seulement lorsque l'onde se propage proche de l'interface.

La forme des échos longitudinaux est maintenant discutée. Comme nous l'avons présenté au paragraphe 1.1.1, le signal réflectométrique est sensible à la déformation. Sur la figure 1.2 nous avons pu voir que la déformation a une forme bipolaire. Puisque la sonde pénètre dans l'épaisseur du film, elle détecte une impulsion de déformation bipolaire qui se propage vers la surface, s'y réfléchit avec un saut de phase de π , et continue sa propagation en sens inverse. La somme de ces deux contributions donne naissance, à proximité de la surface, à une forme tripolaire [58]. Le temps Δt_W qui sépare la détection de deux échos correspond au temps d'un aller-retour de l'onde acoustique dans la couche mince et est directement relié au rapport de l'épaisseur e de la couche de tungstène sur la vitesse v des ondes acoustiques longitudinales dans le tungstène. La moyenne du temps entre deux échos acoustiques successifs est $\Delta t_W = 107.6$ ps. La vitesse des ondes longitudinales dans le tungstène étant $v = 5.2$ nm/ps [49], nous en déduisons une épaisseur de la couche de tungstène $e = 278$ nm.

Nous venons d'illustrer le résultat d'une mesure de réflectométrie en utilisant un échantillon très absorbant à la longueur d'onde de l'impulsion sonde. Nous allons maintenant

présenter une mesure du changement de coefficient de réflectivité dans le cas d'un échantillon transparent au faisceau sonde. Ces résultats serviront à l'analyse du fonctionnement de l'interféromètre qui sera présenté au chapitre 3.

1.2.4 Acquisition de signaux de référence dans un milieu faiblement absorbant

1.2.4.1 Description de l'échantillon et du protocole expérimental

Nous avons choisi ici la silice comme matériau transparent. La détection d'ondes acoustiques se propageant dans ce milieu se fait sur toute l'épaisseur du matériau. La figure 1.9 présente la configuration utilisée pour illustrer la détection dans le cas d'un milieu transparent. La silice étant aussi transparente dans notre cas pour l'impulsion pompe, nous avons besoin d'un transducteur afin que l'impulsion pompe puisse être absorbée. Pour cela un film mince de 300 nm de titane est déposé sur la couche de silice. L'impulsion pompe est alors absorbée à l'interface silice/titane. Une partie des ondes acoustiques se propage dans la couche de silice. Les énergies des impulsions pompe et sonde sont respectivement de 0.8 nJ et 0.4 nJ. Les deux impulsions sont focalisées sur l'échantillon par un objectif de microscope $\times 20$. Le signal présenté résulte d'un moyennage de 50 000 mesures.

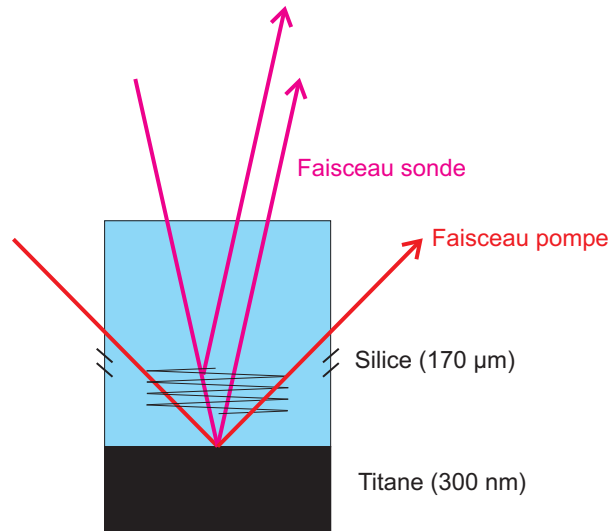


FIGURE 1.9: Représentation de l'échantillon étudié. Une couche de 300 nm de titane est déposée sur un substrat de silice de 170 μm . Le faisceau pompe est absorbé par le film de titane. Les ondes acoustiques générées se propagent dans la couche de silice. Une partie de l'impulsion sonde est réfléchiée par l'interface silice/titane et l'autre partie est rétrodiffusée par l'onde acoustique se propageant dans le matériau. Ces deux contributions interfèrent entre elles.

1.2.4.2 Analyse de la réponse de l'échantillon de silice

Le mécanisme de détection est toujours celui décrit au paragraphe 1.1.2. Dans le cas d'un milieu transparent, nous pouvons l'expliquer en considérant l'onde acoustique se propageant comme une interface optique qui se déplace à la vitesse de l'onde acoustique dans la silice. L'impulsion sonde est donc réfléchiée en partie par l'onde acoustique. D'autre part elle l'est également par l'interface silice/titane (figure 1.9).

Les variations de la réflectivité résultent donc des interférences de ces deux réflexions subies par l'impulsion sonde. Au fur et à mesure que l'onde acoustique se propage dans l'échantillon, la différence de chemin optique entre la fraction de l'impulsion sonde réfléchiée par l'onde acoustique et celle réfléchiée à l'interface silice/titane augmente [59]. Une succession d'interférences destructives et constructives est alors observée. Ainsi, la réponse temporelle du changement de réflectivité est décrite par des oscillations. Elles sont appelées oscillations Brillouin [59].

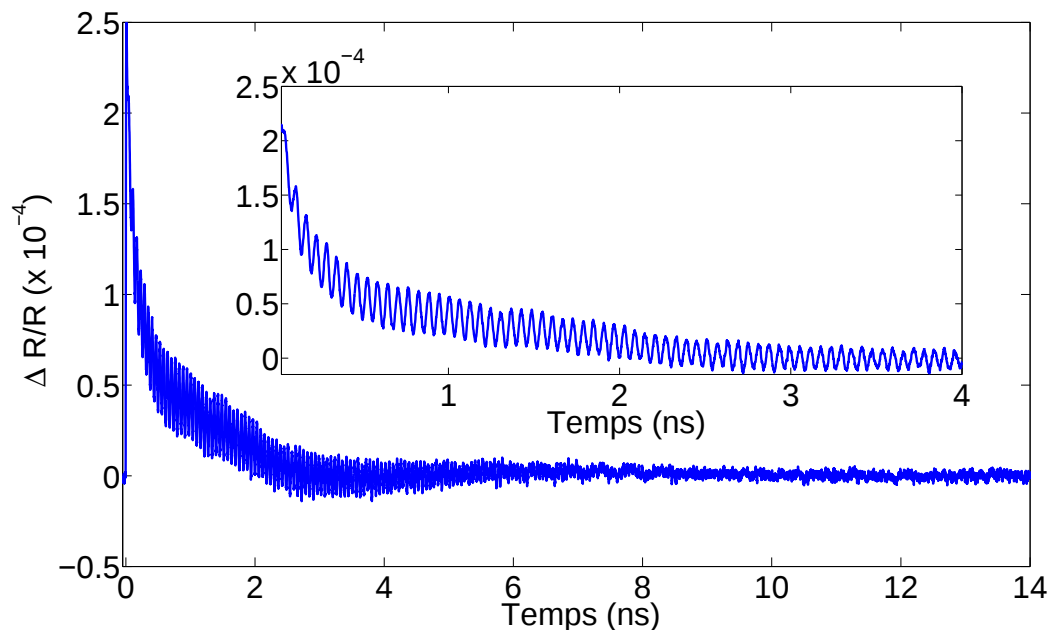


FIGURE 1.10: Réponse transitoire de l'échantillon de silice. Les oscillations Brillouin se superposent à la décroissance thermique. Ces oscillations résultent de l'interférence entre l'impulsion rétrodiffusée par l'onde acoustique se propageant dans la silice et les ondes se réfléchissant sur les interfaces fixes. En insert nous visualisons les premières nanosecondes.

La figure 1.10 met en évidence un résultat de mesure des oscillations Brillouin dans la couche de silice. Dans l'insert est présenté un agrandissement sur les premières nano-

secondes de la réponse de l'échantillon. Dans le cas d'une incidence normale du faisceau sonde, la fréquence de ces oscillations est donnée par la relation [59] :

$$f_B = \frac{2nv}{\lambda}, \quad (1.39)$$

avec f_B la fréquence des oscillations Brillouin, n l'indice du milieu (ici la silice), v la vitesse des ondes acoustiques dans le milieu et λ la longueur d'onde de l'impulsion sonde. La fréquence des oscillations Brillouin issues de ces mesures expérimentales est de 16.60 ± 0.05 GHz. L'indice n de la silice est égale à 1.53 [49]. La célérité des ondes acoustiques longitudinales dans la silice est alors déduite de l'équation précédente : $v = 5.6$ nm/ps ce qui est en accord avec les données de la littérature [49].

Les mesures que nous venons d'exposer serviront lors de la caractérisation expérimentale de l'interféromètre utilisé. Nous allons maintenant présenter un état de l'art des différentes techniques utilisées en acoustique picoseconde pour la détection d'un signal dépendant du déplacement d'une interface.

1.3 Apport de l'interférométrie en acoustique picoseconde

Plusieurs méthodes ont été proposées en acoustique picoseconde afin de détecter les déplacements de surface. Les trois premières sont des adaptations du montage réflectométrique, à savoir la déflectométrie, la détection de distorsion de faisceau (Beam Distorsion Detection ou BDD en anglais) et l'utilisation d'une cavité optique. La déflectométrie repose sur la modification du pointé de l'impulsion sonde réfléchi due à un déplacement de surface. La technique BDD est sensible à la modification de la distance entre l'objectif de microscope et l'échantillon induite par le déplacement de surface. Plus récemment, une nouvelle méthode basée sur la mise en place d'une cavité optique composée d'un miroir de Bragg et de la surface de l'échantillon permet également de réaliser des mesures de déplacement d'interface. Pour compléter cet état de l'art, l'utilisation de l'ellipsométrie, que nous ne détaillerons pas dans ce manuscrit, permet également d'obtenir des informations

semblables aux techniques interférométriques [60–63].

Une autre méthode couramment utilisée pour détecter des déplacements de surface est l’interférométrie. La variation de la phase de l’impulsion sonde venant se réfléchir à la surface de l’échantillon comparée à la phase d’une impulsion référence contient l’information sur le déplacement de la surface de l’échantillon. L’interférométrie permet de convertir ce déphasage en une variation d’intensité lumineuse. Ainsi, en intégrant un interféromètre au sein d’un montage d’acoustique picoseconde, il est possible d’obtenir une mesure résolue en temps du déplacement d’une interface. Plusieurs types de montages interférométriques sont utilisés pour cette détection, tel que l’interféromètre de Michelson, l’interféromètre de Mach-Zehnder ou l’interféromètre de Sagnac. Nous allons dans la suite exposer plus en détails les différentes techniques que nous venons d’évoquer.

1.3.1 Détection des déplacements de surface en réflectométrie

1.3.1.1 Principe de la déflectométrie

Le principe de détection en déflectométrie repose sur la modification de l’angle de réflexion du faisceau sonde induit par le déplacement non uniforme de l’interface. Cette technique est décrite pour la première fois par Whitman *et al.* en 1969 [64]. Ce changement d’angle est détecté en insérant un couteau sur le trajet entre l’échantillon et le photodétecteur. Suivant le changement de l’angle de réflexion, le couteau diminue plus ou moins l’intensité arrivant sur le photodétecteur. Cela est illustré sur la figure 1.11 issue de la référence [65]. La fréquence des ondes acoustiques détectées par Whitman *et al.* est alors de l’ordre du mégahertz. Par la suite, cette méthode a été reprise par J. E. Rothenberg en 1988 [66] afin de détecter des phonons thermiques pour une gamme de fréquence allant jusqu’à 5 GHz. Quelques années plus tard, O. B. Wright utilise ce principe pour réaliser la détection de déplacement d’interface et d’ondes acoustiques longitudinales dans des couches métalliques [67, 68]. La bande de fréquence explorée s’étend alors jusqu’à la centaine de gigahertz. En 2011, Higuete *et al.* ainsi que Salenbien *et al.* détecte des ondes acoustiques de surfaces générées dans une couche mince et dans un système multicouches [65, 69].

Cette adaptation d’un montage réflectométrique, pour la détection de déplacements de

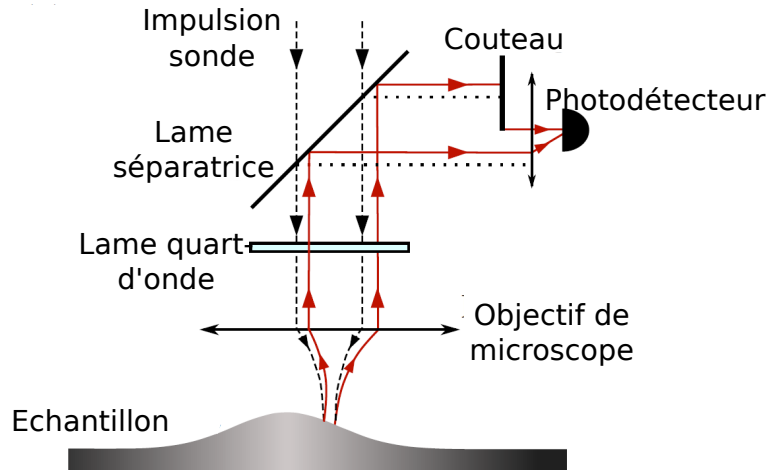


FIGURE 1.11: *Principe de la déflectométrie. Le déplacement de surface induit par l'arrivée de l'onde acoustique perturbe la direction dans laquelle le faisceau sonde (trait continu rouge) est réfléchi. L'intensité de l'impulsion sonde arrivant sur le photodétecteur est modifiée par la présence du couteau sur le trajet. Le trait pointillé représente la direction dans laquelle le faisceau sonde est réfléchi sans perturbation de la surface (d'après [65]).*

surface, est simple à réaliser. Cependant, si la pompe et la sonde sont focalisées au même point sur la surface de l'échantillon, l'angle de réflexion n'est pas modifié et donc le déplacement de surface n'est pas détecté au point d'origine de la perturbation de l'échantillon par l'impulsion pompe [65].

1.3.1.2 Principe de la BDD

En 2006, une nouvelle technique appelée détection de distorsion de faisceau, adaptée elle aussi du montage réflectométrique, est développée par l'équipe Ultrasons Laser de l'université de Bordeaux. Le principe de détection de déplacement de surface par la méthode BDD repose sur le fait que le déplacement d'une interface entraîne une défocalisation du faisceau sonde réfléchi par cette interface. La description de cette méthode ainsi que des mesures sur différentes couches métalliques ont été réalisées par Chigarev *et al.* [70]. Cette défocalisation entraîne un changement de la divergence du faisceau sonde réfléchi. Cette différence de focalisation est alors détectée en insérant un iris sur le trajet entre l'échantillon et la photodiode de détection. L'intensité traversant l'iris dépend de la défocalisation engendrée par le déplacement de surface. Le principe de cette méthode est illustré sur la figure 1.12 issue de la référence [65]. La sensibilité de la BDD au dé-

placement de surface peut être optimisée en défocalisant l'échantillon vers l'objectif de microscope [70].

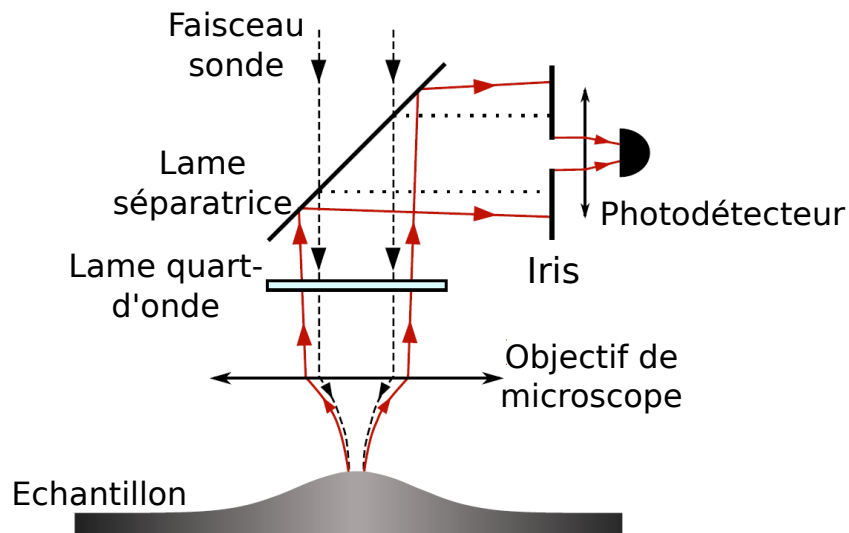


FIGURE 1.12: *Principe de la méthode BDD. Le déplacement de surface modifie la distance entre l'échantillon et l'objectif de microscope. Le faisceau réfléchi (trait continu rouge) est défocalisé par rapport à la surface en mouvement. Cette défocalisation est détectée grâce à un iris inséré sur le chemin entre l'échantillon et le photodétecteur. Le trajet de l'impulsion réfléchie sans perturbation de l'échantillon est représenté en trait pointillé (d'après [65]).*

Les travaux ont montré que cette méthode permet d'avoir un signal dépendant uniquement de la contribution de la défocalisation induite par le déplacement de l'interface. Cependant, cela n'est possible que si les coefficients photoélastiques de l'échantillon sont relativement faibles [65, 70]. Dans le cas contraire, la réponse est une superposition du signal issu de la mesure BDD et d'une mesure de réflectométrie classique.

1.3.1.3 Mesure réflectométrique utilisant une cavité optique

En 2009, Li *et al.* ont utilisé une cavité optique afin de mesurer les déplacements d'une interface [71]. Un miroir de Bragg est placé parallèlement à la surface de l'échantillon, formant ainsi une cavité optique (cf. figure 1.13). La sensibilité de cette cavité à la perturbation acoustique est alors optimisée soit en ajustant la distance entre le miroir de Bragg et la surface de l'échantillon soit en modifiant la longueur d'onde de l'impulsion sonde. Ce type de système permet d'obtenir un signal réflectométrique ayant une amplitude jusqu'à

100 fois supérieure à une mesure de réflectométrie classique [71].

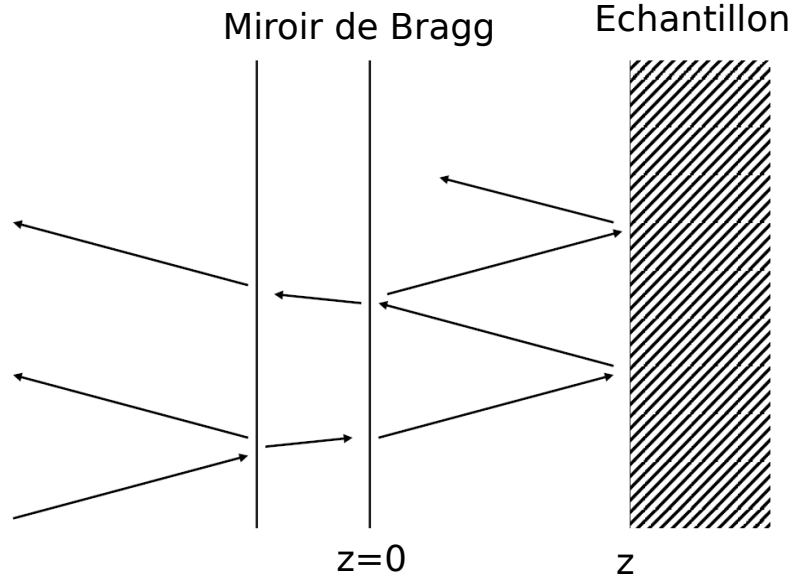


FIGURE 1.13: Principe de l'utilisation d'une cavité optique. Un miroir de Bragg est inséré proche de l'échantillon formant ainsi une cavité optique. La réflexion totale est ajustée soit en modifiant la distance entre le miroir et la surface de l'échantillon soit en modifiant la longueur d'onde de l'impulsion sonde (d'après [71]).

Cependant, il est nécessaire d'ajuster parfaitement le parallélisme entre le miroir de Bragg et la surface de l'échantillon pour effectuer ce type de mesure.

Ces méthodes, adaptées d'un montage de réflectométrie, permettent de réaliser facilement des mesures de déplacement d'interface. Cependant, la déflectométrie n'est efficace que lorsque les impulsions pompe et sonde ne sont pas superposées spatialement, tandis que la BDD est limitée à des échantillons ayant des coefficients photoélastiques faibles. Les mesures réflectométriques utilisant une cavité optique nécessitent quant à elles un parfait alignement de la cavité. Les méthodes interférométriques n'ont pas ces limitations, mais les montages sont plus complexes. En revanche, les montages interférométriques permettent de mesurer simultanément la variation de la phase et de l'amplitude du changement de réflectivité. Nous allons maintenant présenter les configurations interférométriques utilisées en acoustique picoseconde.

1.3.2 Interféromètres de Mach-Zehnder et de Michelson

1.3.2.1 Interféromètre de Mach-Zehnder

L'intégration du premier interféromètre dans une expérience d'acoustique picoseconde a été réalisée en 1996 par Perrin *et al.* [15]. Un interféromètre de type Mach-Zehnder a été choisi. L'interféromètre de Mach-Zehnder est un interféromètre à deux bras. Le faisceau incident arrive sur une lame séparatrice qui crée les deux bras de l'interféromètre. Considérons que le faisceau réfléchi par la lame est le faisceau sonde tandis que la partie transmise constitue le faisceau de référence. Ces deux faisceaux sont réfléchis respectivement par l'échantillon et par un miroir de référence avant d'être recombinaés par une seconde lame séparatrice. Cette dernière permet d'avoir deux voies de détection permises par la réflexion ou la transmission des faisceaux recombinaés par la lame. Le miroir de référence est monté sur une cale piézoélectrique permettant d'introduire un déphasage entre les deux bras afin d'asservir l'interféromètre sur son point de fonctionnement et de minimiser l'influence du bruit mécanique [15, 51].

Avec ce type d'interféromètre, il a été montré qu'en faisant la somme (resp. la différence) des intensités reçues par les deux détecteurs, situés sur les deux voies de détection précisées précédemment, nous avons accès à l'amplitude (resp. à la phase) du changement de réflectivité. Les premières mesures interférométriques effectuées par Perrin *et al.* en 1996 ont permis de détecter la propagation d'ondes acoustiques dans des structures multicouches [15]. Puis, en 2004, ce type de montage a permis de déterminer les propriétés élastiques ainsi que l'épaisseur et la rugosité de films minces [72]. Enfin, en 2008, les ondes acoustiques se propageant dans du mercure liquide ont pu être observées par O. B. Wright *et al.* [73].

1.3.2.2 Interféromètre de Michelson

Après l'interféromètre de Mach-Zehnder, le premier interféromètre de Michelson est intégré dans un montage d'acoustique picoseconde en 1997 par Shen *et al.* [74]. L'interféromètre de Michelson est également un interféromètre à deux bras. Le faisceau sonde incident arrive sur un cube séparateur. Nous faisons le choix que le faisceau transmis est le bras de référence et que la partie réfléchie sur le cube constitue le bras de sonde.

Les faisceaux référence et sonde effectuent un aller-retour, en se réfléchissant respectivement sur un miroir de référence et sur l'échantillon. Les deux impulsions sont recombinaées par le cube séparateur et interfèrent entre elles. Les interférences sont détectées par un photodétecteur. L'état interférentiel dépend de la différence de chemin optique entre les impulsions référence et sonde.

Le miroir de référence est positionné sur une cale piézoélectrique. Elle permet de minimiser l'influence des bruits mécaniques et d'asservir le montage sur un maximum de sensibilité. En 1997, Shen *et al.* ont montré la possibilité de détecter des ondes acoustiques de surface de l'ordre du gigahertz [74]. En 2008, Hurley *et al.* [75], suivi en 2009 par Bramhavar *et al.* [76], ont réalisé la détection d'ondes d'acoustiques de surface de plus hautes fréquences (quelques dizaines de gigahertz). L'interféromètre a aussi permis de cartographier la propagation d'ondes acoustiques de surface [77]. Ce type d'interféromètre a également été utilisé pour détecter le déplacement de surface engendré par des ondes acoustiques longitudinales se propageant au sein d'un matériau, tout d'abord par Richardson *et al.* [78], puis par Hurley *et al.* [75], par Bramhavar *et al.* [76] et par Rampoux [79]. Depuis 2006, Bienville *et al.* et Amziane *et al.* ont utilisé l'interféromètre de Michelson pour détecter la vibration de nanostructures métalliques [22,31].

1.3.2.3 Conclusion

Les interféromètres de Michelson et de Mach-Zehnder sont des interféromètres à deux bras. Les impulsions référence et sonde suivent des chemins optiques différents et ne subissent donc pas les mêmes vibrations mécaniques durant leurs trajets. Cela a pour effet d'introduire un bruit d'origine mécanique sur la mesure et donc de dégrader le contraste des interférences. Cet inconvénient est en partie compensé par l'asservissement de la position du miroir de référence. De plus, comme les impulsions référence et sonde sont réfléchies respectivement sur un miroir et sur un échantillon excité, leur front d'onde est différent et donc le contraste des interférences peut également être dégradé. Afin de s'affranchir du bruit mécanique, l'utilisation d'un interféromètre dit à chemin commun est une solution.

1.3.3 Interféromètre de Sagnac

Dans le cas d'un interféromètre de Mach-Zehnder ou de Michelson, le faisceau réfléchi sur l'échantillon, et donc contenant l'information, interfère avec un faisceau de référence ayant suivi un chemin différent. Dans le cas de l'interféromètre de Sagnac, les faisceaux sonde et référence parcourent une même boucle. Ces derniers sont contrapropageant. Ces deux impulsions suivent donc le même trajet optique réduisant ainsi très fortement le bruit d'origine mécanique. L'échantillon est placé sur cette boucle en position non symétrique, c'est-à-dire que la longueur parcourue par l'impulsion référence depuis le cube séparateur jusqu'à l'échantillon est différente de la longueur parcourue par l'impulsion sonde depuis le même cube jusqu'à l'échantillon. Ainsi, contrairement aux interféromètres à deux bras, les deux faisceaux portent l'information sur la perturbation de l'échantillon mais à des instants différents : les faisceaux sonde et référence qui interfèrent ont été réfléchis au même point de l'échantillon à deux instants différents t et $t + \Delta t$ (l'origine des temps est choisie au moment où l'impulsion pompe est absorbée par l'échantillon).

Comme pour l'interféromètre de Mach-Zehnder ou de Michelson, l'interféromètre de Sagnac intégré à un dispositif d'acoustique picoseconde permet de mesurer les variations de l'amplitude et de la phase du changement de réflectivité d'un échantillon [16, 36, 51]. Les premiers interféromètres de Sagnac utilisés en acoustiques picoseconde sont apparus à partir de 1999 sous l'impulsion de Hurley *et al.*, Duquesne *et al.* et Nikoonahad *et al.* [16, 36, 80], permettant ainsi la détection d'ondes acoustiques longitudinales dans des couches métalliques simples ou des empilements de couches métalliques. En 2011, la détection de phonons générés par des super-réseaux a été effectuée par Huynh *et al.* [81], suivi par Pascual-Winter *et al.* en 2012 [82]. Comme pour l'interféromètre de Michelson, l'imagerie en deux dimensions de la propagation d'ondes acoustiques de surface est aussi réalisée par Tachizaki *et al.* [83].

Comparé aux interféromètres de Michelson ou de Mach-Zehnder, l'interféromètre de Sagnac n'a pas besoin d'asservissement. De plus, suivant le retard temporel Δt entre les impulsions référence et sonde, l'interféromètre de Sagnac permet d'avoir accès soit à la perturbation [10, 13, 14, 84, 85] soit à sa dérivée temporelle [14].

1.4 Conclusion

Nous avons présenté les principes physiques mis en jeu pour la génération et la détection d'ondes acoustiques par impulsions laser. Par la suite, nous avons illustré ces principes par des mesures sur un échantillon fortement absorbant et sur un second échantillon peu absorbant. Dans le cas d'un échantillon absorbant, plusieurs échos acoustiques, issus de la propagation de l'onde et des multiples réflexions aux interfaces, sont détectés. Dans le cas d'un échantillon peu absorbant, l'onde acoustique se propageant dans la couche de silice est détectée au travers des oscillations Brillouin.

Nous avons ensuite présenté différents montages interférométriques utilisés dans des dispositifs d'acoustique picoseconde. Nous avons pu voir que des montages du type Michelson ou Mach-Zehnder ont le désavantage d'être des interféromètres à deux bras. Des vibrations mécaniques du montage peuvent alors induire un bruit qu'il est possible de minimiser par un asservissement actif de la position du miroir de référence. Ainsi les interféromètres à chemin commun sont de meilleurs candidats, tel que l'interféromètre de Sagnac. Cependant, dans ce dernier cas, une bonne recombinaison est très sensible à l'alignement des optiques.

Dans le second chapitre, nous allons présenter le principe et détailler le fonctionnement de l'interféromètre que nous avons développé. Celui-ci est une adaptation d'un autre type de montage interférométrique à chemin commun. Dans notre cas, l'interféromètre fonctionne en réflexion. De plus l'absence d'asservissement rend l'interféromètre entièrement passif.

Interféromètre entièrement passif à chemin commun basé sur l'utilisation d'un cristal biréfringent

Sommaire

2.1	Principe de fonctionnement de l'interféromètre à chemin commun développé	45
2.1.1	Interféromètre à chemin commun utilisant des cristaux biréfringents	45
2.1.2	Cristal biréfringent	46
2.1.3	Description du montage	47
2.1.4	Système d'analyse	50
2.1.5	Photodétecteur différentiel	51
2.1.6	Conclusion	51
2.2	Modélisation de l'interféromètre sans perturbation de l'échantillon	51
2.2.1	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre idéal	52

2.2.2	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre en présence de biais expérimentaux	57
2.3	Modélisation de l'interféromètre avec perturbation de l'échantillon	62
2.3.1	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre idéal	63
2.3.2	Lien entre les mesures interférométriques et réflectométriques .	66
2.3.3	Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre en présence de biais expérimentaux	68
2.4	Conclusion	72

H. de Régnier

La solitude est utile. Il faut parfois ne parler qu'avec soi-même. On entend alors de dures vérités ou d'agréables mensonges selon qu'on analyse ou qu'on s'imagine

Dans la première partie, un état de l'art des techniques interférométriques utilisées jusqu'à présent en acoustique picoseconde a été présenté. Nous avons brièvement exposé les avantages et inconvénients de chacun. On a pu remarquer que pour limiter les bruits mécaniques, sans utiliser d'asservissement, les interféromètres à chemin commun sont une solution [15, 16, 36, 80].

En 2005, dans le groupe de M. Orrit à l'université de Leiden (Pays-Bas), un autre type d'interféromètre à chemin commun a été développé [18, 86]. Les impulsions sonde et référence ne sont pas séparées spatialement suivant des chemins optiques distincts, comme pour l'interféromètre de Sagnac [15, 16], mais temporellement selon des chemins optiques communs.

Le montage interférométrique mis en place est donc une adaptation de cet interféromètre à chemin commun permettant des mesures de réflectivité transitoire. Cette configuration est particulièrement adaptée pour étudier des milieux opaques [15, 16] ainsi que pour détecter des oscillations Brillouin dans des milieux transparents [87]. Cet interféromètre est intégré au montage d'acoustique picoseconde présenté au paragraphe 1.2.2. Dans un premier temps, nous allons décrire le montage interférométrique, puis nous dé-

taillerons la modélisation de cet interféromètre. Nous verrons qu'il est possible de mesurer indépendamment la perturbation de l'amplitude ou la perturbation de la phase du coefficient de réflectivité. De plus, il sera montré que la mise en œuvre de cet interféromètre est simplifiée du fait de l'utilisation d'un seul cristal biréfringent.

2.1 Principe de fonctionnement de l'interféromètre à chemin commun développé

2.1.1 Interféromètre à chemin commun utilisant des cristaux biréfringents

Un autre type d'interféromètre à chemin commun a récemment été utilisé par van Dijk *et al.* afin de détecter les vibrations de nanoparticules d'or individuelles [18,86,88]. Cet interféromètre utilise des cristaux biréfringents afin de séparer et recombiner temporellement l'impulsion référence et l'impulsion sonde. La figure 2.1 présente le principe du montage. Une impulsion polarisée linéairement à 45° des axes propres d'un cristal biréfringent est séparée temporellement en deux impulsions de polarisations orthogonales. Ces impulsions traversent l'échantillon avant d'être recombinées par un second cristal biréfringent dont les axes propres sont tournés de 90° par rapport au premier cristal. L'état interférentiel est analysé par une lame quart-d'onde et un polariseur suivi d'un photodétecteur.

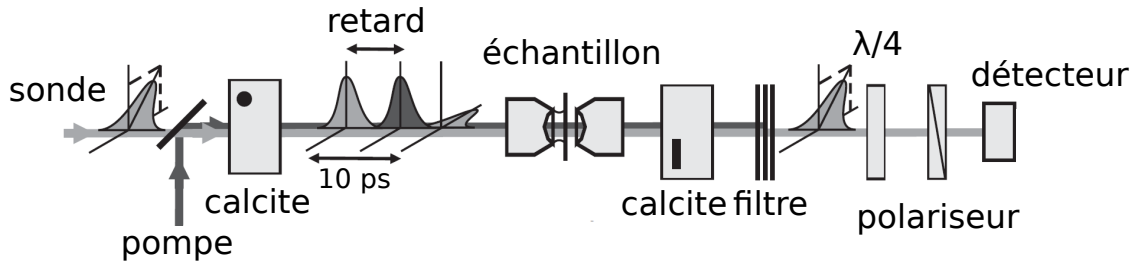


FIGURE 2.1: Schéma de principe de l'interféromètre à chemin commun utilisant des cristaux biréfringents. Une impulsion est séparée temporellement en deux impulsions en traversant un premier cristal biréfringent. Ces impulsions traversent l'échantillon avant d'être recombinées par un second cristal biréfringent. La polarisation de l'impulsion recombinée est analysée par une lame quart-d'onde et un polariseur. L'intensité à la sortie du polariseur est mesurée par un photodétecteur (d'après [18]).

La durée séparant les impulsions sonde et référence est faible devant les temps caractéristiques des phénomènes observés. Un tel interféromètre mesure donc la dérivée temporelle de la perturbation. Contrairement à l'interféromètre de Sagnac, les impulsions référence et sonde ne sont pas séparées spatialement et parcourent exactement le même chemin optique, simplifiant ainsi la phase d'alignement. Cependant, l'interféro-

mètre nécessite deux cristaux biréfringents différents. Les épaisseurs et l'orientation des axes peuvent donc différer, ce qui induit une recombinaison temporelle légèrement dégradée. Pour compenser une différence d'épaisseur ou d'orientation des axes propres des cristaux un asservissement de leur température est nécessaire [86].

2.1.2 Cristal biréfringent

Le cristal biréfringent est l'élément central de l'interféromètre. C'est grâce à ce cristal que l'on arrive à séparer et à recombinaison les impulsions qui sondent l'échantillon puis interfèrent entre elles. L'interféromètre mis en place est basé sur l'utilisation d'un cristal biréfringent de calcite. Dans un milieu optiquement biréfringent, une onde polarisée rectilignement voit un indice de réfraction différent selon la direction de sa polarisation. Un cristal de calcite est un milieu biréfringent uniaxe, c'est-à-dire qu'il possède deux indices de réfraction différents. Ainsi, sur les trois axes du cristal, deux axes ont le même indice de réfraction et le troisième a un indice différent. Pour notre application, le cristal est orienté pour que les deux axes d'indice différents forment un plan perpendiculaire à l'axe de propagation de l'onde lumineuse. De plus, le cristal est coupé suivant ce plan perpendiculaire. Or la vitesse de phase v_ϕ d'une onde lumineuse dans un milieu d'indice n est égale à c/n , où c est la célérité de la lumière dans le vide. L'axe ayant l'indice de réfraction n_f le plus faible est donc appelé l'axe optique rapide tandis que l'axe ayant l'indice de réfraction n_s le plus élevé est appelé l'axe optique lent du cristal (figure 2.2).

Ainsi, une impulsion incidente au cristal de calcite polarisée linéairement selon une direction quelconque donne naissance en sortie du cristal à deux impulsions de polarisations linéaires orthogonales entre elles et retardées d'une quantité $\Delta t = d(n_s - n_f)/c$, où d est l'épaisseur du cristal. Dans le cas d'une impulsion incidente polarisée linéairement à 45 degrés par rapport à l'axe rapide les deux impulsions ont la même amplitude en sortie du cristal.

Pour un matériau donné, le décalage temporel dépend de l'épaisseur traversée. Il faut s'assurer que le décalage temporel en sortie du cristal est supérieur à la durée des impulsions utilisées dans le montage d'acoustique picoseconde afin que les impulsions ne se recouvrent pas durant leur parcours du système optique. Dans notre expérience, nous

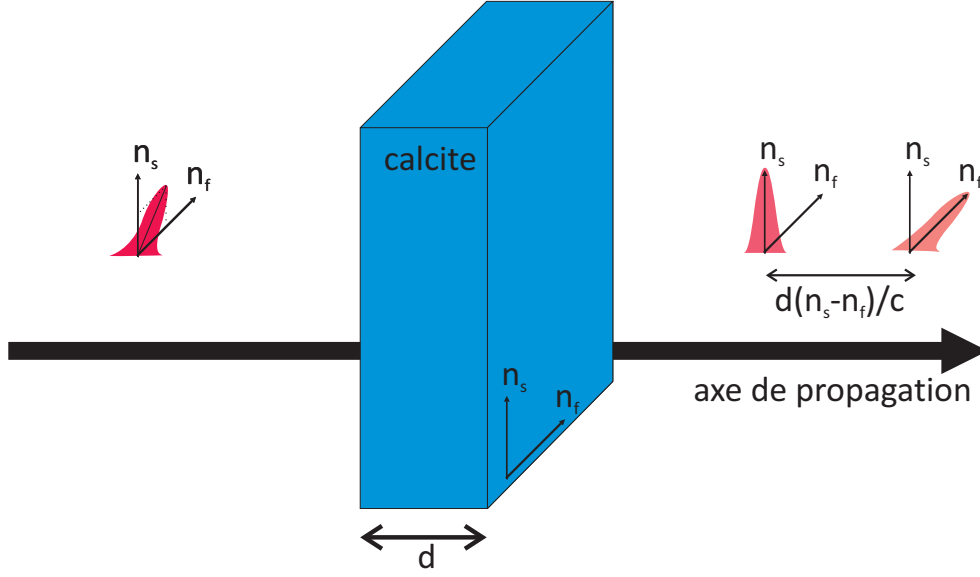


FIGURE 2.2: Génération de deux impulsions de polarisations orthogonales et séparées dans le temps. Une onde lumineuse polarisée linéairement à 45 degrés par rapport à l'axe optique rapide du cristal est incidente au cristal biréfringent. Les indices de réfraction selon les axes lent (n_s) et rapide (n_f) étant différents, deux impulsions de polarisations orthogonales et séparées temporellement apparaissent à la sortie du cristal. L'onde incidente orientée à 45 degrés assure une amplitude identique des impulsions en sortie du cristal.

avons choisi d'utiliser un cristal de calcite d'épaisseur 5 mm permettant d'obtenir un décalage temporel de 3 ps entre les deux impulsions sortant du cristal [89]. Ce décalage temporel est supérieur à la durée d'environ 400 fs des impulsions lumineuses utilisées dans l'expérience d'acoustique picoseconde.

2.1.3 Description du montage

Le montage interférométrique est intégré au dispositif d'acoustique picoseconde présenté au paragraphe 1.2.2. Nous verrons dans le paragraphe suivant que ce montage permet de mesurer indépendamment la perturbation transitoire de l'amplitude et de la phase du coefficient de réflectivité de l'échantillon. Lors de la description et de la modélisation de l'interféromètre, tous les angles seront donnés par rapport à l'axe optique rapide du cristal biréfringent.

Un schéma du montage est présenté sur la figure 2.3. On s'intéresse tout d'abord au comportement statique en décrivant le trajet suivi par l'impulsion sonde dans le cas d'un échantillon non perturbé, c'est-à-dire en l'absence de l'impulsion pompe. L'impul-

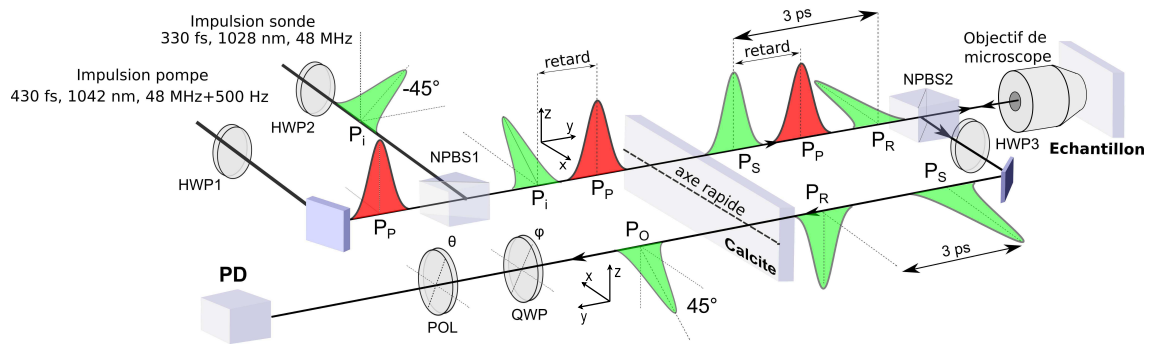


FIGURE 2.3: Schéma du montage interférométrique intégré au dispositif d'acoustique picoseconde. Le cristal de calcite sépare une impulsion linéairement polarisée à 45 degrés par une lame demi-onde (HWP2) en deux impulsions polarisées orthogonalement et séparées temporellement. L'impulsion référence P_R est polarisée suivant l'axe optique rapide et l'impulsion sonde P_S suivant l'axe optique lent. Ces impulsions sont focalisées sur l'échantillon par un objectif de microscope. Elles sont réfléchies par l'échantillon. Un cube non polarisant (NPBS2) permet de séparer le trajet aller du trajet retour. La lame demi-onde HWP3 orientée à -45 degrés change l'orientation des polarisations des impulsions P_R et P_S . Les impulsions sont temporellement recombinaées en traversant une seconde fois le même cristal de calcite. La polarisation de l'impulsion recombinaée est analysée par la lame quart-d'onde QWP (angle ϕ) et par le polariseur POL (angle θ). L'impulsion pompe P_P est polarisée le long de l'axe optique lent par une lame demi-onde (HWP1). L'impulsion pompe est focalisée sur l'échantillon par le même objectif de microscope.

sion sonde à l'entrée du cristal biréfringent est polarisée linéairement à -45 degrés par une lame demi-onde (HWP2). Après avoir traversé le cristal de calcite, deux impulsions décalées temporellement et de polarisations orthogonales suivant les axes lent et rapide du cristal (cf paragraphe 2.1.2) sont présentes. Ces impulsions sont appelées respectivement l'impulsion référence (P_R) pour l'impulsion polarisée linéairement suivant l'axe rapide du cristal et l'impulsion sonde (P_S) pour l'impulsion polarisée linéairement suivant l'axe lent du cristal. Les impulsions P_R et P_S sont focalisées sur l'échantillon par un objectif de microscope. Elles sont ensuite partiellement réfléchies par l'échantillon avant de traverser une nouvelle fois l'objectif de microscope. Un cube non polarisant (NPBS2) est installé pour séparer le trajet aller du trajet retour. Ensuite, les impulsions réfléchies traversent une lame demi-onde (HWP3) orientée à 45 degrés. L'impulsion P_R est maintenant polarisée linéairement suivant l'axe lent du cristal et l'impulsion P_S est polarisée linéairement suivant l'axe rapide du cristal. Les impulsions traversent une seconde fois le même cristal de calcite et se trouvent alors temporellement recombinaées puisque chacune des impulsions a traversé le cristal suivant les axes optiques lent et rapide. Les impulsions recombinaées

temporellement sont injectées dans un analyseur composé d'une lame quart-d'onde (QWP, angle ϕ) et d'un polariseur (POL, angle θ). En sortie de l'analyseur, les deux impulsions interfèrent. Un photodétecteur (PD) en sortie du polariseur permet de mesurer l'intensité résultant des interférences entre les champs électriques des impulsions référence et sonde.

En l'absence d'excitation de l'échantillon, l'amplitude et la phase des champs électriques associés aux impulsions P_R et P_S ne sont pas modifiées. La recombinaison temporelle de ces deux impulsions est donc une impulsion linéairement polarisée à 45 degrés.

Supposons maintenant que l'impulsion pompe est présente et perturbe l'échantillon. Celle-ci est alignée suivant l'axe lent du cristal grâce à une lame demi-onde (HWP1). Ainsi, une seule impulsion pompe est présente en sortie du cristal de calcite. L'impulsion pompe est focalisée par l'objectif de microscope sur l'échantillon et est partiellement absorbée par l'échantillon. Des ondes acoustiques sont alors générées à l'interface où a eu lieu l'absorption de l'impulsion pompe et se propagent dans l'échantillon. Ces ondes acoustiques modifient les amplitudes et les phases des champs électriques des impulsions référence P_R , puis sonde P_S . De ce fait, lors de la recombinaison temporelle des impulsions P_R et P_S après le second passage dans le cristal de calcite la polarisation de l'impulsion résultante est soit elliptique soit toujours linéaire mais orientée selon un angle différent de 45 degrés. Pour un couple d'angle (θ, ϕ) donné, la perturbation transitoire modifie donc l'intensité transmise à travers l'analyseur.

Nous verrons, lors de la modélisation de l'interféromètre, qu'en ajustant les angles θ du polariseur et ϕ de la lame quart-d'onde il est possible d'obtenir un signal qui dépende uniquement de l'amplitude ou de la phase du coefficient de réflectivité perturbé.

Avec le cristal de calcite d'épaisseur 5 mm utilisé dans l'expérience, les impulsions qui interfèrent ont vu l'échantillon à des instants différents séparés de 3 ps. Or nous montrons dans la partie 2.3 que nous mesurons avec cet interféromètre la dérivée temporelle de la perturbation, l'opération dérivée étant obtenue en comparant la réponse vue par les deux impulsions P_R et P_S séparées de 3 ps. Ce décalage temporel limite donc les fréquences acoustiques détectables avec cet interféromètre. En effet, dans le domaine spectral, l'interféromètre se comporte comme un filtre passe bande. La fréquence de coupure basse est donnée par la sensibilité de détection de la dérivée de la perturbation. Tandis que la fréquence de coupure haute est imposée par la séparation temporelle des impulsions

venant sonder l'échantillon. Le délai de 3 ps entre les impulsions référence et sonde correspond à une fréquence de coupure de 150 GHz. Cependant, le domaine des fréquences acoustiques accessibles pourrait être étendu jusqu'au terahertz en utilisant un cristal biréfringent plus fin, une ligne à retard acousto-optique [90] ou encore plusieurs cristaux biréfringents d'orientation contrôlée [91, 92].

2.1.4 Système d'analyse

Au travers d'un exemple simple, nous allons montrer comment l'analyseur permet de mesurer les changements de réflectivité de l'échantillon dus à la propagation des ondes acoustiques. Sans perturbation de l'échantillon, l'impulsion sortant du cristal après recombinaison est polarisée linéairement à 45 degrés par rapport à l'axe optique rapide. Cette impulsion traverse maintenant le système d'analyse composé d'une lame quart-d'onde et d'un polariseur. Supposons dans un premier temps que la lame quart d'onde est orientée à 45 degrés. L'impulsion recombinaison est donc alignée suivant un des axes de la lame et voit donc sa polarisation inchangée en sortie de cette dernière. L'impulsion arrivant sur le polariseur est linéaire et orientée à 45 degrés. La frange claire (resp. sombre) de l'interféromètre correspond donc à un polariseur orienté à 45 degrés (resp. 135 degrés). Supposons maintenant que l'échantillon soit excité par l'impulsion pompe. Les amplitudes et les phases des champs électriques des impulsions référence et sonde sont modifiées par l'échantillon. Supposons que la recombinaison des impulsions en sortie du cristal reste linéaire mais orientée selon un angle différent de 45 degrés. Si la lame quart-d'onde et le polariseur sont orientés de manière à ce que les amplitudes des champs qui interfèrent soient égales mais que les phases de ces champs soient différentes, alors dans ce cas les interférences apportent l'information sur les modifications de phase entre les champs électriques des impulsions référence et sonde perturbés par l'échantillon. Si la lame quart-d'onde et le polariseur sont orientés de manière à ce que les deux champs qui interfèrent aient des phases égales mais des amplitudes différentes, alors les interférences sont seulement sensibles aux variations de l'amplitude des champs. Ces positions spécifiques de la lame quart-d'onde et du polariseur seront déterminées au paragraphe 2.3. Nous avons illustré le fonctionnement à travers un cas simple où la polarisation de l'impulsion après le second passage dans le cristal est linéaire. Cependant, la même interprétation pourrait être faite dans le cas d'une

polarisation elliptique en sortie du cristal.

2.1.5 Photodétecteur différentiel

Le photodétecteur utilisé est de type différentiel (Thorlabs, modèle PDB450C). Une partie de l'impulsion sonde est prélevée sur la partie transmise du cube non polarisant NPBS1. L'intensité du faisceau prélevé est ajustée de façon à être égale à l'intensité du faisceau en sortie de l'analyseur en l'absence de perturbation. L'utilisation d'une détection différentielle permet de s'affranchir des fluctuations de puissance du laser sonde.

2.1.6 Conclusion

Par comparaison avec l'interféromètre de Sagnac où les impulsions référence et sonde sont séparées spatialement et temporellement [15,16], la configuration mise en place utilise un cristal biréfringent afin de séparer temporellement les impulsions, simplifiant ainsi la phase d'alignement. Dans le montage que nous proposons avec un mode de fonctionnement en réflexion, l'utilisation d'un seul cristal biréfringent permet de s'affranchir d'asservissement en température. Ainsi, le montage interférométrique proposé est d'alignement simple et est entièrement passif.

Après avoir décrit le montage expérimental, nous allons présenter une modélisation du fonctionnement de l'interféromètre. Cette modélisation sera faite dans un premier temps en l'absence de perturbation (paragraphe 2.2). Puis au paragraphe 2.3 nous montrerons comment accéder à la valeur complexe du coefficient de réflectivité perturbé.

2.2 Modélisation de l'interféromètre sans perturbation de l'échantillon

Nous étudierons donc dans un premier temps le comportement de l'interféromètre idéal en l'absence de l'impulsion pompe. Puis nous regarderons l'influence du dichroïsme de l'objectif de microscope notamment à travers la position des minimums d'intensité. Nous prendrons enfin en compte la différence de chemin optique potentielle pour une même

impulsion entre les trajets aller et retour dans le cristal biréfringent. La caractérisation expérimentale de l'interféromètre sera présentée au chapitre 3.

2.2.1 Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre idéal

Dans un premier temps, l'impulsion pompe est supposée absente. Ainsi l'échantillon n'est pas perturbé. Lors de la description du montage, il a été montré que l'interféromètre est basé sur l'évolution de l'état de polarisation des impulsions sonde et référence qui sondent l'échantillon. Il est possible de décrire simplement ces changements des états de polarisation en utilisant le formalisme de Jones. Grâce à ce formalisme, les composants d'un système optique peuvent être décrits sous forme matricielle [93]. Le vecteur de Jones de la lumière en sortie du système optique, ici l'interféromètre, est donné par le produit de la matrice de Jones du système optique par le vecteur de Jones de la lumière en entrée.

Tout d'abord, on suppose l'objectif de microscope parfait ce qui veut dire que ni l'amplitude ni la polarisation du champ électrique d'une impulsion lumineuse ne seront modifiées en traversant l'objectif. Nous rappelons que tous les angles sont donnés par rapport à l'axe optique rapide du cristal biréfringent utilisé.

Pour maximiser le contraste des interférences, les impulsions qui interfèrent doivent avoir une amplitude identique. Pour cela, le champ incident doit être polarisé à ± 45 degrés afin d'avoir deux impulsions en sortie du cristal de même amplitude (cf paragraphe 2.1.2). Le choix fait ici est un champ électrique incident $\mathbf{E}_{\text{in}}$ polarisé linéairement à -45 degrés (le calcul serait aisément transposable au cas d'un champ polarisé à $+45$ degrés). L'expression de $\mathbf{E}_{\text{in}}$ est donnée par :

$$\mathbf{E}_{\text{in}} = E_0 \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix}, \quad (2.1)$$

avec E_0 l'amplitude du champ électrique. Le champ traverse ensuite un cristal biréfringent de calcite, créant ainsi deux impulsions polarisées orthogonalement suivant les axes lent et rapide du cristal, et séparées temporellement de 3 ps (paragraphe 2.1.2). L'impulsion

polarisée suivant l'axe rapide est appelée impulsion référence tandis que l'impulsion polarisée suivant l'axe lent est appelée impulsion sonde. Les deux impulsions ne se propageant pas à la même vitesse selon chaque axe de polarisation, elles ressortent déphasées l'une par rapport à l'autre. La matrice de Jones représentative de ce déphasage lors de la traversée du cristal de calcite est donnée par :

$$\underline{C} = e^{i2\pi n_f \frac{d}{\lambda}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\Phi} \end{pmatrix}, \quad (2.2)$$

où $\Phi = 2\pi(n_s - n_f)\frac{d}{\lambda}$ représente la différence de phase entre les deux impulsions, d est l'épaisseur du cristal, λ est la longueur d'onde de l'impulsion incidente, n_s et n_f sont les indices de réfraction des axes optiques respectivement lent et rapide du cristal. Le retard temporel entre les deux impulsions (~ 3 ps) étant supérieur à la durée des impulsions (~ 400 fs), les impulsions ne se recouvrent pas temporellement après avoir été séparées par le passage à travers le cristal. Les impulsions sont ensuite focalisées sur l'échantillon par un objectif de microscope. L'objectif étant supposé ici parfait, les amplitudes et les polarisations des impulsions référence et sonde ne sont pas modifiées.

Les deux impulsions sont ensuite réfléchies par l'échantillon. La matrice représentative de l'échantillon est le résultat de la multiplication d'une matrice de réflexion et d'une matrice décrivant la modification des champs électriques en présence d'ondes acoustiques. Lors de la réflexion sur l'échantillon, l'axe x change alors de sens. L'impulsion pompe étant absente, l'échantillon est assimilé à un miroir de réflectivité r_0 :

$$\underline{M} = r_0 \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (2.3)$$

Les impulsions traversent une seconde fois l'objectif de microscope avant d'être séparées du trajet aller par un cube non polarisant (NPBS2). Une lame demi-onde orientée à 45 degrés est positionnée sur le trajet des impulsions. Cette lame permet d'orienter les polarisations linéaires de l'impulsion sonde et de l'impulsion référence selon la direction orthogonale à leur polarisation initiale, c'est-à-dire que l'impulsion référence est maintenant polarisée

suivant l'axe lent du cristal et l'impulsion sonde est polarisée suivant l'axe rapide du cristal. La matrice de Jones $\underline{\Lambda}$ de cette lame demi-onde est [94] :

$$\underline{\Lambda} = \underline{R}\left(\frac{\pi}{4}\right) \begin{pmatrix} e^{i\pi/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\pi/2} \end{pmatrix} \underline{R}\left(-\frac{\pi}{4}\right) = \begin{pmatrix} 0 & i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad (2.4)$$

avec $\underline{R}(\gamma)$ la matrice de rotation d'angle γ définie par :

$$\underline{R}(\gamma) = \begin{pmatrix} \cos \gamma & -\sin \gamma \\ \sin \gamma & \cos \gamma \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

À ce stade, nous faisons le choix de ne pas modéliser le cube non polarisant NPBS2 ainsi que le miroir situé après la lame demi-onde sur le trajet retour. En effet, la prise en compte de ces deux composants dans la modélisation, introduit uniquement un déphasage de π sur l'expression du champ électrique. Ainsi, l'expression finale de l'intensité ne sera pas modifiée. Ensuite les deux impulsions traversent une seconde fois le cristal de calcite afin d'être recombinaées temporellement. La polarisation de l'impulsion résultante est alors analysée par un ensemble optique constitué d'une lame quart-d'onde et d'un polariseur. La matrice de Jones $\underline{Q}(\phi)$ d'une lame quart-d'onde d'orientation ϕ est donnée par :

$$\begin{aligned} \underline{Q}(\phi) &= \underline{R}(\phi) \begin{pmatrix} e^{i\pi/4} & 0 \\ 0 & e^{-i\pi/4} \end{pmatrix} \underline{R}(-\phi) \\ &= \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} 1 + i \cos 2\phi & i \sin 2\phi \\ i \sin 2\phi & 1 - i \cos 2\phi \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (2.6)$$

L'expression de la matrice de Jones $\underline{P}(\theta)$ d'un polariseur d'orientation θ est égale à :

$$\underline{P}(\theta) = \underline{R}(\theta) \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \underline{R}(-\theta) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + \cos 2\theta & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & 1 - \cos 2\theta \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

Le champ électrique $\mathbf{E}_{\text{out}}$ en sortie de l'interféromètre est obtenu en multipliant le champ électrique en entrée $\mathbf{E}_{\text{in}}$ par l'ensemble des matrices de Jones correspondant aux éléments composant l'interféromètre :

$$\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi) = \underline{P}(\theta) \underline{Q}(\phi) \underline{C} \underline{\Lambda} \underline{M} \underline{C} \mathbf{E}_{\text{in}}. \quad (2.8)$$

En introduisant les résultats des équations 2.1 à 2.7 dans l'expression précédente on peut montrer que le champ électrique $\mathbf{E}_{\text{out}}$ se met sous la forme :

$$\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi) = -\frac{iE_{r_0} e^{i\Phi} e^{i4\pi n_f \frac{d}{\lambda}}}{2} [\cos \theta + \sin \theta + i(\cos(\theta - 2\phi) - \sin(\theta - 2\phi))] \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}, \quad (2.9)$$

avec $E_{r_0} = r_0 E_0$.

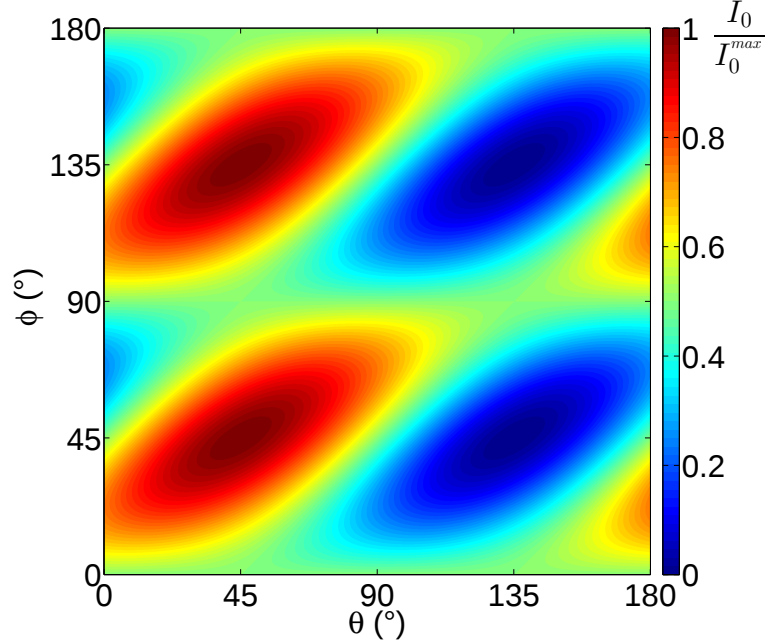


FIGURE 2.4: Cartographie de l'intensité I_0 reçue par le détecteur sans perturbation de l'échantillon en fonction de l'angle du polariseur θ et de l'angle de la lame quart-d'onde ϕ . Le champ incident est orienté à -45 degrés. L'intensité est normalisée par rapport à l'intensité d'une frange claire I_0^{max} .

L'intensité $I_0(\theta, \phi)$ arrivant sur le détecteur est égale à $I_0(\theta, \phi) = |\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi)|^2$. À partir

de l'équation 2.9 on peut exprimer $I_0(\theta, \phi)$ de façon compacte :

$$I_0(\theta, \phi) = \frac{|E_{r0}|^2}{4} [(\cos \theta + \sin \theta)^2 + (\cos(\theta - 2\phi) - \sin(\theta - 2\phi))^2] \quad (2.10)$$

$$= \frac{|E_{r0}|^2}{2} [1 + \cos(2\theta - 2\phi) \sin 2\phi]. \quad (2.11)$$

Il sera montré au paragraphe 2.3 que les mesures interférométriques de réflectivité transitoire doivent être faites au voisinage d'une frange sombre. L'équation 2.10 permet de trouver la position des franges sombres. En effet $I_0(\theta, \phi)$ est nulle si et seulement si $\cos \theta + \sin \theta = 0$ et $\cos(\theta - 2\phi) - \sin(\theta - 2\phi) = 0$. Les couples d'angles (θ, ϕ) solutions de ces deux équations sont $(135^\circ, 45^\circ)$ et $(135^\circ, 135^\circ)$. De plus, l'équation 2.11 permet de trouver la position des franges claires. L'intensité $I_0(\theta, \phi)$ est maximale pour $\cos(2\theta - 2\phi) \sin 2\phi = 1$. Les couples d'angles (θ, ϕ) satisfaisant cette équation sont $(45^\circ, 45^\circ)$ et $(45^\circ, 135^\circ)$. La cartographie de l'intensité I_0 en fonction des angles θ et ϕ est représentée sur la figure 2.4. Sur cette cartographie, on remarque que l'intensité est π -périodique suivant la rotation θ du polariseur et $\pi/2$ -périodique selon la rotation ϕ de la lame quart-d'onde. Ainsi le comportement de l'interféromètre pour un couple d'angle (θ, ϕ) sera le même pour un second couple $(\theta + k\pi, \phi + j\pi/2)$ avec k et j des nombres entiers.

Pour le déroulement du calcul de l'intensité nous avons fait le choix de prendre un champ électrique incident $\mathbf{E}_{\text{in}}$ polarisé linéairement à -45 degrés. Comme indiqué au début du paragraphe 2.2.1, il est également possible de choisir un champ électrique $\mathbf{E}_{\text{in}}$ polarisé linéairement à $+45$ degrés,

$$\mathbf{E}_{\text{in}} = E_0 \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (2.12)$$

Dans ce cas, on obtient une expression de l'intensité I_0 telle que :

$$I_0(\theta, \phi) = \frac{|E_{r0}|^2}{2} [1 - \cos(2\theta - 2\phi) \sin(2\phi)]. \quad (2.13)$$

Moyennant une translation de 90° selon θ , la cartographie de l'intensité en sortie de

l'interféromètre est identique à celle calculée pour $\mathbf{E}_{\text{in}} = E_0 \sqrt{1/2}(1, -1)$.

2.2.2 Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre en présence de biais expérimentaux

Nous allons à présent étudier le fonctionnement de l'interféromètre dans le cas réel, c'est-à-dire en considérant des aberrations des composants optiques. Les paramètres ayant une influence significative sont le dichroïsme de l'objectif de microscope et la différence de chemin optique dans le cristal biréfringent lors de l'aller-retour des impulsions [86].

2.2.2.1 Influence du dichroïsme de l'objectif de microscope

Comme indiqué au paragraphe 2.2.1, le dichroïsme de l'objectif de microscope, c'est-à-dire la dépendance de son coefficient de transmission à la polarisation de l'onde incidente, a été jusqu'à présent négligé. Le but de cette partie est de mettre en évidence son influence sur le fonctionnement de l'interféromètre.

Dans le calcul qui suit, le coefficient de transmission de l'impulsion sonde (t_S) à travers l'objectif est supposé être plus faible que le coefficient de transmission de l'impulsion référence (t_R). La matrice représentative du dichroïsme a pour expression :

$$\underline{D}(t_R, t_S) = \begin{pmatrix} t_R & 0 \\ 0 & t_S \end{pmatrix} = t_R \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 - \zeta \end{pmatrix}, \quad (2.14)$$

avec

$$\zeta = \frac{t_R - t_S}{t_R}, \quad (2.15)$$

comme on suppose $t_S < t_R$, ζ varie entre 0 et 1. Ainsi à un facteur t_R près,

$$\underline{D}(\zeta) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 - \zeta \end{pmatrix}, \quad (2.16)$$

où $\zeta = 0$ traduit l'absence de dichroïsme tandis que $\zeta = 1$ traduit une transmission nulle de l'impulsion sonde.

Le nouveau champ électrique en sortie de l'interféromètre s'exprime par :

$$\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \zeta) = \underline{P}(\theta) \underline{Q}(\phi) \underline{C} \underline{A} \underline{D}(\zeta) \underline{M} \underline{C} \mathbf{E}_{\text{in}}. \quad (2.17)$$

On peut alors montrer que l'intensité arrivant sur le détecteur s'écrit :

$$I_{0,\zeta}(\theta, \phi, \zeta) = \frac{|E_{r0,\zeta}|^2}{4} \left[\left((1 - \zeta) \cos \theta + \sin \theta \right)^2 + \left((1 - \zeta) \cos(\theta - 2\phi) - \sin(\theta - 2\phi) \right)^2 \right]. \quad (2.18)$$

avec $E_{r0,\zeta} = t_R E_{r0} = t_R r_0 E_0$. Pour $\zeta = 0$ on retrouve bien l'équation 2.10.

Par un raisonnement analogue à celui mené à la fin de la partie 2.2.1, on montre que les franges sombres sont situées en :

$$(\theta_0, \phi_0) = \left(\arctan(\zeta - 1) [\pi], \arctan(\zeta - 1) \left[\frac{\pi}{2} \right] \right). \quad (2.19)$$

Pour illustrer l'influence du dichroïsme, différentes cartographies de l'intensité dans l'espace (θ, ϕ) sont présentées sur la figure 2.5 pour des valeurs de ζ variant de 0 à 1 par pas de 0.2. On remarque, en outre, que l'intensité de la frange claire diminue pour des valeurs croissantes de ζ . La présence du dichroïsme dégrade donc le contraste de l'interféromètre.

En conclusion, la différence de transmission à travers l'objectif de microscope entre les deux impulsions a pour effet de dégrader le contraste des interférences et de translater l'ensemble de la cartographie selon la droite définie par $\theta = \phi$ et des angles croissants. Expérimentalement, la valeur de ζ sera déterminée en mesurant la position du minimum d'intensité.

Dans l'hypothèse où le coefficient de transmission t_R de l'impulsion référence à travers l'objectif est plus faible que le coefficient de transmission t_S de l'impulsion sonde, un calcul similaire montre que la cartographie est translaturée par rapport au cas idéal selon la droite $\theta = \phi$ et des angles décroissants.

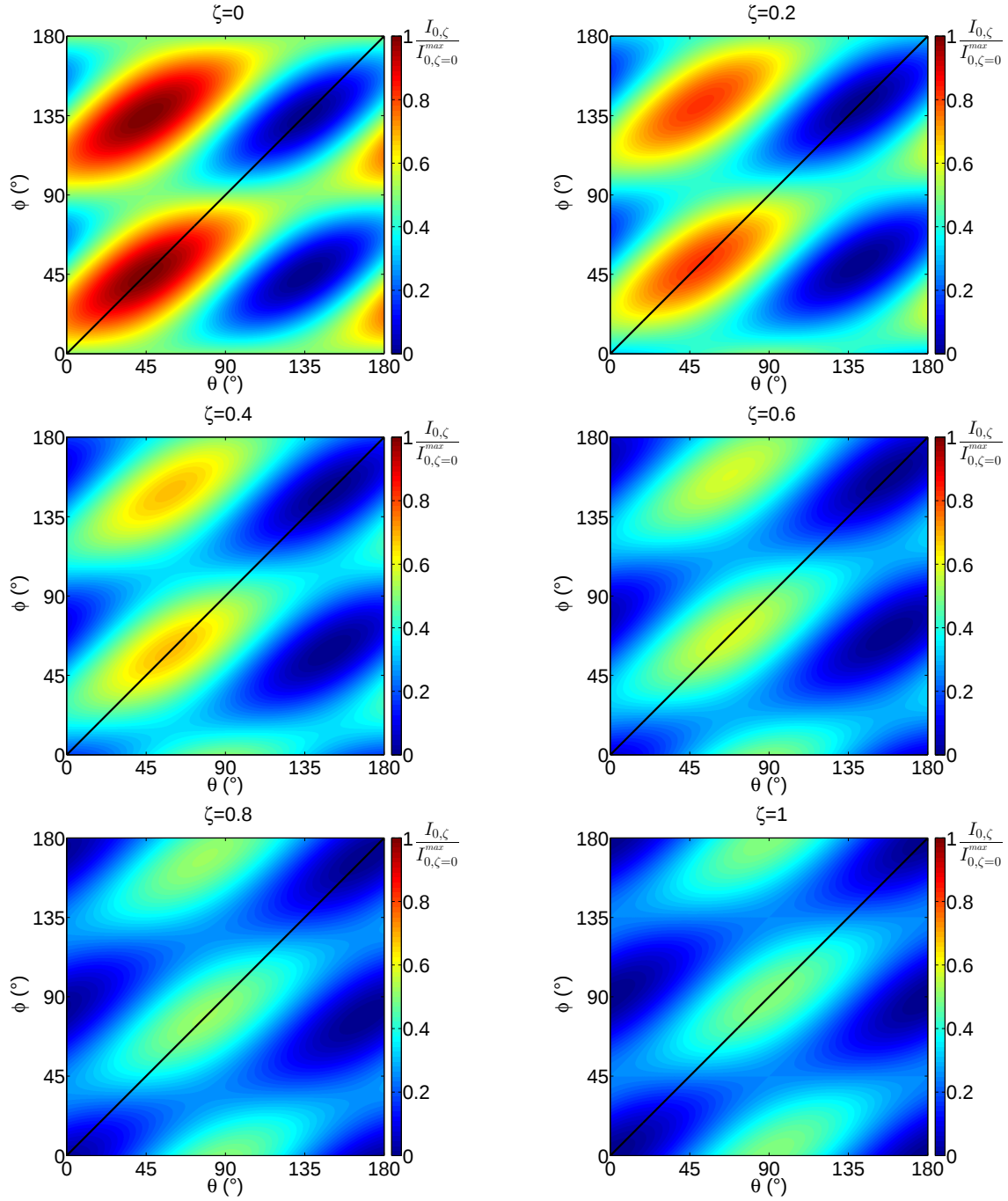


FIGURE 2.5: Cartographie de l'intensité $I_{0,\zeta}$ sans perturbation de l'échantillon en fonction de l'angle du polariseur θ et de l'angle de la lame quart-d'onde ϕ pour différentes valeurs du dichroïsme ζ . Le champ incident est orienté à -45 degrés : $\mathbf{E}_{\text{in}} = E_0 \sqrt{1/2}(1, -1)$. L'intensité est normalisée par rapport à l'intensité d'une frange claire en l'absence de dichroïsme $I_{0,\zeta=0}^{\text{max}}$. La courbe noire représente la droite d'équation $\theta = \phi$.

2.2.2.2 Influence de la différence de chemin optique

Expérimentalement, les impulsions sonde et référence ne traversent pas le cristal de calcite au même endroit lors des trajets aller et retour. L'épaisseur de calcite d_1 traversée lors du trajet aller peut donc être légèrement différente de l'épaisseur d_2 traversée lors du trajet retour. À l'issue du second passage dans le cristal de calcite, la recombinaison temporelle des impulsions sonde et référence sera alors d'autant moins bonne que la différence d'épaisseur $\Delta d = d_2 - d_1$ sera grande. Nous allons regarder l'influence de cet effet sur l'intensité en sortie de l'interféromètre. Dans le formalisme de Jones cela est équivalent à deux matrices $\underline{C}_a$ et $\underline{C}_r$ représentant respectivement le passage aller et le passage retour à travers le cristal telles que :

$$\underline{C}_r = \begin{pmatrix} e^{i2\pi n_f \frac{d_2}{\lambda}} & 0 \\ 0 & e^{i2\pi n_s \frac{d_2}{\lambda}} \end{pmatrix} = \underline{D}_\tau \underbrace{\begin{pmatrix} e^{i2\pi n_f \frac{d_1}{\lambda}} & 0 \\ 0 & e^{i2\pi n_s \frac{d_1}{\lambda}} \end{pmatrix}}_{\underline{C}_a}, \quad (2.20)$$

avec

$$\underline{D}_\tau = \begin{pmatrix} e^{i2\pi n_f \frac{\Delta d}{\lambda}} & 0 \\ 0 & e^{i2\pi n_s \frac{\Delta d}{\lambda}} \end{pmatrix} = e^{i2\pi n_f \frac{\Delta d}{\lambda}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\tau} \end{pmatrix}, \quad (2.21)$$

où $\tau = 2\pi \frac{\Delta d}{\lambda} (n_s - n_f)$ représente le déphasage induit par la différence de chemin optique dans le cristal de calcite.

Le champ électrique en sortie s'écrit donc :

$$\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \tau) = \underline{P}(\theta) \underline{Q}(\phi) \underline{C}_a \underline{D}_\tau \underline{A} \underline{M} \underline{C}_a \mathbf{E}_{\text{in}}. \quad (2.22)$$

L'expression analytique de l'intensité I_0 est calculée à partir de l'équation 2.22 :

$$I_{0,\tau}(\theta, \phi, \tau) = \frac{|E_{r0}|^2}{4} [\cos \theta \cos \tau + \cos(\theta - 2\phi) \sin \tau + \sin \theta]^2 + \frac{|E_{r0}|^2}{4} [\cos(\theta - 2\phi) \cos(\tau) - \cos(\theta) \sin(\tau) - \sin(\theta - 2\phi)]^2. \quad (2.23)$$

À partir de cette dernière expression, on remarque que si $\tau = 0$ on retrouve bien l'expression de l'intensité dans le cas parfait exprimée par l'équation 2.11.

Par une démarche similaire au paragraphe 2.2.1, on montre que les franges sombres sont situées en :

$$(\theta_0, \phi_0) = \left(\arctan \left(\frac{\cos \tau}{\sin \tau - 1} \right) [\pi], \frac{3\pi}{4} \left[\frac{\pi}{2} \right] \right). \quad (2.24)$$

Pour illustrer l'influence de la différence de chemin optique, différentes cartographies de l'intensité dans l'espace (θ, ϕ) sont présentées sur la figure 2.6 pour des valeurs de τ variant de 0 à π par pas de $\pi/8$. Pour $\tau = \pi$, c'est-à-dire une différence de chemin optique égale à $\lambda/2$, les deux impulsions sont en opposition de phase, ce qui explique l'inversion des positions des minima et maxima d'intensité. Pour $\tau = \pi/2$, les deux impulsions sont en quadrature de phase ainsi l'impulsion résultante est circulaire avant de traverser la lame-quart d'onde. Cette dernière transforme toute onde polarisée circulairement en onde polarisée rectilignement. Ainsi, l'onde arrivant sur le polariseur est forcément linéaire, et donc pour tous les angles ϕ on observe un minimum et un maximum d'intensité en tournant le polariseur. En conclusion, la différence de chemin optique entre les deux impulsions a pour effet de translater la frange sombre le long de la droite $\phi = 3\pi/4$ et des angles décroissants.

Il serait possible de prendre en compte l'influence combinée du dichroïsme et la différence de chemin optique. Cependant, comme nous le verrons au chapitre 3, l'influence de la différence de chemin optique est négligeable dans le dispositif expérimental que nous avons développé.

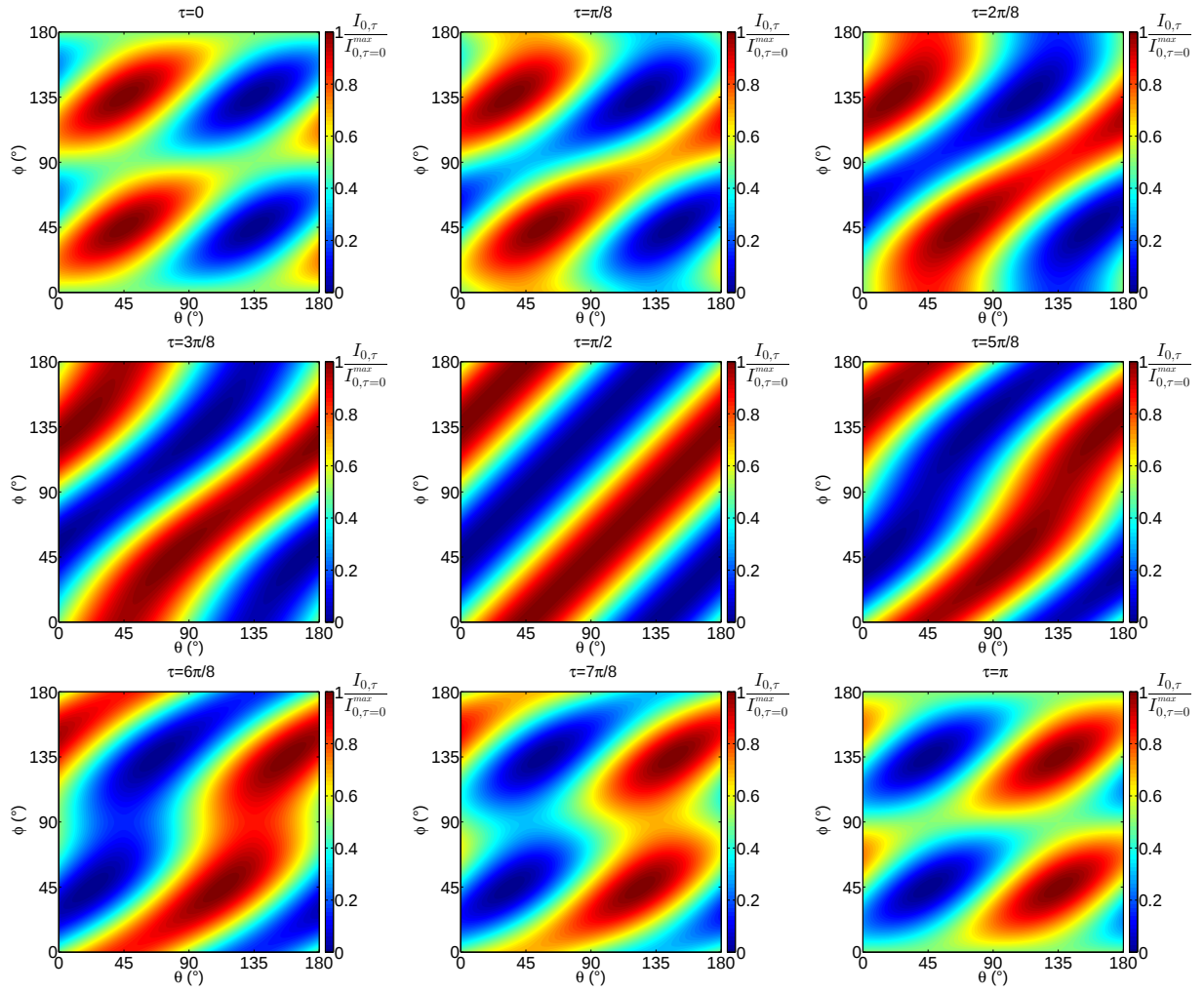


FIGURE 2.6: Cartographie de l'intensité $I_{0,\tau}$ sans perturbation de l'échantillon en fonction de l'angle du polariseur θ et de l'angle de la lame quart-d'onde ϕ pour différentes valeurs de la différence de chemin optique τ . Le champ incident est orienté à -45 degrés : $\mathbf{E}_{\text{in}} = E_0\sqrt{1/2}(1, -1)$. L'intensité est normalisée par rapport à l'intensité d'une frange claire en l'absence de différence de chemin optique $I_{0,\tau=0}^{\text{max}}$.

2.3 Modélisation de l'interféromètre avec perturbation de l'échantillon

Nous allons dans cette partie modéliser l'interféromètre dans le cas d'un échantillon perturbé par une impulsion pompe. Par une analyse de l'expression de la variation de l'intensité autour d'une frange sombre, nous verrons qu'il est possible de mesurer indépendamment la partie réelle et la partie imaginaire du changement de réflectivité entre les impulsions référence et sonde induit par l'impulsion pompe.

2.3.1 Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre idéal

Comme pour le paragraphe précédent, le formalisme de Jones est utilisé pour modéliser l'interféromètre. Le dichroïsme de l'objectif ainsi que la différence de chemin optique sont une nouvelle fois négligés dans un premier temps. Le faisceau pompe perturbe maintenant l'échantillon. De plus, on considère l'énergie de l'impulsion pompe grande par rapport à l'énergie des impulsions sonde et référence venant sonder l'échantillon. Enfin, on fait l'hypothèse que l'échantillon est optiquement isotrope de telle sorte que la réponse optique de l'échantillon est la même quelle que soit la polarisation de l'onde le sondant.

On suppose un champ électrique incident orienté à -45 degrés $\mathbf{E}_{\text{in}} = E_0 \sqrt{1/2}(1, -1)$. Suite à l'absorption de l'impulsion pompe par l'échantillon, une onde acoustique est générée et se propage dans l'échantillon. Les impulsions référence et sonde se réfléchissent sur l'échantillon perturbé à des instants différents, de ce fait, pour un retard pompe-sonde donné, leurs champs électriques sont modifiés différemment au niveau de la surface de l'échantillon. Pour un retard pompe-sonde t , les amplitudes des champs électriques de l'impulsion référence et de l'impulsion sonde perturbés et réfléchis par l'échantillon sont définies respectivement par :

$$\begin{aligned} E_{\text{ref}} &= -\frac{E_{r0}}{\sqrt{2}} [1 + \xi(t)], \\ E_{\text{sonde}} &= \frac{E_{r0}}{\sqrt{2}} [1 + \xi(t + \Delta t)], \end{aligned} \quad (2.25)$$

avec E_{r0} l'amplitude du champ électrique réfléchi non perturbé, $\xi(t)$ la perturbation du champ électrique réfléchi à l'instant t et $\xi(t + \Delta t)$ la perturbation du champ électrique réfléchi à l'instant $t + \Delta t$. L'impulsion référence est polarisée selon l'axe rapide du cristal et l'impulsion sonde est polarisée suivant l'axe lent. Ainsi, la matrice modélisant la réponse de l'échantillon est donnée par :

$$\underline{S}(\xi(t), \xi(t + \Delta t)) = r_0 \begin{pmatrix} -1 - \xi(t) & 0 \\ 0 & 1 + \xi(t + \Delta t) \end{pmatrix}, \quad (2.26)$$

avec Δt le retard temporel entre les deux impulsions fixé par l'épaisseur du cristal biréfringent. Le champ électrique en sortie de l'interféromètre s'écrit donc :

$$\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \xi(t), \xi(t + \Delta t)) = \underline{P}(\theta) \underline{Q}(\phi) \underline{C} \underline{A} \underline{S}(\xi(t), \xi(t + \Delta t)) \underline{C} \mathbf{E}_{\text{in}}. \quad (2.27)$$

En suivant une démarche de calcul similaire à celle présentée dans la partie 2.2, on peut montrer que :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \xi(t), \xi(t + \Delta t)) = & \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \xi(t) = 0, \xi(t + \Delta t) = 0) \\ & - \frac{E_{r0} i e^{i\Phi} e^{i4\pi n_t \frac{d}{\lambda}}}{2} [\Delta \xi(t) F(\theta, \phi) + \xi(t) G(\theta, \phi)] \begin{pmatrix} \cos(\theta) \\ \sin(\theta) \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (2.28)$$

avec

$$\Delta \xi(t) = \xi(t + \Delta t) - \xi(t), \quad (2.29)$$

$$F(\theta, \phi) = \cos \theta + i \cos(2\phi - \theta), \quad (2.30)$$

$$G(\theta, \phi) = \sin \theta + \cos \theta + i [\sin(2\phi - \theta) + \cos(2\phi - \theta)]. \quad (2.31)$$

Afin que la mesure ne dépende que d'une seule inconnue (complexe), on souhaite déterminer les conditions pour que $\mathbf{E}_{\text{out}}$ dépende uniquement de $\Delta \xi(t)$. Ce paramètre traduit la variation de la perturbation ξ entre deux instants séparés de $\Delta t = 3 \text{ ps}$. De ce fait on cherche les couples d'angles (θ, ϕ) pour lesquels la fonction $G(\theta, \phi)$ est nulle c'est-à-dire tels que $\sin \theta + \cos \theta = 0$ et $\sin(2\phi - \theta) + \cos(2\phi - \theta) = 0$. Ces deux équations sont identiques à celles permettant de déterminer les couples d'angles correspondant aux franges sombres (cf. paragraphe 2.2.2). Ainsi, proche d'un minimum d'intensité, c'est-à-dire pour (θ, ϕ) proches de $(3\pi/4 [\pi], 3\pi/4 [\pi/2])$, l'équation 2.28 devient :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t)) &= \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t) = 0) \\ &\quad - \frac{E_{r_0} i e^{i\Phi} e^{i4\pi n_f \frac{d}{\lambda}}}{2} \Delta\xi(t) (\cos\theta + i \cos(\theta - 2\phi)) \begin{pmatrix} \cos\theta \\ \sin\theta \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.32)$$

$$= \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t) = 0) + \Delta\mathbf{E}(t). \quad (2.33)$$

En reprenant l'expression initiale de $\mathbf{E}_{\text{out}}$ de l'équation 2.27, on remarque que l'on peut retrouver le résultat de l'équation 2.33 en réalisant l'approximation [86] :

$$\underline{S}(\xi(t), \xi(t + \Delta t)) \approx \underline{S}(\Delta\xi(t)) = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 + \Delta\xi(t) \end{pmatrix}. \quad (2.34)$$

En utilisant cette approximation pour la matrice de Jones représentant l'échantillon perturbé, on calcule l'intensité en sortie de l'interféromètre :

$$I_{\text{det}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t)) = |\mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t))|^2. \quad (2.35)$$

En injectant l'équation 2.32 dans l'équation 2.35, l'intensité arrivant sur le détecteur a pour expression au premier ordre en $\Delta\xi(t)$:

$$I_{\text{det}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t)) = I(\theta, \phi, \Delta\xi = 0) + 2\text{Re}(\mathbf{E}_{\text{out}} \Delta\mathbf{E}(t)^*), \quad (2.36)$$

où $I(\theta, \phi, \Delta\xi = 0)$ représente l'intensité sans perturbation de l'échantillon définie par $I_{\text{det}}(\theta, \phi, \Delta\xi = 0)$. On définit la variation d'intensité ΔI par :

$$\Delta I(\theta, \phi, \Delta\xi(t)) = I_{\text{det}}(\theta, \phi, \Delta\xi(t)) - I(\theta, \phi, \Delta\xi = 0). \quad (2.37)$$

En utilisant l'équation 2.36, la variation d'intensité devient :

$$\Delta I(\theta, \phi, \Delta\xi(t)) = E_{r0}^2 \left(a(\theta, \phi) \text{Re}(\Delta\xi(t)) + b(\theta, \phi) \text{Im}(\Delta\xi(t)) \right), \quad (2.38)$$

avec

$$\begin{aligned} a(\theta, \phi) &= \frac{1}{2} \left[1 + \cos(2\theta - 2\phi) (\cos 2\phi + \sin 2\phi) \right] \\ b(\theta, \phi) &= -\frac{1}{2} \sin(2\theta - 2\phi), \end{aligned} \quad (2.39)$$

et $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ respectivement la partie réelle et la partie imaginaire de la variation complexe de champ électrique $\Delta\xi(t)$. En définissant les variations des petits angles proches du minimum d'intensité par $\hat{\theta} = \theta - 3\pi/4$ et $\hat{\phi} = \phi - 3\pi/4$, un développement limité autour de ce minimum d'intensité donne l'expression de la variation d'intensité suivante :

$$\Delta I(\hat{\theta}, \hat{\phi}, \Delta\xi(t)) = E_{r0}^2 \left(\hat{\phi} \text{Re}(\Delta\xi(t)) + (\hat{\phi} - \hat{\theta}) \text{Im}(\Delta\xi(t)) \right). \quad (2.40)$$

On voit donc qu'un choix judicieux du couple (θ, ϕ) permet de mesurer indépendamment la partie réelle ou la partie imaginaire de $\Delta\xi(t)$. Lorsque $\hat{\phi} = \hat{\theta}$ et $\hat{\phi} \neq 0$, la variation relative de l'intensité est uniquement sensible à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Ce domaine est défini par la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$. En revanche lorsque $\hat{\phi} = 0$ et $\hat{\theta} \neq 0$, la variation relative de l'intensité est uniquement sensible à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Ce domaine est défini par une droite horizontale passant par le minimum d'intensité.

2.3.2 Lien entre les mesures interférométriques et réflectométriques

Avec cet interféromètre nous souhaitons détecter des ondes acoustiques au travers de mesures de changement de réflectivité d'un échantillon perturbé. Les deux impulsions qui interfèrent sont séparées dans le temps. L'impulsion référence et l'impulsion sonde voient donc l'échantillon à des instants différents. Chaque impulsion transporte l'information sur le changement de réflectivité à l'instant de leur réflexion par l'échantillon. Cependant, dans ce cas-ci, les impulsions référence et sonde se distinguent par une séparation tem-

porelle mais surtout par des polarisations orthogonales. L'effet miroir de l'échantillon a une influence sur la polarisation de l'impulsion référence mais pas sur l'impulsion sonde, comme le montre la matrice de Jones représentative de l'échantillon sans perturbation (cf équation 2.3). Ainsi, en utilisant les résultats du paragraphe 1.1.2.1, l'amplitude de chaque impulsion peut s'exprimer en fonction de l'amplitude ρ et de la phase φ du changement relatif de réflectivité. Après réflexion sur l'échantillon les amplitudes de ces impulsions ont pour expressions :

$$\begin{aligned} E_{\text{ref}} &= -r_0[1 + \rho(t) + i\varphi(t)] \frac{E_0}{\sqrt{2}} \\ E_{\text{sonde}} &= r_0[1 + \rho(t + \Delta t) + i\varphi(t + \Delta t)] \frac{E_0}{\sqrt{2}}. \end{aligned} \quad (2.41)$$

Or, lors du calcul de l'intensité en sortie de l'interféromètre, des champs électriques modifiés par l'échantillon satisfont également les équations 2.25 établies dans le paragraphe précédent. Ainsi par identification on obtient :

$$\begin{aligned} \xi(t) &= \rho(t) + i\varphi(t) \\ \xi(t + \tau) &= \rho(t + \Delta t) + i\varphi(t + \Delta t). \end{aligned} \quad (2.42)$$

En utilisant ce résultat, on a donc $\text{Re}(\Delta\xi(t)) = \rho(t + \tau) - \rho(t)$ et $\text{Im}(\Delta\xi(t)) = \varphi(t + \tau) - \varphi(t)$. Ainsi, $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ peut être assimilée à la variation de l'amplitude du changement de réflectivité (et donc à la partie réelle du changement de réflectivité) alors que $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ représente la variation de phase du changement de réflectivité (c'est-à-dire la partie imaginaire du changement de réflectivité).

La séparation temporelle de 3 ps entre les deux impulsions est faible par rapport à la durée des phénomènes observés, donc l'approximation suivante peut être réalisée :

$$\begin{aligned} \text{Re}(\Delta\xi(t)) &= \Delta t \frac{\rho(t + \Delta t) - \rho(t)}{\Delta t} \approx \Delta t \frac{d\rho(t)}{dt} \\ \text{Im}(\Delta\xi(t)) &= \Delta t \frac{\varphi(t + \Delta t) - \varphi(t)}{\Delta t} \approx \Delta t \frac{d\varphi(t)}{dt}. \end{aligned} \quad (2.43)$$

Ainsi, en utilisant les résultats de l'équation 2.40, lors d'une mesure de la variation de l'intensité indépendante de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ (resp. $\text{Im}(\Delta\xi(t))$), celle-ci est donc proportionnelle à la dérivée temporelle de la phase (resp. amplitude) du changement de réflectivité. Par la suite, les relations 2.43 vont permettre de justifier le bon fonctionnement de l'interféromètre. En effet, afin de vérifier la mesure de la variation d'intensité dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, on comparera la forme des signaux expérimentaux obtenus avec la dérivée temporelle d'un signal expérimental de réflectométrie. La primitive de la mesure de la variation d'intensité dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sera commentée afin de vérifier si sa forme correspond avec les attentes théoriques de la mesure d'un déplacement de surface.

2.3.3 Expression de l'intensité mesurée en sortie de l'interféromètre en présence de biais expérimentaux

2.3.3.1 Influence du dichroïsme de l'objectif de microscope

Maintenant nous allons prendre en compte le dichroïsme de l'objectif dans une mesure interférométrique avec un échantillon perturbé. Comme pour le paragraphe 2.2.2, pour regarder l'influence du dichroïsme on intègre l'équation 2.16 dans 2.27. On obtient :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \zeta, \xi(t), \xi(t + \Delta t)) = & \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \zeta, \xi(t) = 0, \xi(t + \Delta t) = 0) \\ & - \frac{E_{r0,\zeta} i e^{i\Phi} e^{i4\pi n_f \frac{d}{\lambda}}}{2} \left[\Delta\xi(t) F_\zeta(\theta, \phi, \zeta) + \xi(t) G_\zeta(\theta, \phi, \zeta) \right] \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.44)$$

avec ici

$$F_\zeta(\theta, \phi, \zeta) = (1 - \zeta) (\cos \theta + i \cos(2\phi - \theta)), \quad (2.45)$$

$$G_\zeta(\theta, \phi, \zeta) = \sin \theta + (1 - \zeta) \cos \theta + i (\sin(2\phi - \theta) + (1 - \zeta) \cos(2\phi - \theta)). \quad (2.46)$$

Comme expliqué au paragraphe 2.3.1, on souhaite déterminer les conditions pour que $\mathbf{E}_{\text{out}}$ ne dépende que de la seule inconnue complexe $\Delta\xi(t)$ à déterminer. Pour cela on veut

approximer à nouveau la matrice $\underline{S}$ représentant l'échantillon par son expression donnée dans l'équation 2.34 ce qui revient à avoir $G(\theta, \phi, \zeta) = 0$. Cette équation est la même que celle permettant de déterminer les couples d'angles (θ, ϕ) correspondant aux franges sombres (cf. paragraphe 2.2.2.1). Donc pour que la seule inconnue à déterminer soit $\Delta\xi(t)$, il faut se placer à proximité d'une frange sombre comme dans le cas de l'interféromètre idéal.

Ainsi, en se plaçant autour d'une frange sombre, on peut montrer que la variation d'intensité lumineuse ΔI induite par la perturbation peut s'écrire sous la forme :

$$\Delta I(\theta, \phi, \Delta\xi(t), \zeta) = E_{r_0, \zeta}^2 \left[a_\zeta(\theta, \phi) \text{Re}(\Delta\xi(t)) + b_\zeta(\theta, \phi) \text{Im}(\Delta\xi(t)) \right]. \quad (2.47)$$

avec

$$\begin{aligned} a_\zeta(\theta, \phi) &= \frac{1-\zeta}{2} \left(1 + \cos(2\theta - 2\phi) (\cos 2\phi + \sin 2\phi) \right. \\ &\quad \left. - \zeta (1 + \cos(2\theta - 2\phi) \cos 2\phi) \right) \\ b_\zeta(\theta, \phi) &= -\frac{1-\zeta}{2} \sin(2\theta - 2\phi) \end{aligned} \quad (2.48)$$

À partir de cette équation on cherche les domaines de l'espace (θ, ϕ) permettant de mesurer indépendamment $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Une variation d'intensité indépendante de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est obtenue lorsque le terme $b_\zeta(\theta, \phi)$ est nul, c'est-à-dire pour $\theta = \phi$. On retrouve la même condition qu'en l'absence de dichroïsme (cf. paragraphe 2.3.1). En revanche, pour que la variation d'intensité soit indépendante de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, la condition à respecter pour les angles θ et ϕ diffère *a priori* du cas sans dichroïsme discuté au paragraphe 2.3.1 (cf. équation 2.38). En effet, il faut maintenant que $a_\zeta(\theta, \phi)$ soit nul.

En prenant en compte le dichroïsme, la frange sombre se situe au couple d'angle $(\theta_0, \phi_0) = (\arctan(\zeta - 1), \arctan(\zeta - 1))$ (cf. paragraphe 2.2.2.1). Les variations d'angles autour de la frange sombre sont définies par $\hat{\theta} = \theta - \theta_0$ et $\hat{\phi} = \phi - \phi_0$. Le développement limité au premier ordre en $\hat{\theta}$ et en $\hat{\phi}$ de l'expression de $a_\zeta(\theta, \phi)$ conduit à la condition suivante :

$$(1 - \zeta)(1 + \cos 2\phi_0) + \sin 2\phi_0 + 2\hat{\phi}(\cos 2\phi_0 - (1 - \zeta)\sin 2\phi_0) = 0. \quad (2.49)$$

On remarque que cette équation est indépendante de $\hat{\theta}$, donc cette équation définit une droite horizontale dans l'espace $(\hat{\theta}, \hat{\phi})$. L'équation de la droite est donnée par :

$$\hat{\phi} = \frac{1}{2} \frac{(1 - \zeta)(1 + \cos 2\phi_0) + \sin 2\phi_0}{(1 - \zeta)\sin 2\phi_0 - \cos 2\phi_0}. \quad (2.50)$$

En utilisant l'expression de ϕ_0 donnée par l'équation 2.19 et les relations trigonométriques $\cos(\arctan x) = 1/\sqrt{1+x^2}$ et $\sin(\arctan x) = x/\sqrt{1+x^2}$, on trouve que le terme de droite de l'équation 2.50 est nul. Ainsi la variation d'intensité est indépendante de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ le long de la droite définie par $\hat{\phi} = 0$. La condition est identique au cas de l'objectif sans dichroïsme, excepté le fait que la frange sombre s'est déplacée.

2.3.3.2 Influence de la différence de chemin optique

Regardons ce qu'il se passe en tenant compte de la différence de chemin optique entre les trajets aller et retour des impulsions référence et sonde à l'intérieur du cristal biréfringent. Le dichroïsme est donc ici négligé. Le champ électrique en sortie de l'interféromètre a pour expression :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \tau, \xi(t), \xi(t + \Delta t)) = & \mathbf{E}_{\text{out}}(\theta, \phi, \tau, \xi(t) = 0, \xi(t + \Delta t) = 0) \\ & - \frac{E_{r0}}{2} e^{2i\pi(n_s - n_f)\frac{d_1}{\lambda}} e^{2i\pi n_f \frac{d_1 + d_2}{\lambda}} e^{i\tau} \\ & \times \begin{bmatrix} \Delta\xi(t)F_\tau(\theta, \phi, \tau) + \xi(t)G_\tau(\theta, \phi, \tau) \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (2.51)$$

avec

$$F_\tau(\theta, \phi, \tau) = (\cos(\tau) + i \sin(\tau)) (\cos(\theta) + i \cos(\theta + 2\phi)), \quad (2.52)$$

$$G_\tau(\theta, \phi, \tau) = \sin(\theta) + \cos(\tau) \cos(\theta) + \sin(\tau) \cos(2\phi - \theta) \\ + i [\sin(2\phi - \theta) + \cos(\tau) \cos(2\phi - \theta) - \sin(\tau) \cos(\theta)]. \quad (2.53)$$

On souhaite de nouveau déterminer les conditions pour que le champ électrique $\mathbf{E}_{\text{out}}$ ne dépende que de $\Delta\xi(t)$. Cela revient à avoir $G_\tau(\theta, \phi, \tau) = 0$. Cette équation est la même que celle permettant de déterminer les couples d'angles (θ, ϕ) correspondant aux franges sombres (cf. paragraphe 2.2.2.2). Donc, comme dans le cas de l'interféromètre idéal, il faut se placer autour d'une frange sombre pour que la seule inconnue à déterminer soit $\Delta\xi(t)$.

Sous cette hypothèse, on obtient pour la variation d'intensité induite par la perturbation l'expression suivante :

$$\Delta I(\theta, \phi, \Delta\xi(t), \tau) = E_{r_0}^2 \left(\text{Re}(\Delta\xi(t)) a_\tau(\theta, \phi) + b_\tau(\theta, \phi) \text{Im}(\Delta\xi(t)) \right). \quad (2.54)$$

avec

$$a_\tau(\theta, \phi, \tau) = \cos \tau [\alpha(\theta, \phi, \tau) \cos \theta + \beta(\theta, \phi, \tau) \cos(\theta - 2\phi)] \\ - \sin \tau [\beta(\theta, \phi, \tau) \cos \theta - \alpha(\theta, \phi, \tau) \cos(\theta - 2\phi)] \quad (2.55)$$

$$b_\tau(\theta, \phi, \tau) = \cos \tau [\alpha(\theta, \phi, \tau) \cos(\theta - 2\phi) - \beta(\theta, \phi, \tau) \cos \theta] \\ - \sin \tau [\alpha(\theta, \phi, \tau) \cos \theta + \beta(\theta, \phi, \tau) \cos(\theta - 2\phi)] \quad (2.56)$$

et

$$\alpha(\theta, \phi, \tau) = \cos \theta \cos \tau + \cos(\theta - 2\phi) \sin \tau + \sin \theta, \quad (2.57)$$

$$\beta(\theta, \phi, \tau) = \cos(\theta - 2\phi) \cos \tau - \cos \theta \sin \tau - \sin(\theta - 2\phi). \quad (2.58)$$

La représentation graphique de cette équation nous donne les domaines de mesures définis sur la figure 2.7. La courbe noire (représentant le domaine où la variation d'intensité

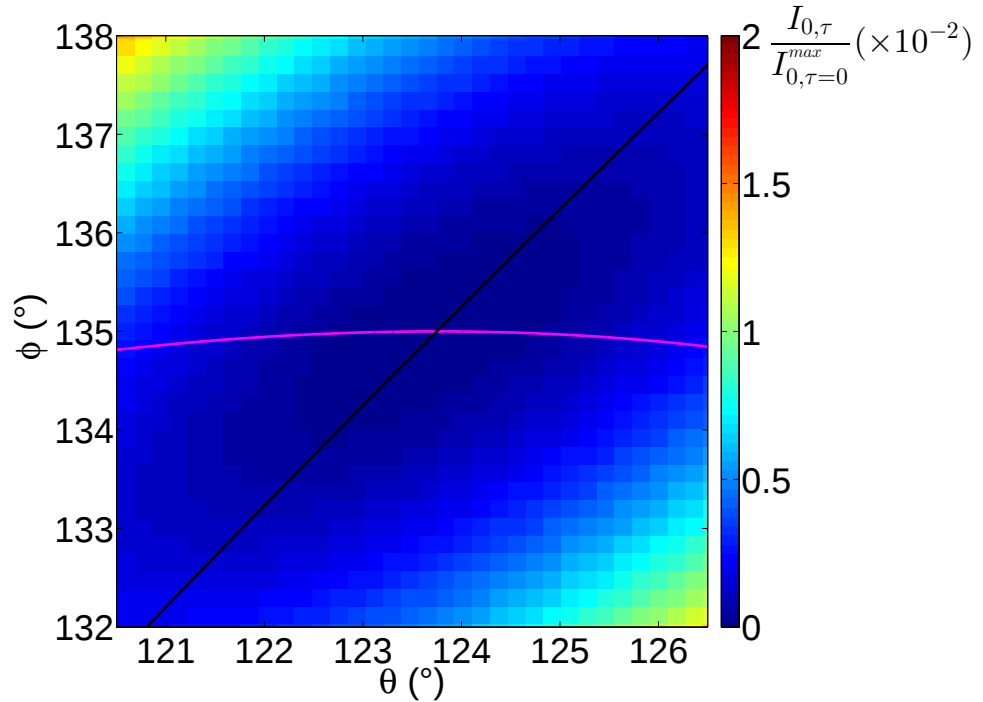


FIGURE 2.7: Représentation de domaines où la variation d'intensité est uniquement sensible à la partie réelle et imaginaire de $\Delta\xi$, autour de la frange sombre pour une différence de chemin optique égale à $\tau = \pi/8$. La courbe noire représente le domaine où la variation d'intensité est uniquement sensible à $\text{Re}(\Delta\xi)$. La courbe magenta représente le domaine où la variation d'intensité est uniquement sensible à $\text{Im}(\Delta\xi)$.

est uniquement sensible à la partie réelle de $\Delta\xi$) n'est plus une droite alors qu'elle l'était dans le cas où ζ et τ étaient négligés. De même, à proximité de la frange sombre, la courbe magenta (représentant le domaine où la variation d'intensité est uniquement sensible à $\text{Im}(\Delta\xi)$) n'est plus une droite horizontale dans l'espace (θ, ϕ) .

Il est possible de prendre en compte l'influence du dichroïsme et de la différence de chemin optique dans le cas d'un échantillon perturbé. Cependant, comme nous l'avons expliqué dans le cas sans perturbation, cette différence de chemin optique sera par la suite négligée.

2.4 Conclusion

Nous avons présenté une modélisation de l'interféromètre, à l'aide du formalisme de Jones, afin d'expliciter sa capacité à mesurer un signal qui dépend uniquement de la variation d'amplitude ou de la variation de la phase du coefficient de réflectivité. Pour réaliser

ces mesures, nous avons vu qu'il fallait orienter la lame quart-d'onde et le polariseur de manière à avoir une intensité proche du minimum afin d'obtenir une séparation complète des variables. L'interféromètre est également entièrement passif, aucun asservissement n'est requis pour son fonctionnement. Cependant, le décalage temporel des impulsions induit un filtrage fréquentiel des mesures.

Une étude a également été réalisée en prenant en compte les imperfections de l'objectif via le dichroïsme, et celles du cristal biréfringent en tenant compte de la différence de chemin optique entre les trajets aller et retour des impulsions référence et sonde à travers le cristal. Nous avons pu voir que le dichroïsme a pour conséquence de translater la position du minimum d'intensité de l'interféromètre mais cela ne change en rien le principe de fonctionnement de l'interféromètre. La même conclusion peut être faite en ce qui concerne la prise en compte de la différence de chemin optique à travers le cristal biréfringent.

Nous allons à présent caractériser expérimentalement l'interféromètre, d'abord sans perturbation de l'échantillon. Puis nous présenterons des mesures de réflectivité transitoire d'échantillons perturbés.

Détection interférométrique d'ondes acoustiques en acoustique picoseconde

Sommaire

3.1	Caractérisation expérimentale de l'interféromètre	78
3.1.1	Minimisation du biais induit par la différence de chemin optique	78
3.1.2	Caractérisation expérimentale du dichroïsme de l'objectif de microscope	80
3.2	Mesure interférométrique sur un film mince métallique . . .	82
3.2.1	Description de l'échantillon et du protocole expérimental	82
3.2.2	Mesure interférométrique du changement de réflectivité de l'échantillon de tungstène	84
3.2.3	Détermination expérimentale des domaines de mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$	87
3.2.4	Quantification de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et $\text{Im}(\Delta\xi(t))$	97
3.2.5	Conclusion	98
3.3	Mesure interférométrique d'oscillations Brillouin dans la silice	100
3.3.1	Détection de la contribution des oscillations Brillouin à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$	101
3.3.2	Détection de la contribution des oscillations Brillouin à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$	102

3.3.3	Cartographie d'oscillations Brillouin	107
3.4	Perspectives	108
3.5	Conclusion	109

The Imitation Game - A. Turing

Sometimes it is the people who no one can imagine anything of, who do the things that no one can imagine.

Une modélisation de l'interféromètre a été réalisée dans le chapitre précédent. Dans ce dernier chapitre nous présentons dans un premier temps la caractérisation expérimentale du montage interférométrique. Pour cela nous analysons l'influence de la différence de chemin optique entre les trajets aller et retour dans le cristal de calcite puis nous déterminons l'effet du dichroïsme de l'objectif.

Dans un second temps nous illustrons les potentialités de l'interféromètre au travers de deux exemples avec tout d'abord la détection interférométrique d'échos acoustiques à la surface libre d'une couche mince de tungstène. La seconde illustration porte sur la détection de l'onde acoustique dans un milieu faiblement absorbant au travers des oscillations Brillouin. Pour ces deux exemples, nous comparons les mesures interférométriques aux mesures de réflectométrie introduites au chapitre 1 sur ces mêmes systèmes. Notre analyse s'appuie également sur la modélisation de l'interféromètre développée au chapitre 2.

Nous terminons le chapitre en analysant les performances de cet interféromètre et en indiquant les perspectives ouvertes par ce travail.

3.1 Caractérisation expérimentale de l'interféromètre

Dans le chapitre 2, nous avons mis en évidence deux biais expérimentaux pouvant influencer la position du minimum d'intensité. Nous avons d'abord analysé l'influence de l'effet du dichroïsme de l'objectif de microscope. Puis nous avons regardé l'influence de la différence de chemin optique entre les impulsions référence et sonde lors des trajets aller et retour. Nous allons d'abord montrer qu'il est possible de s'affranchir du deuxième biais. Nous expliquerons ensuite comment quantifier expérimentalement le dichroïsme de l'objectif de microscope.

3.1.1 Minimisation du biais induit par la différence de chemin optique

En l'absence de l'impulsion pompe, l'étude du déphasage τ induit par cette différence de chemin optique a permis de conclure que la position de la frange sombre évolue en fonction de la valeur de τ . Nous avons constaté que cette frange sombre se déplace le long d'une droite horizontale dans le plan décrit par l'angle du polariseur θ et l'angle de la lame quart-d'onde ϕ . Ainsi, pour un champ électrique orienté à -45° par rapport à l'axe rapide du cristal et un déphasage nul $\tau = 0$ la frange sombre est définie par les coordonnées $(\theta, \phi) = (135^\circ, 135^\circ)$. Alors que pour un déphasage $\tau = \pi$, elle est située aux coordonnées $(\theta, \phi) = (45^\circ, 135^\circ)$ (cf. figure 2.6).

Cette analyse théorique a été réalisée en négligeant le dichroïsme de l'objectif. Du point de vue expérimental, cela revient à effectuer l'étude sans objectif de microscope. Ainsi la localisation de la position de la frange sombre dans le plan (θ, ϕ) permet de déterminer la valeur du déphasage induit par la différence de chemin optique. Cependant, cette valeur peut également être identifiée en maintenant l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde à $(\theta, \phi) = (135^\circ, 135^\circ)$ et en mesurant l'intensité en sortie de l'interféromètre. En effet, pour des orientations du polariseur et de la lame quart-d'onde fixes, l'intensité arrivant sur le détecteur varie en fonction de la valeur de τ . Or, lors de la modélisation de l'interféromètre, nous avons aussi précisé que seule la propagation à travers le cristal de calcite est responsable de la différence de chemin optique entre les trajets aller et retour. De ce fait, nous pouvons modifier la valeur du déphasage τ en

ajustant la position angulaire du cristal par rapport à l'axe de propagation. Nous pouvons donc suivre l'évolution de la valeur de τ pendant la rotation du cristal de calcite en fixant l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde à $(\theta, \phi) = (135^\circ, 135^\circ)$.

En effet, les impulsions référence et sonde ne traversent pas le cristal de calcite au même endroit lors des trajets aller et retour. L'épaisseur traversée peut être légèrement différente entre ces deux trajets à cause du non parallélisme du cristal ou d'un angle d'incidence différent à l'aller et au retour. Supposons que l'épaisseur d_1 du trajet aller est inférieure à l'épaisseur d_2 du trajet retour. Ceci est illustré sur la figure 3.1(a). Alors nous pouvons égaliser l'épaisseur d traversée lors des deux trajets (figure 3.1(b)) en tournant le cristal de calcite. Quand les deux trajets optiques sont égaux, le déphasage τ est nul et donc pour un couple d'angle (θ, ϕ) fixé à $(135^\circ, 135^\circ)$ cela se traduit par une intensité nulle en sortie de l'interféromètre. En réalisant ce réglage, nous nous affranchissons alors de la différence de chemin optique.

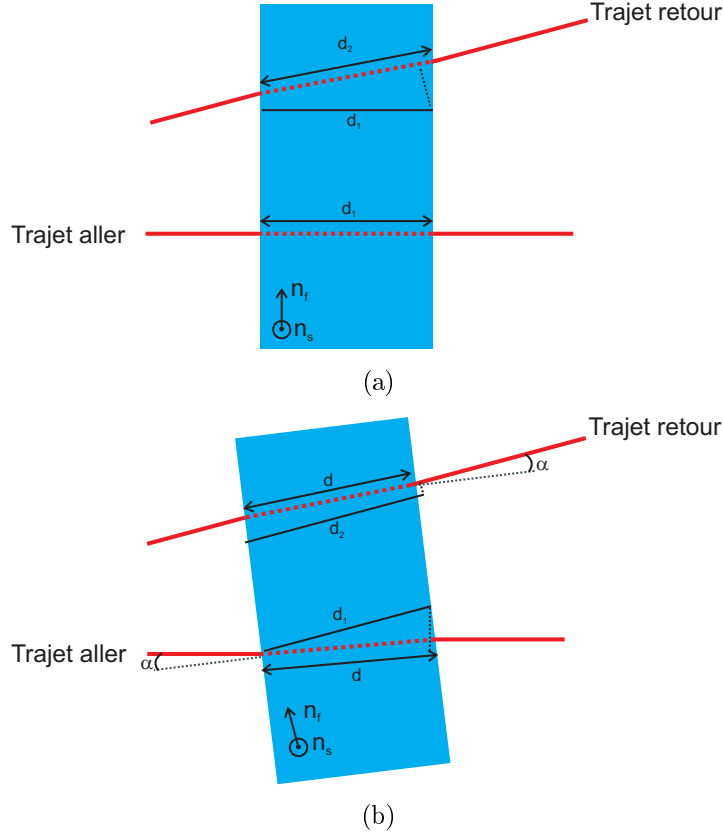


FIGURE 3.1: Principe du positionnement du cristal de calcite pour minimiser la différence de chemin optique. (a) Le chemin optique parcouru par le trajet aller d_1 est plus faible que celui effectué par le trajet retour d_2 . (b) En tournant le cristal, le chemin optique du trajet aller est augmenté tandis que celui du trajet retour est diminué. En tournant suffisamment le cristal, les deux trajets optiques s'égalisent. La différence de chemin optique est nulle.

3.1.2 Caractérisation expérimentale du dichroïsme de l'objectif de microscope

Le cristal de calcite est maintenant réglé de manière à pouvoir négliger la différence de chemin optique. Nous devons à présent quantifier le dichroïsme de l'objectif de microscope. Nous allons présenter ici des résultats obtenus en utilisant un objectif de microscope $\times 10$. Dans le chapitre 2, en l'absence de perturbation de l'échantillon, nous avons conclu que le dichroïsme de l'objectif de microscope a pour effet de translater la frange sombre le long de la droite d'équation $\theta = \phi$. Nous allons à présent déterminer expérimentalement la position de cette frange en ajoutant l'objectif de microscope.

Nous repérons le minimum d'intensité en sortie de l'interféromètre en changeant l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde. Puis nous réalisons une cartographie d'in-

tensité autour de cette valeur. Cela est présenté sur la figure 3.2. La cartographie parcourt un domaine d'angle large de 44° pour le polariseur et pour la lame quart-d'onde, par pas de 2° . L'intensité est normalisée par rapport à l'intensité de la frange claire. Sur la figure 3.2 nous avons superposé les lignes de niveau de l'intensité calculée pour $\tau = 0$. Elles sont représentées par les « ellipses » noires. Nous remarquons que la cartographie d'intensité se superpose aux lignes de niveau. Par comparaison, pour des valeurs de $\tau \neq 0$, les lignes de niveaux d'intensité (cf. figure 2.6) ne sont pas de forme « elliptique ». Donc nous avons effectivement réussi à rendre négligeable l'effet de la différence de chemin optique dans nos mesures.

Une analyse fine de la cartographie montre que le minimum d'intensité se trouve décalé par rapport à la cartographie théorique sans dichroïsme. La position de ce minimum est donnée par le couple d'angle $(\theta, \phi) = (137^\circ, 137^\circ)$ soit un décalage de $+2^\circ$ dans les deux directions angulaires. Ce minimum est représenté par le carré magenta sur la figure 3.2. Ainsi à partir de l'équation 2.19, nous déduisons une valeur de la différence de transmission totale environ égale à $\zeta \approx 7\%$.

Lors des expériences présentées dans la suite du manuscrit, nous utilisons un objectif de microscope $\times 20$. En effet, les mesures interférométriques réalisées avec l'objectif de microscope $\times 10$ (Nikon LU Plan Fluor) ont un rapport signal-sur-bruit relativement faible car la fluence de l'impulsion pompe n'est pas suffisante. Le même type de cartographie a été réalisé avec ce nouvel objectif sur des domaines plus petits. Dans ce cas-ci, nous avons pu remarquer que les contours d'intensité sont toujours de forme « elliptique » à proximité de la frange sombre. De plus, nous avons également déterminé la position de cette dernière. Avec ce nouvel objectif de microscope, nous obtenons un décalage de $+3^\circ$ dans les deux directions angulaires ce qui équivaut à une valeur de dichroïsme de $\zeta \approx 10\%$.

En conclusion, nous avons réglé le cristal de calcite afin de négliger la différence de chemin optique. Nous avons également déterminé expérimentalement la valeur du paramètre caractérisant le dichroïsme de l'objectif de microscope utilisé dans la suite des expériences. Dans le chapitre 2, nous avons constaté que le fonctionnement de l'interféromètre n'est pas modifié par la prise en compte du dichroïsme de l'objectif de microscope par rapport au cas où le dichroïsme est négligé. C'est-à-dire qu'en présence de l'objectif de microscope il faut également se placer sur la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$ (resp. $\hat{\theta} = \hat{\phi}$) pour mesurer

$\text{Im}(\Delta\xi(t))$ (resp. $\text{Re}(\Delta\xi(t))$). De ce fait dans un souci de simplification, les descriptions de mesures expérimentales à venir se feront de manière à se ramener à un interféromètre idéal. Pour cela, nous décalons toutes les valeurs angulaires expérimentales de l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde de -3° . Avec cette correction, les coordonnées de la frange sombre sont donc dans la suite du manuscrit égales à $(\theta, \phi) = (135^\circ, 135^\circ)$.

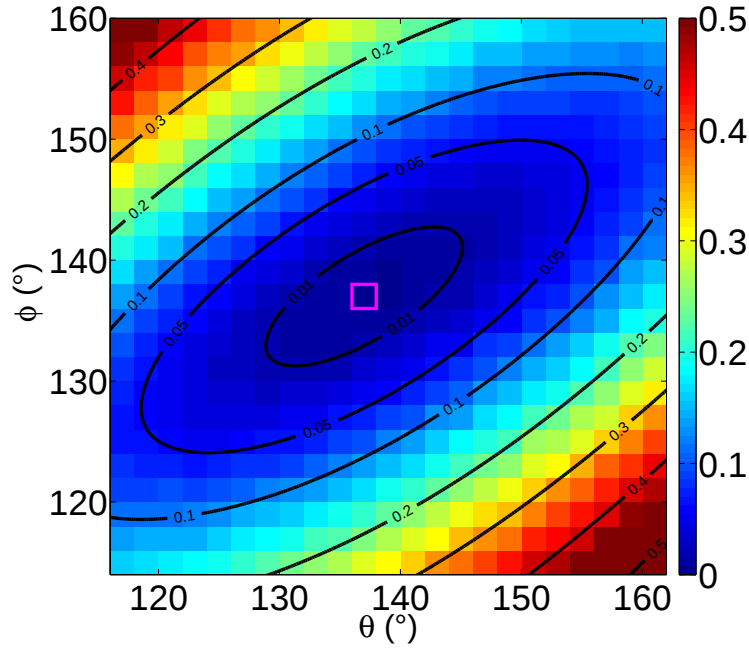


FIGURE 3.2: Cartographie expérimentale de l'intensité en sortie de l'interféromètre sans perturbation de l'échantillon autour d'une frange sombre en utilisant un objectif de microscope $\times 10$. Les lignes de niveaux représentent l'intensité théorique en négligeant la différence de chemin optique. Le minimum d'intensité est représenté par le carré magenta.

3.2 Mesure interférométrique sur un film mince métallique

3.2.1 Description de l'échantillon et du protocole expérimental

Pour effectuer les mesures interférométriques sur un film métallique, nous avons choisi d'utiliser l'échantillon décrit au paragraphe 1.2.3. L'échantillon est constitué d'une couche métallique de tungstène déposée sur un substrat de silicium d'environ $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. L'énergie de l'impulsion pompe au niveau de l'échantillon est de $1\ \text{nJ}$. Les impulsions

référence et sonde ont chacune une énergie de 0.25 nJ au niveau de l'échantillon. Un objectif de microscope $\times 20$ (Nikon LU Plan Fluor) focalise l'impulsion pompe ainsi que les impulsions référence et sonde sur l'échantillon. Les signaux enregistrés résultent d'un moyennage de 4 000 mesures. La structure de l'échantillon est rappelée sur la figure 3.3.

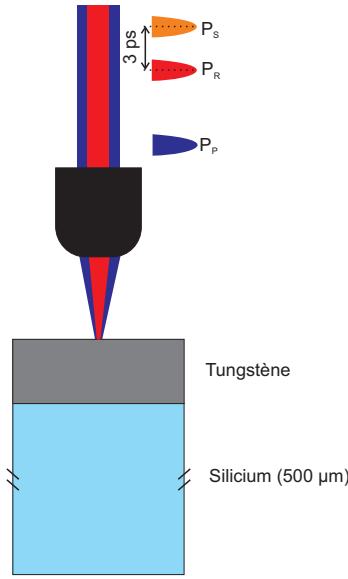


FIGURE 3.3: Représentation de l'échantillon étudié. Une couche de tungstène est déposée sur un substrat de silicium de 500 µm. Le faisceau pompe est focalisé puis absorbé par le film de tungstène. Cette perturbation génère des ondes acoustiques. Les impulsions référence et sonde sont focalisées sur l'échantillon par le même objectif de microscope. Les deux impulsions viennent sonder le changement de réflectivité causé par la perturbation de la pompe.

Deux mesures interférométriques sont détaillées : une mesure le long de la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$ et une seconde le long de la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ (cf. paragraphe 2.3.1). Nous analyserons la forme des échos acoustiques détectés par ces mesures interférométriques en utilisant les résultats du paragraphe 2.3.2 ainsi que les mesures de réflectométrie introduites dans le chapitre 1. Nous montrerons qu'une des mesures dépend uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ tandis que l'autre dépend uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

3.2.2 Mesure interférométrique du changement de réflectivité de l'échantillon de tungstène

3.2.2.1 Présentation des mesures interférométriques

Nous avons effectué une mesure interférométrique sur chacun des domaines, à savoir la droite où la mesure est sensible à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ et la droite où la mesure est dépendante de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. La première est réalisée pour un couple $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (2^\circ, 0)$ (point bleu sur la figure 3.4(a)). La seconde est quant à elle effectuée pour un couple $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (4^\circ, 4^\circ)$ (point rouge sur cette même figure). Les réponses temporelles issues de ces deux mesures sont présentées sur la figure 3.4(b). La courbe bleue représente la mesure réalisée sur la droite $\hat{\phi} = 0$ et la courbe rouge correspond à la mesure effectuée sur la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$.

En insert de la figure, nous pouvons voir la contribution acoustique pour les deux mesures après retrait de la décroissance thermique afin de visualiser les échos acoustiques. La moyenne du temps entre deux échos acoustiques est $\Delta t_W = 107$ ps, ce qui est en accord avec les résultats ($\Delta t_W = 107,6$ ps) du chapitre 1.

3.2.2.2 Analyse des mesures interférométriques

Nous avons établi une relation entre la variable complexe $\Delta\xi(t)$ et le changement de réflectivité à travers l'équation 2.43. Il est montré que $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ (resp. $\text{Im}(\Delta\xi(t))$) est proportionnel à la dérivée temporelle de la variation de l'amplitude (resp. de la variation de la phase) du changement de réflectivité. Nous allons utiliser ces relations de l'équation 2.43 afin de vérifier que les mesures expérimentales de la variation d'intensité, supposée ne dépendre que de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$, sont cohérentes avec les relations théoriques prévues par l'équation 2.43. La détermination expérimentale des domaines où l'intensité dépend de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sera réalisée dans le paragraphe suivant.

Nous comparons alors la forme d'un écho acoustique issu d'une mesure interférométrique à la forme d'un écho acoustique issu d'une mesure réflectométrique. Pour réaliser cette étude, nous faisons le choix d'isoler le premier écho acoustique de chaque mesure, puisque le premier écho issu d'une mesure interférométrique est celui possédant le plus grand rapport signal-sur-bruit. D'abord, sur la figure 3.5(a) nous comparons le premier écho issu de la mesure interférométrique réalisée sur la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ supposée

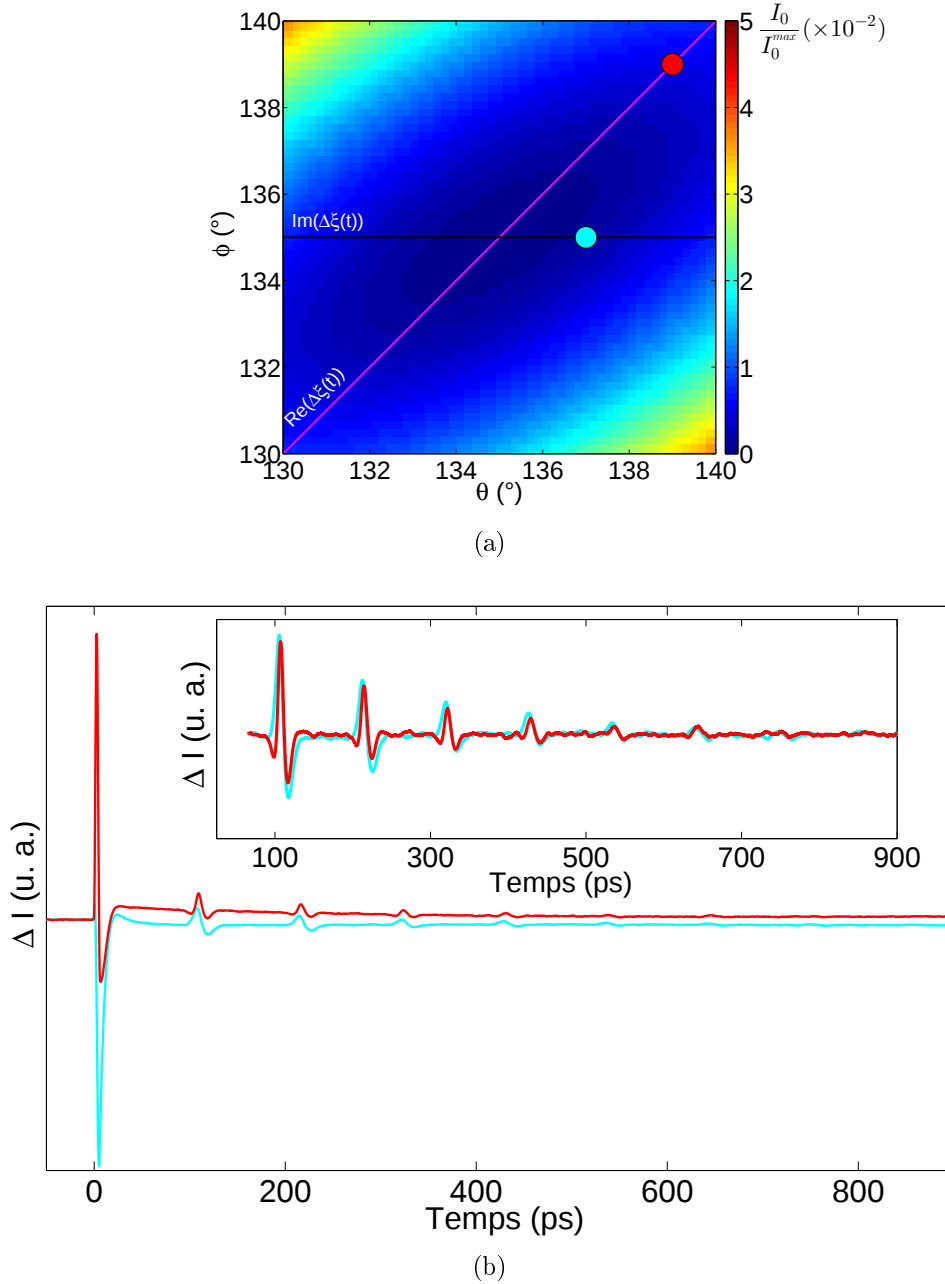
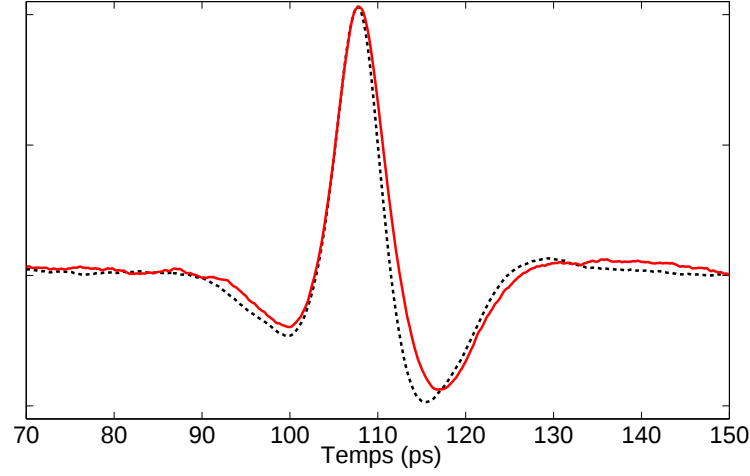
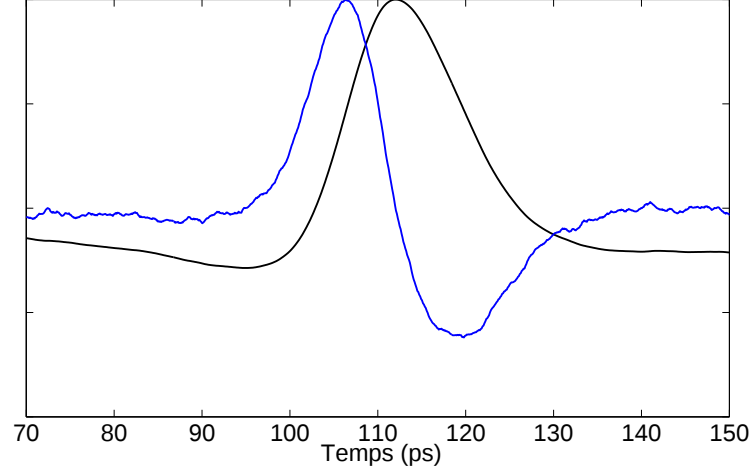


FIGURE 3.4: (a) Cartographie de l'intensité sans perturbation pour des points de fonctionnement (θ, ϕ) proche de la frange sombre. La droite magenta correspond au domaine où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, la droite noire au domaine où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Les points bleu et rouge symbolisent les deux couples d'angles (θ, ϕ) pour lesquels les mesures ont été réalisées. (b) Réponse transitoire de l'échantillon de tungstène obtenue par une mesure interférométrique. La courbe rouge correspond à la mesure dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et la courbe bleue à la mesure dépendant de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Les contributions acoustiques des deux mesures sont mises en évidence en insert.



(a)



(b)

FIGURE 3.5: (a) *Superposition du premier écho acoustique de la mesure dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, en trait continu rouge, et de la dérivée temporelle du signal réflectométrique, en trait discontinu noir. Les amplitudes sont normalisées.* (b) *Superposition du premier écho acoustique de la mesure dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$, en trait continu bleu, et de la primitive de cet écho en trait continu noir. Les amplitudes des deux courbes sont normalisées.*

dépendre uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ (trait continu rouge) à la dérivée temporelle du premier écho du signal mesuré en réflectométrie (trait discontinu noir) présenté initialement sur la figure 1.8. Dans un souci de simplification, les amplitudes des signaux sont normalisées. La superposition de ces deux échos est presque parfaite. La différence de largeur peut provenir du filtrage passe-bas des échos induit par le décalage temporel de 3 ps entre les impulsions référence et sonde. Ainsi, pour le film de tungstène, la mesure interféro-

métrique est semblable à la dérivée temporelle du signal réflectométrique et donc à la dérivée temporelle de la variation d'amplitude du coefficient de réflectivité. Nous pouvons en conclure que la mesure interférométrique effectuée sur la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ pour le couple d'angle $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (4^\circ, 4^\circ)$ dépend uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

Nous allons à présent analyser la mesure interférométrique effectuée sur la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$. À partir de l'équation 2.43, nous remarquons que la primitive de la mesure interférométrique est proportionnelle à la phase du changement de réflectivité et donc au déplacement de surface dans le cas d'une couche mince fortement absorbante. Nous pouvons voir sur la figure 3.5(b), en trait continu bleu, la mesure interférométrique effectuée le long de la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$ et en trait continu noir la primitive du premier écho acoustique de cette mesure interférométrique. Les amplitudes sont normalisées afin de faciliter la comparaison. Nous remarquons que la forme de la primitive du signal interférométrique est unipolaire, cela est parfaitement cohérent avec la signature temporelle du déplacement de surface normal d'une surface libre [68, 70, 95]. Donc, la mesure interférométrique réalisée sur la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$ est bien uniquement sensible à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.

À travers ces mesures, nous avons réussi à montrer qu'il est possible d'effectuer une mesure dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ en changeant seulement l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde. Nous allons maintenant expliciter la caractérisation expérimentale de ces domaines.

3.2.3 Détermination expérimentale des domaines de mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$

Nous venons de montrer deux mesures interférométriques sur une couche mince métallique. Nous avons vérifié que ces mesures sont effectivement réalisées pour des points de fonctionnement (θ, ϕ) où la variation d'intensité dépend uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Nous allons maintenant présenter la détermination expérimentale de ces deux domaines.

Au travers de l'analyse des signaux interférométriques du paragraphe précédent, nous remarquons que la forme d'un écho acoustique mesuré sur la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$ (cf.

figure 3.5(a)) est différente de celle d'un écho issu de la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ (cf. figure 3.5(b)). Nous pouvons définir expérimentalement ces deux domaines par comparaison de la forme des échos acoustiques issus de différents signaux mesurés autour de la frange sombre. En effet, les seuls échos qui ont une forme identique sont les signaux mesurés sur chacune des deux droites où la variation d'intensité est sensible à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Hors de ces domaines, la mesure interférométrique est une combinaison des parties réelle et imaginaire de $\Delta\xi(t)$. Nous allons alors effectuer une cartographie de mesures interférométriques à proximité de la frange sombre et comparer la forme des échos acoustiques. Afin d'étudier la ressemblance de la forme d'un écho avec un autre nous calculons le coefficient de corrélation entre ces deux échos. Le coefficient de corrélation r_p normalisé est défini par :

$$r_p = \frac{\langle x(t), y(t) \rangle}{\sqrt{\langle x(t), x(t) \rangle} \sqrt{\langle y(t), y(t) \rangle}}, \quad (3.1)$$

avec

$$\langle x(t), y(t) \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} x(t)y(t)dt, \quad (3.2)$$

et $x(t)$ et $y(t)$ les deux échos acoustiques considérés. Le coefficient de corrélation est normalisé car nous nous intéressons, pour la détermination des domaines, seulement à la forme des signaux et non à leur amplitude. Le coefficient de corrélation r_p est compris entre -1 et 1 . Deux signaux ayant une forme similaire ont un coefficient de corrélation proche de 1 . Il sera proche de -1 si les signaux diffèrent seulement par leur signe. Deux signaux ayant une forme différente ont un coefficient de corrélation différent de 1 . Ainsi, afin de s'affranchir du changement de signe éventuel entre deux échos acoustiques, nous regarderons par la suite la valeur absolue du coefficient de corrélation. Dans notre cas, par exemple, la valeur absolue du coefficient de corrélation entre deux mesures issues de la droite $\hat{\phi} = 0$ doit être proche de 1 , tandis que le coefficient de corrélation entre un signal issu de $\hat{\phi} = 0$ et un signal issu de $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ doit être faible car leur forme est différente.

Nous réalisons une cartographie de mesures interférométriques pour des couples (θ, ϕ) très proches de la frange sombre. Pour cela nous commençons par repérer précisément la position de la frange sombre, puis nous changeons l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde. L'angle du polariseur (resp. de la lame quart-d'onde) varie entre $\hat{\theta} = 0$

et $\hat{\theta} = 0.96^\circ$ (resp. $\hat{\phi} = 0$ et $\hat{\phi} = 0.96^\circ$) par pas de 0.12° . Cette précision expérimentale est obtenue par l'utilisation de montures tournantes Thorlabs modèle PRM1M/M. Ainsi, pour chaque couple $(\hat{\theta}, \hat{\phi})$ un signal interférométrique lui est associé. Le premier écho acoustique de chaque signal est isolé. Nous obtenons alors une cartographie des premiers échos acoustiques présentée sur la figure 3.6.

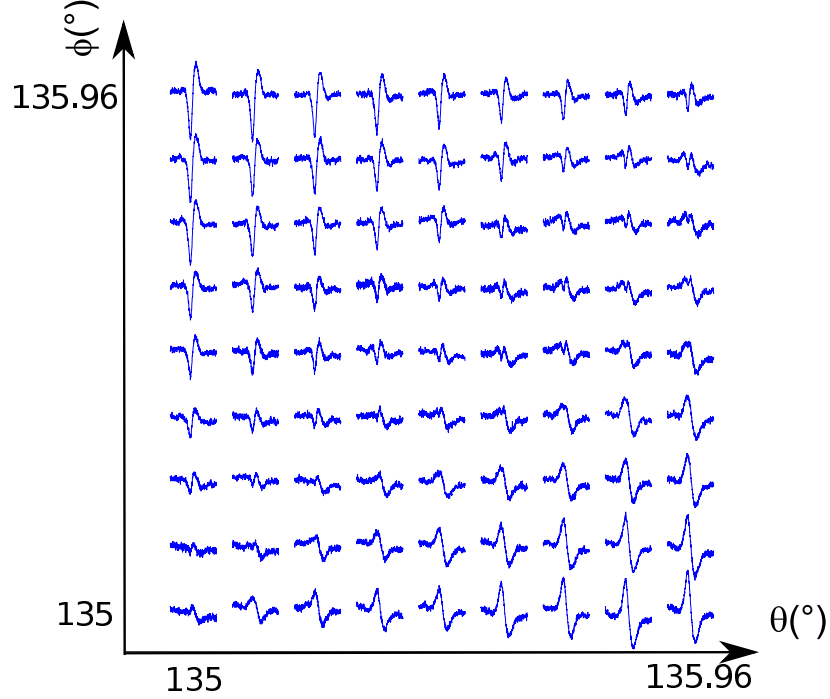


FIGURE 3.6: Cartographie des premiers échos acoustiques issus des mesures interférométriques effectuées aux coordonnées (θ, ϕ) .

De cette nouvelle cartographie, nous choisissons un écho qui sera l'écho de test. Nous calculons le coefficient de corrélation entre l'écho de test et un écho de coordonnées voisines. Nous associons le résultat du calcul aux coordonnées de cet écho voisin, comme cela est illustré sur la figure 3.7. Puis nous calculons le coefficient de corrélation entre l'écho de test et un écho issu d'un autre couple de coordonnées, et ainsi de suite. Nous obtenons alors une cartographie du coefficient de corrélation entre l'écho de test et l'ensemble de la cartographie des premiers échos acoustiques.

Un résultat de ce calcul est illustré sur la figure 3.8. Le signal de test choisi est défini par le couple d'angle $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (+0.96^\circ, +0.96^\circ)$. Chaque point de cette cartographie correspond au coefficient de corrélation entre l'écho situé aux coordonnées (θ, ϕ) et le signal de test. Sur cette figure nous avons mis en évidence différentes zones. La première (ellipse blanche)

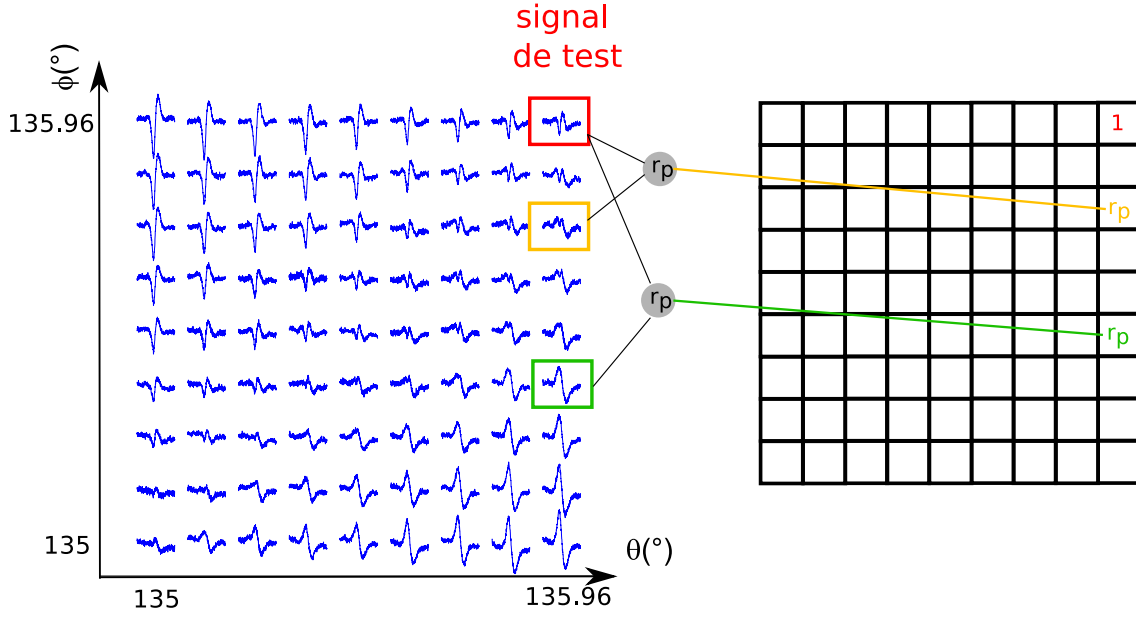


FIGURE 3.7: Principe de la réalisation de la cartographie du coefficient de corrélation.

correspond à la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$. Nous remarquons dans ce cas, que le coefficient de corrélation est très faible : la forme des signaux le long de cette droite est très différente de celle du signal de test.

La seconde zone (rectangle noire) correspond à la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$. Nous remarquons qu'au niveau de la frange sombre le coefficient de corrélation est faible. Cela traduit le fait que proche de la frange sombre, le bruit est prépondérant comme nous pouvons le voir sur la figure 3.6. Le coefficient de corrélation augmente en s'éloignant de la frange sombre. En effet le signal se distingue alors du bruit. Ce coefficient se rapproche de 1 cela veut donc dire que la forme des signaux mesurés en s'écartant de la frange sombre est de plus en plus semblable. Ainsi, afin de réaliser des mesures dépendant seulement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, nous devons augmenter la valeur de $\hat{\theta}$ et de $\hat{\phi}$, tout en restant sur la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$, afin d'obtenir un signal avec un rapport signal-sur-bruit suffisant afin que la forme du signal se distingue du bruit. Ainsi, au niveau de la frange sombre le signal est peu discernable à cause du bruit de mesure présent donc le coefficient de corrélation est faible et en s'écartant de cette frange le signal devient prépondérant par rapport au bruit donc le coefficient de corrélation augmente.

Enfin, nous distinguons une troisième zone (ellipse verte) proche de la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ dans la partie supérieure de la cartographie où le coefficient de corrélation est proche

de 1. Dans le chapitre 2, nous avons montré qu'autour de la frange sombre, la variation d'intensité est exprimée par l'équation 2.40 qui est une combinaison linéaire de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Ainsi, par rapport à la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ dans la partie inférieure de la cartographie, la contribution de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ à la valeur de l'intensité est importante dès que l'on modifie l'angle du polariseur et de la lame-quart d'onde. C'est pourquoi le coefficient de corrélation chute rapidement dans ce domaine. À l'inverse, dans la partie supérieure, toujours par rapport à la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$, l'influence de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est moins importante sur la variation d'intensité. Ainsi, dans cette zone proche de la diagonale, les signaux ont une forme presque identique car la contribution de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, sur le signal mesuré, est largement supérieure à la contribution de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Nous remarquons également sur la figure 3.8 qu'un écart de 0.1° sur l'orientation du polariseur suffit pour obtenir un signal qui dépend à la fois de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.

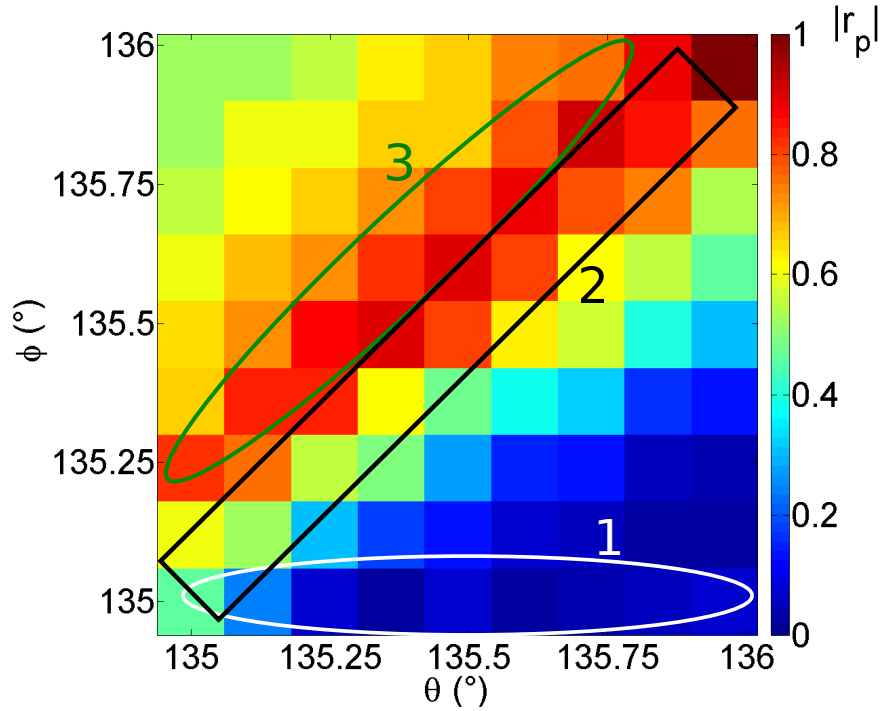


FIGURE 3.8: Cartographie du coefficient de corrélation. L'écho de test est situé à 0.96° de la frange sombre suivant les deux directions angulaires.

Nous allons maintenant réaliser une étude uniquement sur la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ où la variation d'intensité dépend seulement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Les points extrêmes sont définis par les couples $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (-4.20^\circ, -4.20^\circ)$ et $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (+4.20^\circ, +4.20^\circ)$. Les droites sur la figure 3.9(a) présentent les domaines sur lesquels les mesures ont été réalisées. Comme

précédemment, l'étude est effectuée en isolant le premier écho acoustique de chaque signal. L'analyse de la forme des échos est réalisée en utilisant le même protocole de calcul du coefficient de corrélation, mais cette fois appliqué à des mesures réalisées le long d'une droite. Le résultat est présenté sur la figure 3.9(b). Les coordonnées du signal de test sont indiquées par le point vert sur la figure 3.9(a). Dans ce cas-ci, nous pouvons également remarquer que pour des signaux voisins de la frange sombre, ceux-ci ne sont pas semblables à l'écho de test. La raison est identique à celle évoqué précédemment lors de l'analyse de la figure 3.8 : proche de la frange sombre, le bruit domine le signal. Le coefficient de corrélation entre les signaux croît en s'éloignant de la frange sombre.

De plus, nous remarquons une dissymétrie sur la courbe du calcul du coefficient de corrélation. Les échos mesurés du même côté de la frange sombre que le signal choisi ($\theta > 135^\circ$) ont la même forme puisque le coefficient de corrélation est proche de 1. En revanche, la forme des échos situés du côté opposé de la frange sombre ($\theta < 135^\circ$) donne une valeur proche de 0.85 et donc la forme des échos est sensiblement différente. Il est possible finalement que, dans ce cas, nous ne parcourons pas exactement la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$. L'erreur commise sur la localisation de la frange sombre puis sur la droite viendrait de la résolution des montures tournantes du polariseur et de la lame quart-d'onde. Cependant, le coefficient de corrélation entre les signaux de part et d'autre de la frange sombre est élevé même si il est différent de 1. Cela reflète le fait que les signaux ont une forme relativement proche.

Nous étudions maintenant l'évolution du signe des échos le long du domaine de mesure. À partir de l'équation 2.40, dans le cas $\hat{\theta} = \hat{\phi}$, nous remarquons que le signe change suivant la position du point de fonctionnement par rapport à la frange sombre. Deux mesures interférométriques sont réalisées dont les coordonnées sont précisées sur la figure 3.10(a). Les premiers échos acoustiques issus de ces mesures sont illustrés sur la figure 3.10(b). Nous retrouvons expérimentalement un changement de signe sur la forme des échos.

Nous allons maintenant réaliser la même étude pour déterminer le domaine de mesure dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. À partir de la cartographie de la figure 3.6, nous effectuons un nouveau calcul du coefficient de corrélation présenté sur la figure 3.11. Le protocole de calcul est le même que celui présenté par la figure 3.7, seul le signal de test change. Les coordonnées du nouveau signal de test sont définies par le couple

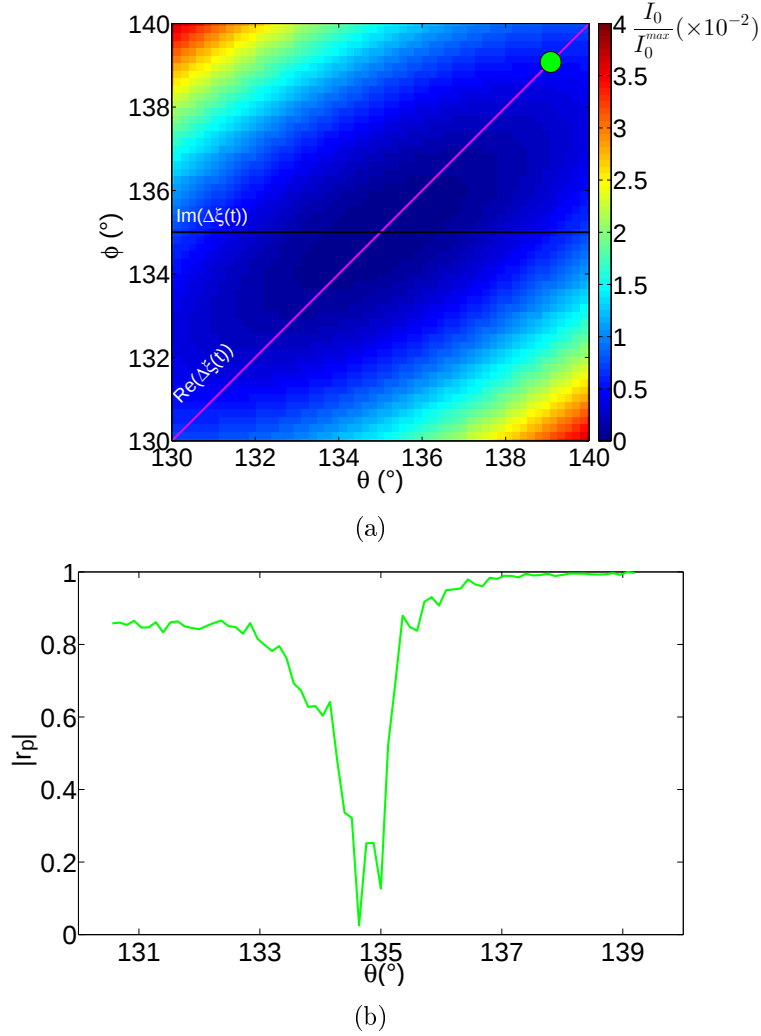


FIGURE 3.9: (a) Cartographie de l'intensité à proximité d'une frange sombre sur laquelle sont présentés les différents domaines où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. (b) Courbe du calcul du coefficient de corrélation pour un signal de test situé sur la droite d'équation $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ dont les coordonnées sont indiquées par le point vert sur la figure (a).

$$(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (+0.96^\circ, 0).$$

On remarque que le long de la droite $\hat{\phi} = 0$ (ellipse blanche) les signaux sont fortement corrélés, donc leurs formes sont similaires. De plus, nous pouvons voir que pour une grande partie de la zone inférieure de la cartographie, sous la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$, les coefficients de corrélation sont très proches de 1. Cela montre bien que dans cette zone, l'influence de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sur la variation de l'intensité est prépondérante. Donc la définition du domaine qui dépend uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est beaucoup moins sensible à la variation d'angle.

Une autre série de mesures a été réalisée le long de la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$, re-

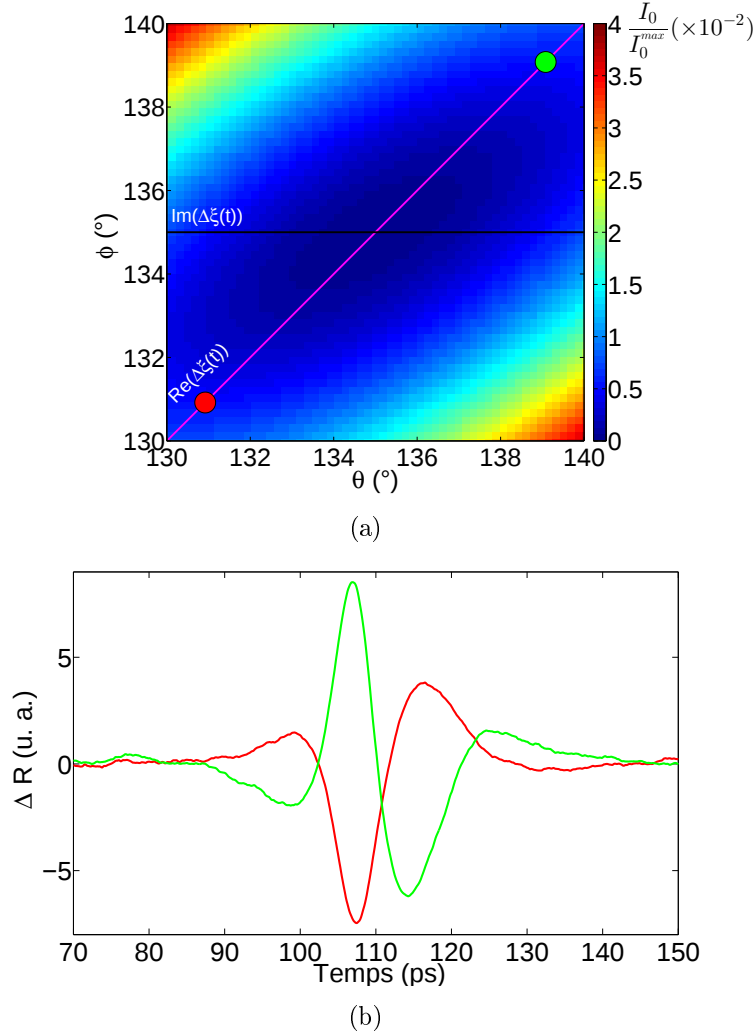


FIGURE 3.10: (a) Cartographie de l'intensité autour d'une frange sombre sur laquelle sont mis en évidence les différents domaines où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi)(t)$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. (b) Premiers échos acoustiques pour des mesures effectuées le long de la droite où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Les coordonnées (θ, ϕ) de ces deux signaux sont illustrées par les points rouge et vert sur la cartographie d'intensité.

présentée en noire sur la figure 3.12(a). Les points extrêmes sont définis par les couples d'angles $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (-2.16^\circ, 0)$ et $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (+2.16^\circ, 0)$. Les mesures sont effectuées par pas de 0.12° . De la même manière que précédemment, nous isolons le premier écho acoustique de chaque signal mesuré. Nous utilisons le même protocole pour calculer le coefficient de corrélation afin de comparer la forme des échos. Pour chaque écho nous obtenons alors une courbe représentant le coefficient de corrélation de cet écho avec le domaine de mesure. Un résultat de ce calcul est montré sur la figure 3.12(b). Nous avons calculé la valeur

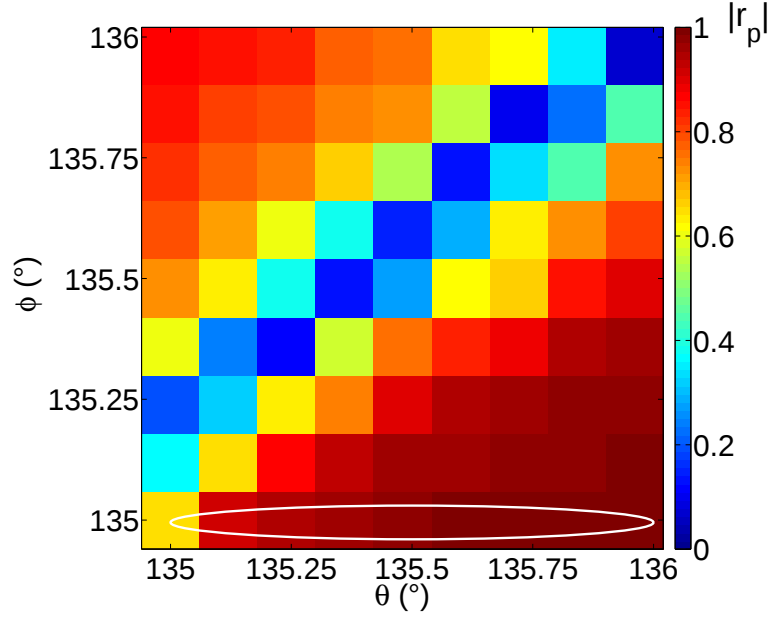


FIGURE 3.11: Cartographie du coefficient de corrélation. L'écho de test est situé aux coordonnées $(\theta, \phi) = (135.96^\circ, 135^\circ)$.

absolue du coefficient de corrélation avec pour signal de test l'écho situé sur la droite $\hat{\phi} = 0$ dont les coordonnées sont indiquées par le point vert sur la figure 3.12(a). Les échos des signaux proches de la frange sombre ne sont pas corrélés avec l'écho considéré. Cela traduit le fait que très proche de la frange sombre, nous mesurons principalement du bruit. Une fois que le point de mesure est suffisamment éloigné de la frange sombre, les signaux se ressemblent fortement, puisque le coefficient de corrélation est proche de 1 en valeur absolue.

Par ailleurs, en reprenant l'équation 2.40 pour $\hat{\phi} = 0$, nous remarquons que la mesure de ΔI change de signe avec le signe du déplacement angulaire à proximité de la frange sombre. Pour vérifier cela expérimentalement, comme dans le cas de l'étude du signe de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, nous choisissons deux mesures interférométriques effectuées de part et d'autre de la frange sombre. La figure 3.13(a) indique les coordonnées de mesure de ces signaux. Les premiers échos acoustiques de ces signaux sont présentés sur la figure 3.13(b). Nous observons bien un changement de signe entre les deux mesures.

Nous avons montré qu'il est possible de réaliser une mesure sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ par simple rotation du polariseur et de la lame quart-d'onde. En couplant la mesure de réflectométrie sur un film de tungstène décrit au chapitre 1 avec

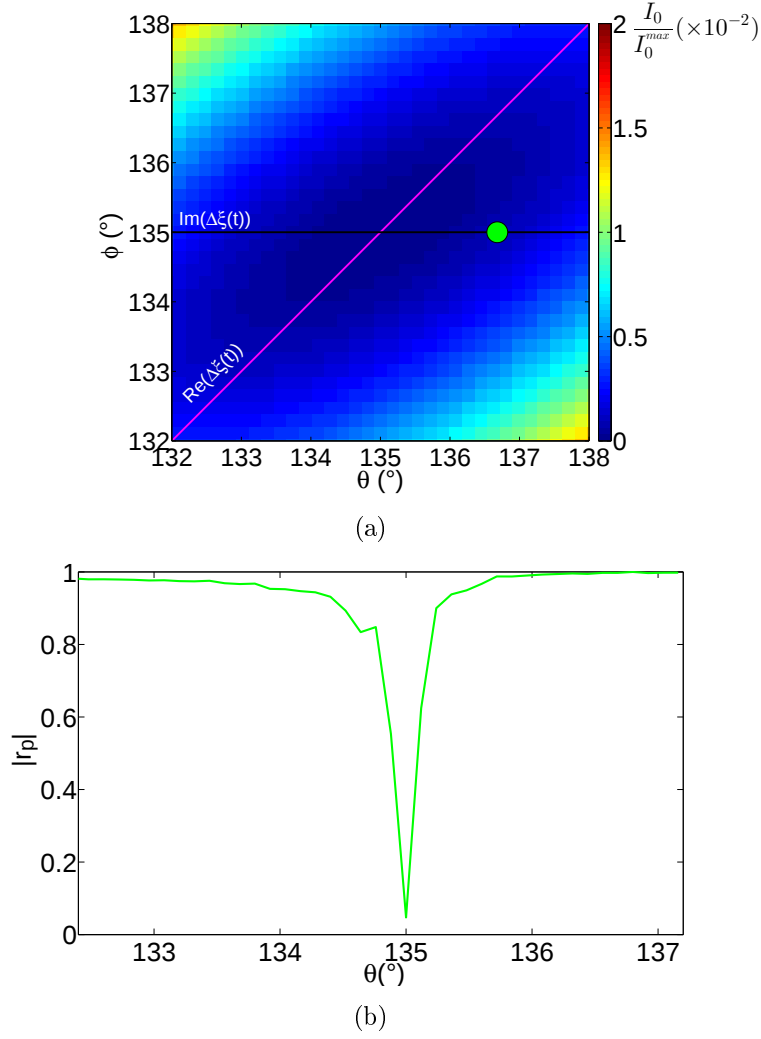


FIGURE 3.12: (a) Cartographie de l'intensité autour d'une frange sombre sur laquelle sont présentés les domaines où la variation d'intensité est uniquement sensible à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Les coordonnées de l'écho test sont indiquées par le cercle vert. (b) Courbe du calcul de la valeur absolue du coefficient de corrélation pour l'écho de test avec l'ensemble du domaine de mesure.

l'équation 2.43 du chapitre 2, nous avons vérifié qu'une mesure effectuée sur la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. De la même manière, nous pouvons conclure qu'une mesure interférométrique réalisée sur la droite $\hat{\phi} = 0$ dépend uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. De plus, les mesures issues de chacun des domaines ont des formes quasiment identiques au signe près.

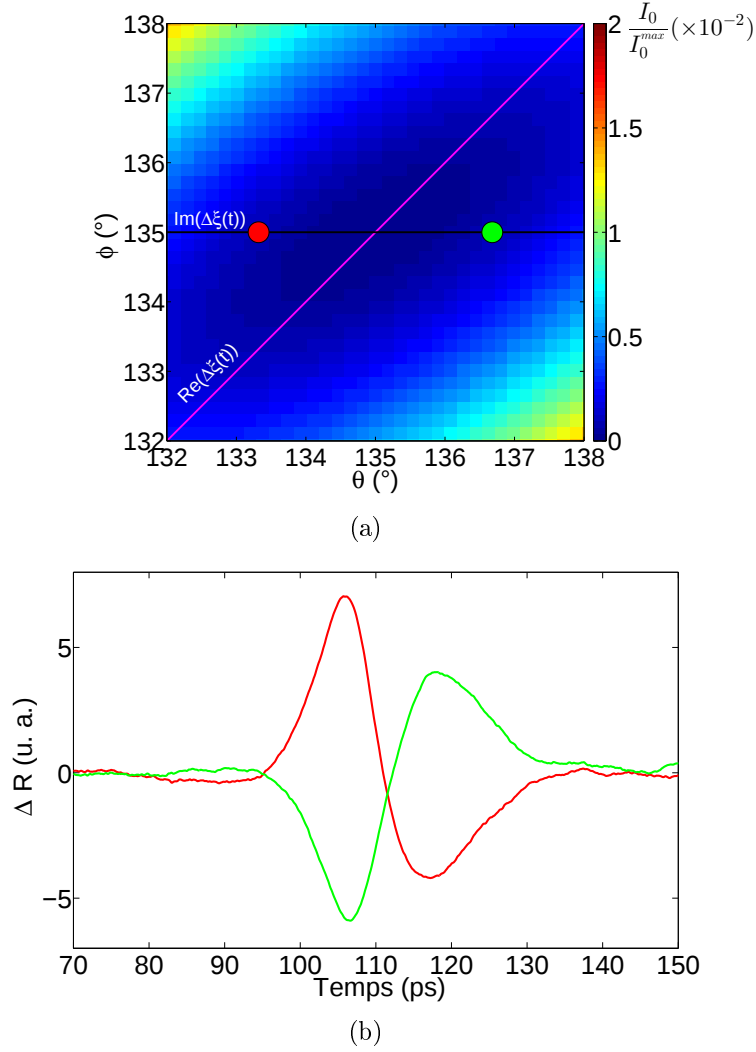


FIGURE 3.13: (a) Cartographie de l'intensité autour d'une frange sombre sur laquelle sont présentés les domaines où la variation d'intensité est uniquement sensible à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. (b) Premiers échos acoustiques pour des mesures effectuées le long de la droite où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Les coordonnées (θ, ϕ) des différents point de fonctionnement sont visibles sur la cartographie d'intensité (a). Les échos ont un signe différent suivant leur position par rapport à la frange sombre.

3.2.4 Quantification de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et $\text{Im}(\Delta\xi(t))$

À partir des mesures interférométriques et des expressions de la variation d'intensité développées au chapitre 2 nous étudions maintenant la possibilité de quantifier les mesures de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.

En utilisant l'équation 2.40 dans le cas d'une mesure dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$, c'est-à-dire $\hat{\phi} = 0$ et $\hat{\theta} \neq 0$, la variation d'intensité a pour expression :

$$\Delta I(\hat{\theta}, \hat{\phi}, \Delta \xi(t)) = -E_{r0}^2 \hat{\theta} \text{Im}(\Delta \xi(t)). \quad (3.3)$$

De la même manière la variation d'intensité pour une mesure dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta \xi(t))$ s'exprime par :

$$\Delta I(\hat{\theta}, \hat{\phi}, \Delta \xi(t)) = E_{r0}^2 \hat{\phi} \text{Re}(\Delta \xi(t)). \quad (3.4)$$

De ce fait, en connaissant l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde lors des mesures il est théoriquement possible de quantifier la partie réelle ou imaginaire de $\Delta \xi(t)$.

Expérimentalement, ce calcul est possible seulement si, pour tous les couples (θ, ϕ) , l'intensité expérimentale sans perturbation de l'échantillon est identique à l'intensité théorique. Dans le cas analytique le contraste de l'interféromètre est égale à 1. Ce contraste C est défini par :

$$C = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}, \quad (3.5)$$

avec $I_{\max}$ et $I_{\min}$ les intensités respectives de la frange claire et sombre. Au cours de la caractérisation de l'interféromètre nous avons déterminé un contraste de 99%. L'intensité expérimentale est donc quasiment identique à l'intensité théorique. Donc l'utilisation des expressions 3.3 et 3.4 est possible pour quantifier $\text{Re}(\Delta \xi(t))$ et $\text{Im}(\Delta \xi(t))$. Dans notre cas cette étude n'est pas réalisée. Nous nous sommes focalisé sur la détermination des domaines de mesures.

3.2.5 Conclusion

Nous avons réussi à effectuer des mesures interférométriques sur une couche mince de tungstène sensibles uniquement à $\text{Im}(\Delta \xi(t))$ ou à $\text{Re}(\Delta \xi(t))$.

Tous d'abord, nous avons analysé ces signaux en superposant le premier écho acous-

tique mesuré en interférométrie le long de la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ avec la dérivée temporelle de la mesure réflectométrique. La superposition de ces deux signaux est quasiment parfaite, donc le signal interférométrique mesuré le long de cette droite est bien représentatif de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Dans un second temps, nous avons étudié la forme de la primitive du signal mesuré le long de la droite $\hat{\phi} = 0$. Nous avons obtenu un signal unipolaire, ce qui est conforme avec le résultat attendu. Ainsi, le long de la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$, la mesure interférométrique est bien sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Nous avons ensuite réalisé des mesures interférométriques le long des domaines où la variation d'intensité est sensible uniquement à la partie réelle ou à la partie imaginaire de $\Delta\xi(t)$. Cela nous a permis de voir que le long de chacun des domaines les signaux ont effectivement la même forme au signe et à l'amplitude près.

Enfin, nous avons identifié les contraintes expérimentales quant à la détermination des domaines pour les mesures dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. La détermination du domaine de mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est beaucoup moins sensible aux variations d'angles du polariseur et de la lame quart-d'onde que la détermination du domaine dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Ainsi en s'écartant de la droite $\hat{\phi} = 0$, la contribution de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est dominante sur le signal interférométrique.

Nous présentons dans la prochaine partie des mesures interférométriques sur un échantillon faiblement absorbant en analysant les oscillations Brillouin dans la silice. Pour réaliser la mesure dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$, un protocole simple sera mis en place afin de s'affranchir des contraintes citées précédemment.

3.3 Mesure interférométrique d'oscillations Brillouin dans la silice

Précédemment, nous avons réalisé des mesures interférométriques sur un échantillon fortement absorbant pour l'impulsion sonde. Nous analysons ici des mesures interférométriques effectuées sur un échantillon faiblement absorbant.

Pour réaliser des mesures interférométriques de détection d'oscillations Brillouin, nous avons choisi d'étudier l'échantillon décrit au paragraphe 1.2.4.1. Cet échantillon est constitué d'une couche de 300 nm de titane déposée sur un substrat de silice de 170 μm . Au niveau de l'échantillon, l'énergie de l'impulsion pompe est de 1 nJ et les énergies des impulsions référence et sonde sont de 0.25 nJ. La mesure présentée est le résultat d'un moyennage de 50 000 acquisitions. La configuration est présentée sur la figure 3.14.

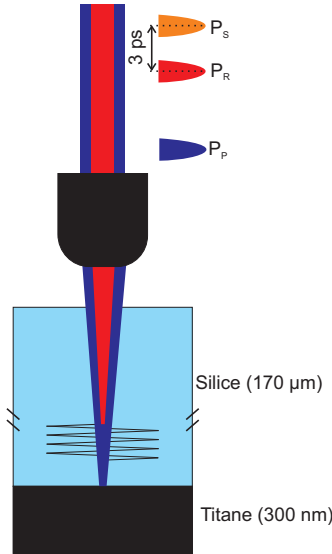


FIGURE 3.14: *Schéma de l'échantillon étudié. Une couche de 300 nm de titane est déposée sur un substrat de silice de 170 μm . Le faisceau pompe est focalisé sur le film de titane. Des ondes acoustiques sont créées et se propagent dans la couche de silice. Les impulsions référence et sonde se réfléchissent sur l'interface titane/silice et sur l'onde acoustique se propageant dans la couche transparente.*

Nous allons d'abord effectuer une mesure sur la droite $\hat{\phi} = 0$. Nous justifions que cette mesure est sensible à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ en utilisant la mesure d'oscillations Brillouin présentée au chapitre 1. Puis à l'aide du signal issu du domaine dépendant de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ nous allons déterminer le signal interférométrique sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Enfin nous présentons un calcul théorique, basé sur l'utilisation d'une cartographie de mesure

d'oscillations Brillouin, permettant une détermination complète des domaines de mesures expérimentaux de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.

3.3.1 Détection de la contribution des oscillations Brillouin à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$

Nous réalisons deux mesures interférométriques de détection d'oscillations Brillouin. Une mesure est effectuée sur la droite où la variation d'intensité dépend uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Les coordonnées de cette mesure sont définies par $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (+5^\circ, 0)$. La mesure sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ est réalisée à la position $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (+5^\circ, +5^\circ)$. La figure 3.15(a) représente les coordonnées des points de mesures. La figure 3.15(b) montre les réponses temporelles issues de ces deux mesures : la courbe rouge correspond à la mesure sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et la courbe bleue à celle dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Dans l'insert, nous illustrons les oscillations Brillouin durant les premières nanosecondes. La moyenne des périodes des oscillations est de 59,64 ps, soit une fréquence des oscillations Brillouin de 16,76 GHz. Cette valeur est très proche de celle obtenue en réflectométrie (16,60 GHz).

De plus, les parties réelle et imaginaire du changement relatif de réflectivité dans le cas des oscillations Brillouin sont des fonctions sinusoïdales en quadrature de phase [50,72,96]. Dans le chapitre 2 nous avons établi qu'une mesure dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est proportionnelle à la dérivée temporelle de la partie imaginaire du changement relatif de réflectivité : elles sont alors en quadrature. Cela est résumé sur la figure 3.16. Donc une mesure sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est en phase avec la partie réelle de la mesure réflectométrique d'oscillation Brillouin présentée au chapitre 1. Cela est représenté sur la figure 3.17.

Nous avons réussi à effectuer une mesure interférométrique dépendant de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ des oscillations Brillouin. Nous avons vérifié expérimentalement que cette mesure est en phase avec un signal d'oscillation Brillouin mesuré en réflectométrie. Nous allons maintenant réaliser une mesure interférométrique sensible à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

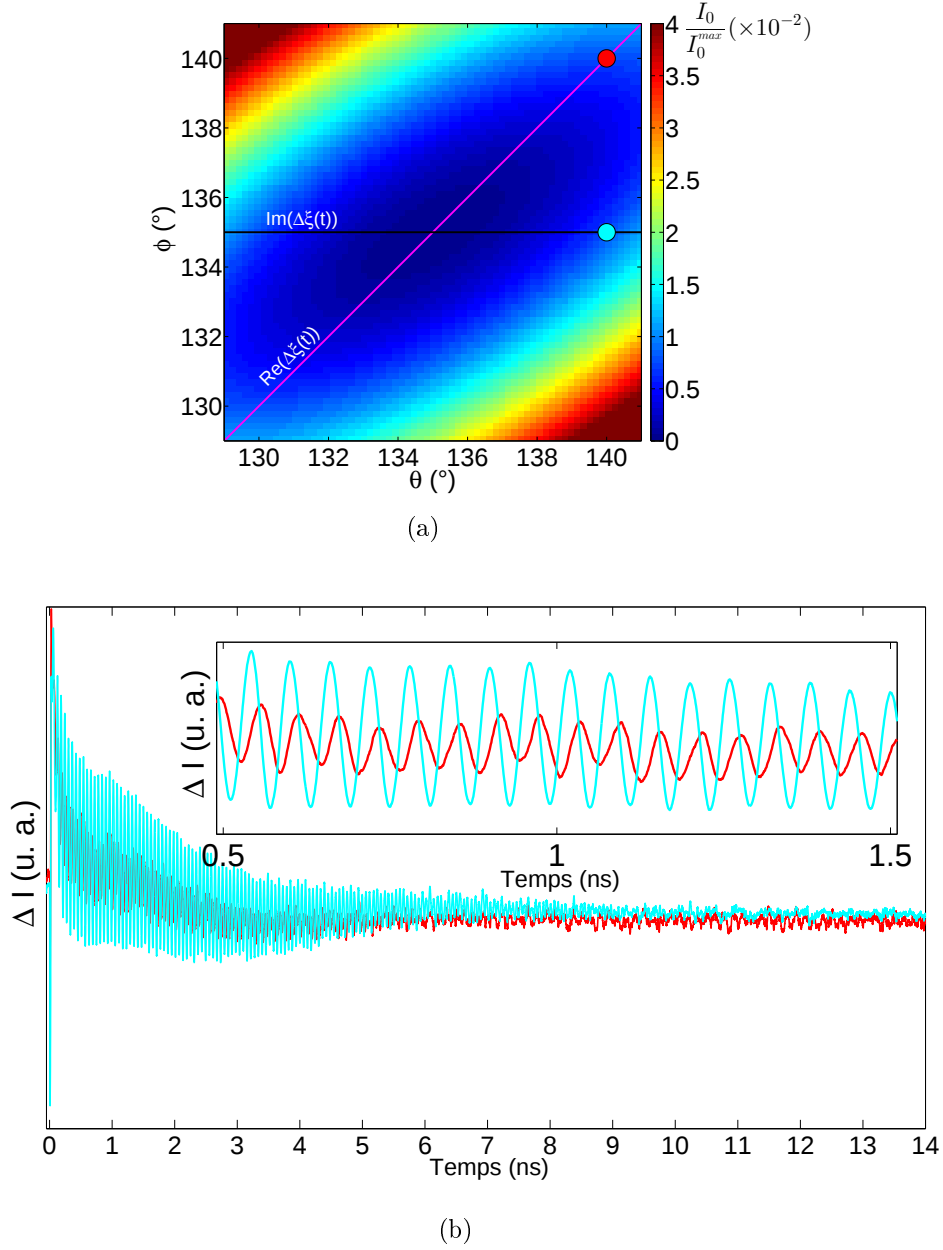


FIGURE 3.15: (a) Cartographie de l'intensité autour d'une frange sombre sur laquelle sont présentés les différents domaines où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. (b) Réponse transitoire de l'échantillon de silice. La courbe rouge correspond à la mesure dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et la courbe bleue à la mesure dépendant de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. En insert nous visualisons les premières nanosecondes.

3.3.2 Détection de la contribution des oscillations Brillouin à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$

Dans le chapitre 2, nous avons également établi qu'une mesure dépendant uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ est proportionnelle à la dérivée temporelle de la partie réelle du changement

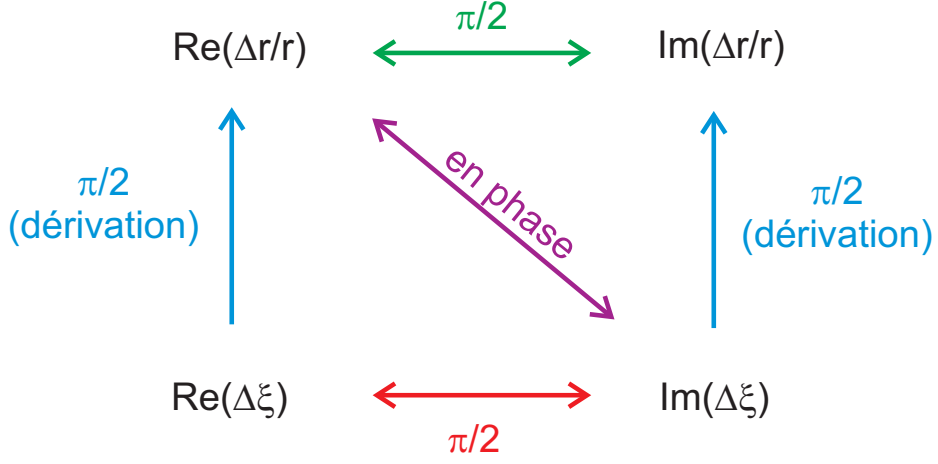


FIGURE 3.16: Relations de phase entre les parties réelles et imaginaires des mesures réflectométriques ($\text{Re}(\Delta r/r)$, $\text{Im}(\Delta r/r)$) et interférométriques ($\text{Re}(\Delta \xi(t))$, $\text{Im}(\Delta \xi(t))$) des oscillations Brillouin.

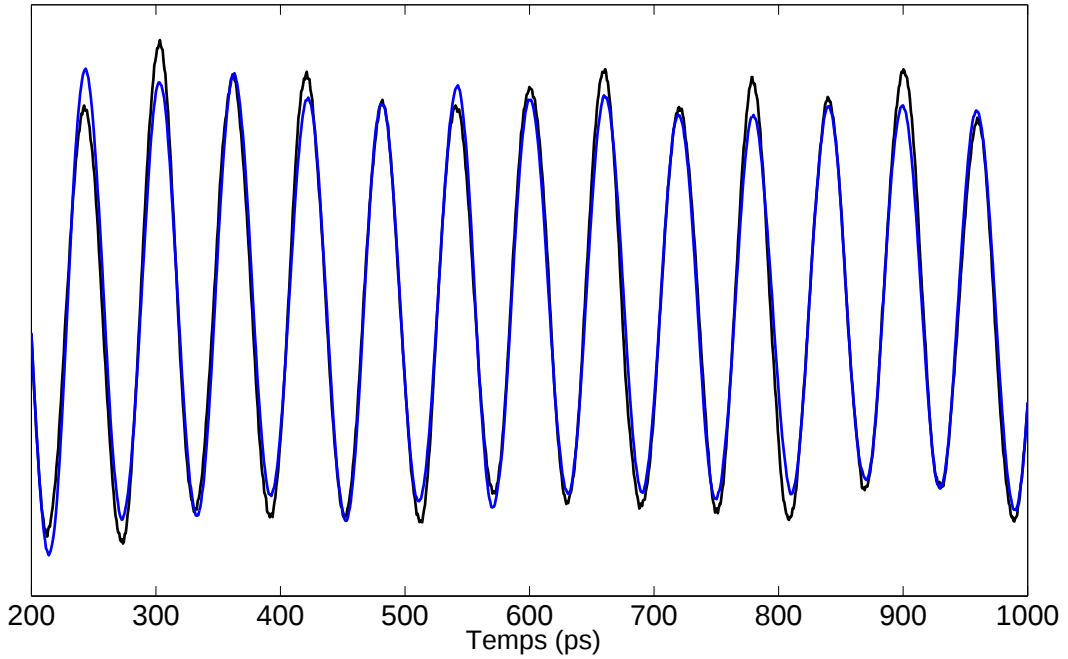


FIGURE 3.17: Superposition d'une mesure interférométrique mesurée le long du domaine dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta \xi(t))$ (courbe bleue) et de la mesure réflectométrique (courbe noire) des oscillations Brillouin. Les signaux sont normalisés.

relatif de réflectivité. De plus, la mesure sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta \xi(t))$ est en phase avec la dérivée temporelle de la partie réelle du changement relatif de réflectivité. Donc une mesure interférométrique de $\text{Re}(\Delta \xi(t))$ est en quadrature de phase par rapport à une

mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ (cf. figure 3.16).

Nous utilisons le fait qu'une mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est simple à réaliser expérimentalement et le fait que les signaux mesurés sur des domaines différents soient des fonctions sinusoïdales en quadrature pour déterminer expérimentalement les domaines de fonctionnement où le signal dépend uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. La mesure sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sert de signal de test. Nous allons comparer différents signaux à ce signal afin de déterminer la mesure sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Dans le cas de la détection des oscillations Brillouin, nous ne réalisons pas de cartographie de mesures dans le plan (θ, ϕ) comme lors du paragraphe précédent. Dans un premier temps, le polariseur et la lame quart-d'onde sont orientés de manière à réaliser une mesure qui dépend uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Les coordonnées de ce point de mesure sont définies par le couple $(\hat{\theta}, \hat{\phi}) = (5^\circ, 0)$ (représenté par le point bleu sur la figure 3.18). Puis une série de mesures est réalisée en gardant l'angle θ du polariseur fixe, mais en tournant la lame quart-d'onde de manière à se rapprocher de plus en plus de la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ puis la dépasser. Ceci est représenté par la flèche verte sur la figure 3.18. Nous obtenons alors un ensemble de mesures interférométriques.

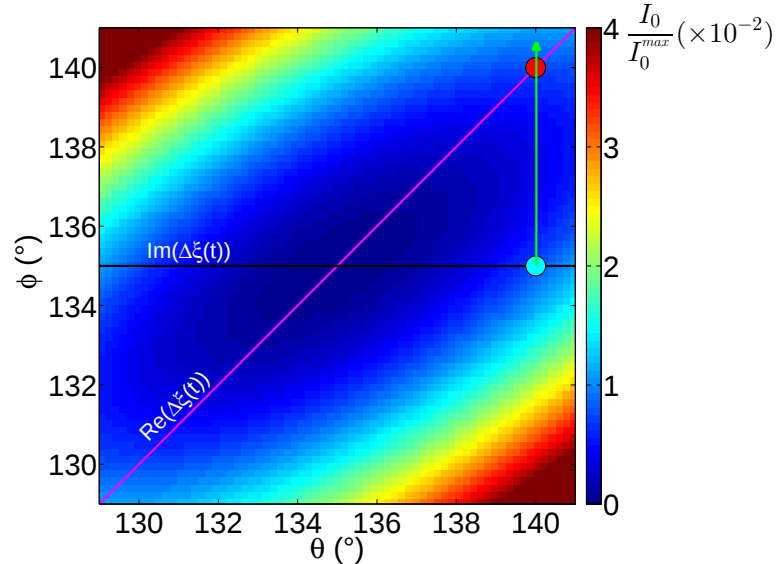


FIGURE 3.18: Cartographie de l'intensité proche de la frange sombre sur laquelle est localisée l'ensemble des couples d'angles (flèche verte) de la série de mesure effectuée en tournant la lame quart-d'onde.

Les signaux de cet ensemble de mesures sont comparés au signal de test dépendant

uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. L'étude réalisée utilise le protocole présenté au paragraphe précédent. Nous calculons le coefficient de corrélation entre le signal de test et cette série de mesures. Nous remarquons que la définition de r_p donnée par l'équation 3.1 est semblable à un calcul de produit scalaire normalisé. Or, les mesures de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ sont en quadrature de phase. Une des propriétés de deux fonctions sinusoïdales en quadrature de phase est que leur produit scalaire est nul. Ainsi, le signal ayant un produit scalaire faible avec la mesure sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ est le signal se trouvant sur le domaine où la mesure de la variation d'intensité dépend seulement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Le résultat du produit scalaire entre la mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ et la série de mesures effectuées en gardant l'angle θ du polariseur fixe est présentée sur la figure 3.19. Au fur et à mesure que l'orientation se rapproche de la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ le coefficient de corrélation décroît vers un minimum. Ce minimum permet de déterminer les coordonnées de la mesure de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

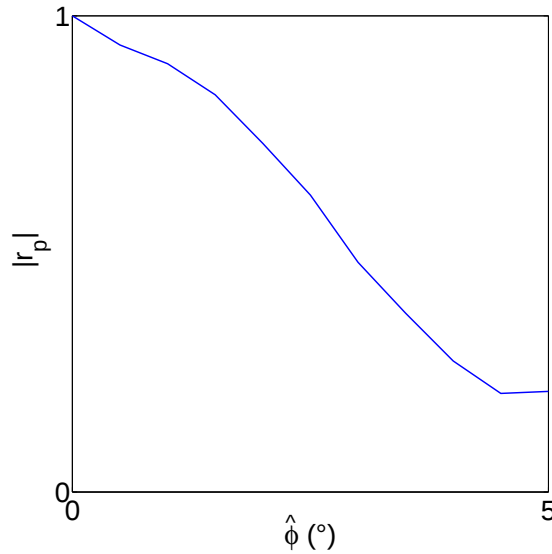


FIGURE 3.19: Résultat du calcul du coefficient de corrélation entre le signal de test issu de la droite $\hat{\phi} = 0$ et la série de mesures réalisées le long du domaine présenté sur la figure 3.18.

Sur la figure 3.20, nous avons représenté les premières oscillations de la contribution acoustique du signal dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ en trait continu bleu. Le signal en quadrature par rapport à ce signal doit être décalé temporellement de 14,91 ps (cf. paragraphe 3.3.1). Le signal qui a le plus faible produit scalaire avec le signal de test,

décalé de la quadrature théorique de 14,91 ps est représenté en trait continu rouge. Les amplitudes de ces deux mesures sont normalisées pour faciliter la comparaison. Nous pouvons voir que ces signaux se superposent quasiment parfaitement. Nous avons précisé que le résultat du calcul du coefficient de corrélation est semblable au produit scalaire entre les deux signaux comparés. Il permet donc de trouver la valeur du déphasage expérimental, ici $\pm 0.05\pi$ soit 1,4 ps entre la quadrature théorique et le signal mesuré. Nous pouvons donc conclure que ce signal se situe bien sur la droite où la variation d'intensité dépend uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

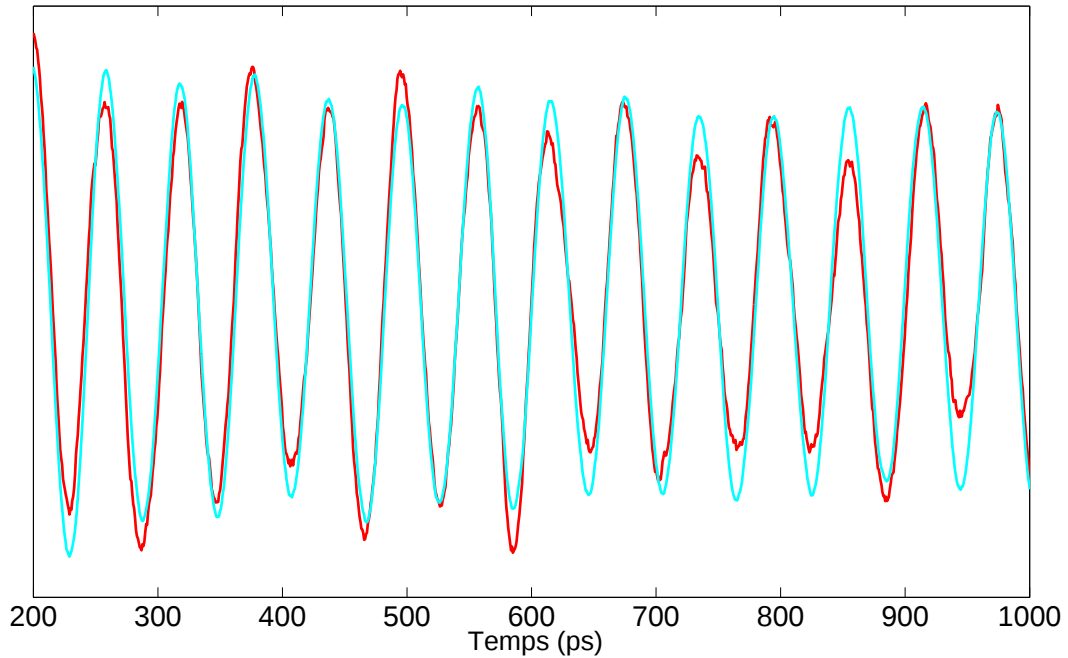


FIGURE 3.20: Mesures interférométriques d'oscillations Brillouin. La courbe bleue représente la mesure effectuée sur le domaine où la variation d'intensité est uniquement sensible à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. La courbe rouge représente la mesure dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ décalée temporellement de la quadrature théorique. Les amplitudes sont normalisées.

Nous avons réussi à réaliser deux mesures interférométriques dépendant uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ pour détecter les oscillations Brillouin dans la silice. En utilisant la mesure en réflectométrie des oscillations Brillouin présentée au chapitre 1, nous avons vérifié que le long de la droite $\hat{\phi} = 0$ nous mesurons un signal sensible uniquement à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Grâce à cette mesure interférométrique et à un protocole de calcul basé sur l'utilisation d'un coefficient de corrélation, nous avons réussi à mesurer un signal

interférométrique qui n'est fonction que de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

3.3.3 Cartographie d'oscillations Brillouin

Par la suite, nous souhaitons réaliser une cartographie entière de mesures d'oscillations Brillouin autour de la frange sombre. En utilisant le coefficient de corrélation sur cette cartographie de mesures, nous pouvons extraire les domaines expérimentaux où la variation d'intensité dépend uniquement de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ en déterminant les zones où le coefficient de corrélation est maximal ou minimal. Ce calcul est réalisé en prenant toujours un signal issu de la droite d'équation $\hat{\phi} = 0$ comme référence de calcul. La détermination de ces domaines est simplifiée en utilisant des signaux d'oscillations Brillouin car les mesures de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sont en quadrature donc le coefficient de corrélation est assurément proche de zéro. Ce qui n'est pas le cas, si nous souhaitons utiliser des échos acoustiques du film de tungstène présentés précédemment. En effet, dans le cas d'une couche métallique mince, nous savons que le coefficient de corrélation entre une mesure issue de la droite $\hat{\phi} = 0$ et une seconde issue de la droite $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ est différent de 1 mais n'est pas obligatoirement nul.

Pour mettre cela en évidence, nous avons réalisé des simulations de ce calcul de coefficient de corrélation pour une cartographie de signaux numériques. Nous simulons le signal issu du domaine de mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ par une fonction sinusoïdale, et le signal sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ est pris comme étant le signal en quadrature à cette fonction. La cartographie complète de la variation d'intensité est déterminée à partir de ces deux signaux, en utilisant l'équation de la variation d'intensité définie par l'équation 2.40. Le coefficient de corrélation entre le signal de test et l'ensemble de la cartographie est ensuite calculé.

La cartographie du résultat du calcul des coefficients de corrélation en fonction des angles θ et ϕ du polariseur et de la lame quart-d'onde est donnée sur la figure 3.21. La droite noire représente les différents couples (θ, ϕ) pour lesquels le coefficient de corrélation est nul et donc où la variation d'intensité est sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Nous retrouvons bien le résultat présenté lors du calcul analytique développé au chapitre 2. La droite magenta représente l'ensemble des angles où le résultat du calcul est maximal, au signe près. Ce domaine est également bien défini par la droite $\phi = 135^\circ$ déterminée au

chapitre précédent.

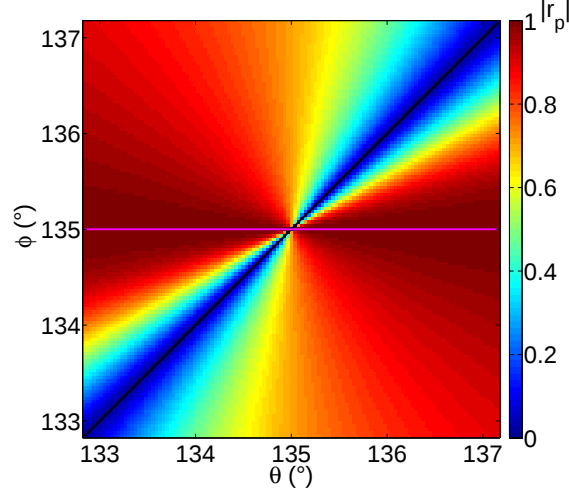


FIGURE 3.21: Cartographie du calcul de coefficient de corrélation pour un ensemble de signaux simulés. La droite noire représente la zone où le coefficient de corrélation est nul et la droite magenta la zone où le coefficient de corrélation est maximal, au signe près.

L'utilisation d'un calcul de coefficient de corrélation, dans le cas de mesures d'oscillations Brillouin, appliqué à une cartographie de signaux numériques permet donc la détermination complète des domaines où la variation d'intensité dépend uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$. Par la suite, il est envisageable d'automatiser les mesures en intégrant des montures motorisées sur le polariseur et la lame quart-d'onde. Cela permettra d'obtenir des cartographies expérimentales complètes de mesures des oscillations Brillouin et en utilisant le calcul du coefficient de corrélation nous obtiendrons les couples d'angles (θ, ϕ) pour lesquels les mesures interférométriques dépendent de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ ou de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$.

3.4 Perspectives

Nous avons montré dans ce chapitre la possibilité de détecter expérimentalement avec l'interféromètre que nous avons développé les échos acoustiques induits par une onde acoustique se propageant dans un film mince métallique, mais également les oscillations Brillouin dans la silice. Pour la suite, l'objectif est d'utiliser cet interféromètre pour détecter les ondes acoustiques générées par l'excitation d'une particule d'or emprisonnée dans un substrat transparent. La figure 3.22 illustre la configuration de l'échantillon qui sera

étudié. Cette détection rendra compte des déplacements d'interface induits par les ondes acoustiques.

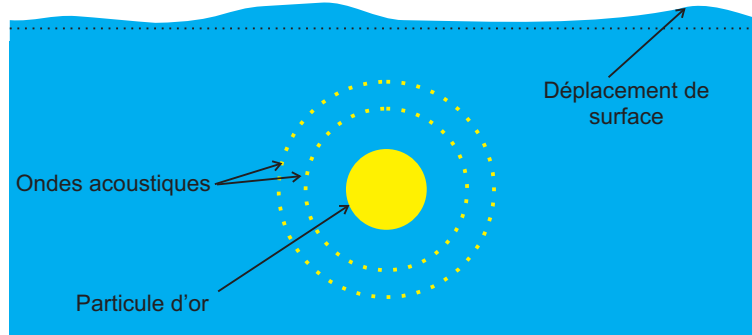


FIGURE 3.22: Échantillon prévu pour réaliser des mesures interférométriques de la vibration d'une particule d'or emprisonnée dans une matrice, ainsi que les déplacements de surface induits par ces vibrations.

En se servant de ces résultats il sera alors possible de localiser en profondeur la particule et de la dimensionner. Pour cela, il sera possible d'utiliser un programme de post-traitement utilisant l'algorithme SAFT (Synthetic Aperture Focusing Technique) [97–100].

3.5 Conclusion

Lors de la mise en place de l'interféromètre, nous avons pu régler l'orientation du cristal biréfringent de manière à s'affranchir de la différence de chemin optique entre les impulsions référence et sonde. De plus, nous avons caractérisé l'effet de la différence de transmission de ces deux impulsions à travers l'objectif de microscope.

Par la suite, en réalisant des mesures sur une couche mince de tungstène, nous avons confirmé que le long des droites définies par $\hat{\theta} = \hat{\phi}$ et $\hat{\phi} = 0$, la variation d'intensité en sortie de l'interféromètre est respectivement sensible uniquement à $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Nous avons également pu mesurer des oscillations Brillouin dans la silice avec cet interféromètre. Il a été vérifié que les signaux dépendant de la partie réelle et imaginaire de $\Delta\xi(t)$ sont bien en quadrature de phase.

La détermination expérimentale des domaines de mesure de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ a été réalisée. Pour cela, nous avons mis en place un protocole. Celui-ci nécessite la réalisation d'une cartographie de mesure interférométrique dans le plan (θ, ϕ) . Puis, en compa-

rant la forme des signaux mesurés à un signal de test judicieusement choisi, il est possible de définir expérimentalement les domaines de mesure de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. De plus grâce à ces différentes mesures, nous avons également pu mettre en évidence que la détermination expérimentale du domaine dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ est plus délicate que celle du domaine ne dépendant que de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. À plus long terme, nous souhaitons mesurer des vitesses de déplacement d'interface, ainsi seuls des signaux qui dépendent uniquement de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ seront utilisés. Ainsi ces mesures seront facilement accessibles.

En conclusion, des mesures indépendantes de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ ont été effectuées en utilisant des échantillons fortement et faiblement absorbants à la longueur d'onde du laser sonde. La détermination des couples d'angles permettant ces mesures a aussi été réalisée.

Enfin des mesures sur des nanoparticules uniques, emprisonnées dans une matrice, sont envisagées. Grâce aux mesures interférométriques, il sera possible de déterminer la localisation dans la profondeur ainsi que les tailles de ces nanoparticules.

Conclusion générale

L'objectif du travail de cette thèse était de réaliser les premières détections d'ondes acoustiques en réflexion en utilisant un nouveau type d'interféromètre à chemin commun. Pour arriver à cet objectif il a été nécessaire dans un premier temps de comprendre la génération et la détection d'ondes acoustiques par impulsions lasers dans un montage classique d'acoustique picoseconde. Nous avons également réalisé l'état de l'art des techniques utilisées jusqu'à maintenant, afin de conduire une étude critique des méthodes existantes. Puis nous avons modélisé le montage interférométrique développé pendant les travaux de thèse afin de définir son fonctionnement. Ensuite, une caractérisation expérimentale a aussi été effectuée. Enfin les premières mesures interférométriques sur deux échantillons différents ont été présentées. Celles-ci sont interprétées en utilisant des mesures pompe-sonde réalisées à l'aide d'un montage réflectométrique classique.

Dans le premier chapitre nous avons décrit synthétiquement les mécanismes de génération d'ondes acoustiques par excitation d'un échantillon en utilisant des impulsions lasers. La propagation de ces ondes modifie localement les propriétés physiques de l'échantillon, notamment son coefficient de réflexion. La détection des ondes acoustiques dans l'échantillon est réalisée au travers de la mesure des modifications du coefficient de réflectivité de l'échantillon. La variation relative du coefficient de réflexion dépend du déplacement de surface qui perturbe essentiellement la phase de la lumière réfléchie. Grâce au couplage photoélastique au sein de l'échantillon, la variation de réflectivité est également sensible à la perturbation transitoire de l'indice du milieu induite par la déformation.

Des mesures sur des échantillons fortement et peu absorbants à la longueur d'onde

du laser sonde ont été présentées. Dans le premier cas, les échos acoustiques issus des différents allers-retours des ondes acoustiques dans l'échantillon sont détectés. Dans le second cas, la détection est effectuée sur toute l'épaisseur de l'échantillon : les mesures rendent compte de la détection des oscillations Brillouin. Ces résultats ont servi lors de la caractérisation expérimentale de l'interféromètre.

Les mesures de réflectométrie évoquées précédemment sont uniquement sensibles à la contribution du couplage photoélastique sur le changement de réflectivité. Cependant il existe des méthodes alternatives pour réaliser des mesures du déplacement de surface. Pour de telles mesures il est possible d'utiliser des adaptations du montage de réflectométrie telles que la défectométrie, la distorsion de détection de faisceau ou l'ajout d'un miroir de Bragg pour créer une cavité optique. Or, ces techniques sont limitées soit par la nature de l'échantillon, soit par la superposition des faisceaux pompe et sonde, soit par la difficulté de l'alignement.

Les techniques interférométriques sont alors utilisées car elles ne possèdent pas ces limitations. Nous avons étudié différents types d'interféromètres employés en acoustique picoseconde. Nous avons fait ressortir les avantages et inconvénients de chacun.

Ainsi au travers des mesures réflectométriques et de l'étude de différents types d'interféromètre, nous choisissons de développer un interféromètre à chemin commun utilisant un cristal biréfringent dans le but de réaliser des mesures en réflexion.

Dans le deuxième chapitre, nous avons décrit le montage interférométrique à chemin commun que nous avons mis en place. Celui-ci utilise un seul cristal biréfringent, élément central dans la création et la recombinaison des impulsions référence et sonde. L'usage d'un tel interféromètre permet de s'affranchir des bruits mécaniques sur la mesure. De plus, son alignement est simple et l'emploi d'un seul cristal biréfringent rend ce dispositif entièrement passif. Une modélisation de l'interféromètre est réalisée en utilisant le formalisme de Jones. Nous avons montré que l'intensité sans perturbation de l'échantillon est uniquement fonction de l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde. La variation d'intensité induite par une perturbation de l'échantillon est en plus fonction d'un troisième paramètre, $\Delta\xi(t)$, représentant la différence entre les perturbations des champs électriques subies par les deux impulsions sondant l'échantillon. Cette modélisa-

tion a permis de mettre en évidence la capacité du montage à mesurer indépendamment des signaux sensibles uniquement à la partie réelle ou à la partie imaginaire de $\Delta\xi(t)$. Pour effectuer ces mesures, il suffit de choisir correctement l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde à proximité d'une frange sombre.

Nous avons exposé le lien entre des mesures interférométriques et des mesures effectuées en réflectométrie. Ainsi, une mesure dépendant uniquement de la partie réelle (resp. imaginaire) de $\Delta\xi(t)$ est proportionnelle à la dérivée temporelle de la variation d'amplitude (resp. de phase) du changement de réflectivité.

Enfin, l'influence du dichroïsme de l'objectif et de la différence de chemin optique à travers le cristal biréfringent sur la localisation de la frange sombre a été étudiée. Nous avons conclu que le dichroïsme translate la frange sombre dans le plan formé par les angles du polariseur et de la lame quart-d'onde. Le principe de fonctionnement de l'interféromètre reste cependant inchangé.

Dans le troisième chapitre, la caractérisation expérimentale de l'interféromètre a été effectuée. Tout d'abord le cristal biréfringent a été orienté de manière à pouvoir négliger la différence de chemin optique. Puis, le dichroïsme de l'objectif de microscope a été déterminé en utilisant une cartographie d'intensité sans perturbation de l'échantillon. La valeur du dichroïsme est définie en localisant la position de la frange sombre.

Des mesures interférométriques sont réalisées sur un échantillon fortement absorbant. En utilisant les résultats présentés dans les deux chapitres précédents nous avons vérifié qu'en orientant correctement la lame quart-d'onde et le polariseur ces mesures interférométriques sont effectivement proportionnelles à l'amplitude ou à la phase du changement de réflectivité.

De plus, la forme des échos acoustiques mesurés le long de chacun des domaines de mesures est étudiée à travers le calcul d'un coefficient de corrélation. Cela a permis de conclure que sur le domaine pour lequel le signal est uniquement dépendant de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ la forme des échos est bien identique. La forme des échos des différents signaux dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ est cependant légèrement différente de part et d'autre de la frange sombre. Cela met en évidence que la détermination du domaine de mesure de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ est très sensible à l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde, ce qui n'est pas le cas

pour la définition du domaine de mesure de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$. Par la suite, nous chercherons à détecter des vitesses de déplacement d'interface, et donc un signal interférométrique dépendant $\text{Im}(\Delta\xi(t))$, afin de localiser une source optoacoustique. En conséquence, ces mesures seront peu sensible à l'orientation de la lame-quart d'onde et du polariseur et seront alors facilement accessibles.

Ensuite des mesures sur un échantillon transparent ont été présentées. La détection interférométrique des oscillations Brillouin dans un échantillon a été montrée. Les oscillations sensibles à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sont comparées à la mesure réflectométrique. Nous avons conclu qu'elles sont effectivement en phase. La mesure dépendant de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ a été déterminée en utilisant un calcul de coefficient de corrélation pour la comparer à une mesure sensible à $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.

En conclusion, nous avons développé et caractérisé un interféromètre à chemin commun utilisant un seul cristal biréfringent. L'influence de la différence de chemin optique a été minimisée expérimentalement. Les conséquences du dichroïsme de l'objectif de microscope sont quantifiées. La mise en place de l'interféromètre a montré que son alignement est simple, de plus aucun asservissement n'est requis. L'utilisation d'un unique cristal biréfringent permet de s'affranchir de l'asservissement en température. Les points de fonctionnement sont uniquement dépendant de l'orientation du polariseur et de la lame quart-d'onde. Nous avons réussi à mesurer des signaux interférométriques dépendants de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$ sur des échantillons ayant une faible et une forte longueur de pénétration optique. La détermination des couples d'angles permettant ces mesures a aussi été réalisée. La prochaine étape consistera à effectuer une cartographie complète des oscillations Brillouin afin de déterminer complètement expérimentalement les domaines de mesures de $\text{Re}(\Delta\xi(t))$ et de $\text{Im}(\Delta\xi(t))$.

Nous avons montré la possibilité de détection d'ondes acoustiques créées en utilisant des couches métalliques comme transducteurs. L'étape suivante sera d'utiliser des nanoparticules d'or comme source optoacoustique. On montrera alors la possibilité de détecter en réflexion, en utilisant l'interféromètre développé, les ondes acoustiques générées par ces particules. Une cartographie en deux dimensions de déplacement d'interface, induit par

des ondes acoustiques, pourra être réalisée. Dans le cas de l'utilisation d'une nanoparticule comme transducteur, cette cartographie permettra de dimensionner et de localiser très précisément la nanoparticule métallique. Enfin, l'interféromètre développé pourrait également détecter les ondes acoustiques générées par des super réseaux. Toutefois, la fréquence acoustique de ces ondes est généralement de plusieurs centaines de gigahertz. Il faudrait adapter soit l'épaisseur du cristal de calcite soit utiliser un autre type de cristal biréfringent afin que la durée entre les impulsions référence et sonde soit inférieure à 3 ps. En effet, le retard de 3 ps empêche la détection des phénomènes physiques dont les fréquences sont supérieures à 150 GHz. Cet interféromètre s'inscrit dans la lignée des interféromètres à chemin commun utilisés en acoustique picoseconde. Il se distingue des autres par une stabilité remarquable, un alignement simple et son caractère entièrement passif. Cela permet à ce dispositif de pouvoir s'intégrer facilement dans les nombreuses utilisations de l'acoustique picoseconde.

Depuis 2008, l'équipe bordelaise se consacre activement à l'utilisation de l'acoustique picoseconde dans le but de déterminer les propriétés mécaniques de milieux biologiques. Une échographie cellulaire par ondes longitudinales a été réalisée [42] en utilisant une couche métallique comme transducteur acoustique. À long terme on pourra remplacer ce transducteur par des nanoparticules métalliques directement injectées dans la cellule. On pourra alors imager la réponse acoustique d'une particule en détectant les ondes grâce à l'interféromètre développé. La fréquence des ondes acoustiques est inversement proportionnelle à la taille des nanoparticules, ainsi, plus leur taille est petite plus la résolution de l'image sera grande. Il sera alors possible d'obtenir les propriétés mécaniques à l'intérieur de milieux biologiques à une échelle jamais atteinte jusqu'à présent.

Liste des symboles

β	coefficient de dilatation thermique
β_{kl}	composante du tenseur de dilatation
$\Delta \mathbf{E}(t)$	variation, induite par la perturbation, du vecteur du champ électrique en sortie de l'interféromètre
Δd	différence d'épaisseur de calcite traversée entre le trajet aller et retour
Δf	battement de fréquence entre les lasers pompe et sonde
ΔI	variation d'intensité
Δn	perturbation de l'indice du milieu par l'onde acoustique
$\Delta r(t)$	variation du coefficient de réflexion
Δt	décalage temporel
$\Delta T(z, t)$	variation de la température
Δt_w	temps entre deux échos acoustiques successifs
δ	profondeur de pénétration optique
$\Delta \xi(t)$	variation de la perturbation ξ entre deux instants séparés de Δt
δ_w	profondeur de pénétration optique dans le tungstène
η_0	amplitude de la déformation induite par l'impulsion laser
η	déformation élastique
$\hat{\phi}$	variation de l'orientation de la lame quart-d'onde autour de la frange sombre
$\hat{\theta}$	variation de l'orientation du polariseur autour de la frange sombre

λ	longueur d'onde
λ_p	longueur d'onde du laser pompe
λ_s	longueur d'onde du laser sonde
$\text{Im}(\Delta\xi(t))$	partie imaginaire de la variation complexe de champ électrique $\Delta\xi(t)$
$\text{Re}(\Delta\xi(t))$	partie réelle de la variation complexe de champ électrique $\Delta\xi(t)$
ω	pulsation
$\partial n/\partial\eta$	coefficient photoélastique
Φ	différence de phase entre deux impulsions traversant le cristal biréfringent
ϕ	angle de la lame quart-d'onde
ϕ_0	coordonnée de la frange sombre suivant l'orientation de la lame quart-d'onde
ρ	amplitude du changement du coefficient de réflectivité
$\sigma(z, t)$	contrainte totale
$\sigma_m(z, t)$	contrainte mécanique
$\sigma_{ij}^{\text{th}}(z, t)$	composante du tenseur de la contrainte thermique
τ	déphasage induit par la différence de chemin optique dans le cristal de calcite
$\mathbf{E}_{\text{out}}$	champ électrique en sortie de l'interféromètre
$\mathbf{E}_r$	champ électrique réfléchi de la sonde
$\mathbf{E}_{\text{in}}$	vecteur du champ électrique incident
θ	angle du polariseur
θ_0	coordonnée de la frange sombre suivant l'orientation du polariseur
$\underline{\Lambda}$	matrice de Jones d'une lame demi-onde orientée à 45°
$\underline{C}_a$	matrice de Jones du passage aller à travers le cristal
$\underline{C}_r$	matrice de Jones du passage retour à travers le cristal
$\underline{C}$	matrice de Jones du cristal biréfringent
$\underline{D}$	matrice représentative du dichroïsme de l'objectif de microscope
$\underline{M}$	matrice de Jones d'un miroir de réflectivité r_0

$\underline{P}(\theta)$	matrice de Jones d'un polariseur d'orientation θ
$\underline{Q}(\phi)$	matrice de Jones d'une lame quart-d'onde d'orientation ϕ
$\underline{R}(\gamma)$	matrice de rotation d'angle γ
$\underline{S}$	matrice modélisant la réponse de l'échantillon
φ	phase du changement du coefficient de réflectivité
ϱ	masse volumique
$\xi(t)$	perturbation du champ électrique réfléchi à l'instant t
$\xi(t + \Delta t)$	perturbation du champ électrique réfléchi à l'instant $t + \Delta t$
ζ	différence relative des coefficients de transmission de l'impulsion sonde et référence à travers l'objectif de microscope
a_{air}	amplitude du champ incident à l'interface air/matériau
a_{mat}	amplitude du champ transmis à l'interface air/matériau
a_{out}	amplitude du champ transmis à l'interface perturbé/non perturbé
B	module de compressibilité
b_{air}	amplitude du champ traversant l'interface matériau/air
b_{mat}	amplitude du champ incident à l'interface matériau/air
b_{out}	amplitude du champ incident à l'interface non perturbé/perturbé
C	contraste
c	vitesse de la lumière
C_v	capacité calorifique du matériau
C_{ijkl}	composante du tenseur d'élasticité
d	épaisseur du cristal biréfringent
d_1	épaisseur de calcite traversée lors du trajet aller
d_2	épaisseur de calcite traversée lors du trajet retour
dz	épaisseur de la perturbation locale du milieu par l'onde acoustique
e	épaisseur de la couche de tungstène

E_0	amplitude du champ électrique incident
E_{ref}	amplitude du champ électrique de l'impulsion référence
E_{sonde}	amplitude du champ électrique de l'impulsion sonde
$E_{r_0, \zeta}$	l'amplitude du champ électrique réfléchi sans perturbation de l'échantillon en présence du dichroïsme de l'objectif de microscope
E_{r_0}	amplitude du champ électrique réfléchi par l'échantillon non perturbé
f	taux de répétition du laser sonde
f_B	fréquence des oscillations Brillouin
$H(\omega)$	transformée de Fourier de la fonction d'Heaviside
$H(t)$	fonction d'Heaviside
I	intensité lumineuse
k_0	vecteur d'onde de l'impulsion sonde
n	indice de réfraction
n_f	indice de réfraction de l'axe optique rapide
n_s	indice de réfraction de l'axe optique lent
Q	énergie de l'impulsion optique
R	coefficient de réflexion optique à la surface du matériau
$r(t)$	coefficient de réflexion
r_0	coefficient de réflexion de l'échantillon non perturbé
r_1	coefficient de réflexion d'une onde lumineuse traversant l'interface air/matériau
r_2	coefficient de réflexion à l'interface non perturbé/perturbé
r_3	coefficient de réflexion à l'interface perturbé/non perturbé
r_{ac}	coefficient de réflexion acoustique
r_p	coefficient de corrélation
S	surface éclairée par l'impulsion incidente
t_1	coefficient de transmission d'une onde lumineuse traversant l'interface air/matériau

t_2	coefficient de transmission à l'interface non perturbé/perturbé
t_3	coefficient de transmission à l'interface perturbé/non perturbé
T_b	temps entre deux coïncidences
t_R	coefficient de transmission de l'impulsion référence à travers l'objectif de microscope
t_S	coefficient de transmission de l'impulsion sonde à travers l'objectif de microscope
$T_{\text{dilaté}}$	échelle temporelle des acquisitions
T_{physique}	échelle du temps physique
T_{pompe}	durée entre deux impulsions successives du laser pompe
T_{sonde}	durée entre deux impulsions successives du laser sonde
$u(z, t)$	déplacement suivant la direction z
v	vitesse
v_ϕ	vitesse de phase
$W(z, t)$	énergie absorbée à la profondeur z
z	variable d'espace suivant la normale à la surface de l'échantillon
Z_M	indédance acoustique du matériau
Z_S	impédance acoustique du substrat

Bibliographie

- [1] A. G. Bell. Selenium and photophone. *Nature*, 22 :500–503, 1880.
- [2] A. G. Bell. On the production and reproduction of sound by light. *Am. J. Sci.*, 20 :305–324, 1880.
- [3] A. G. Bell. Upon the production of sound by radiant energy. *Am. J. Sci.*, 21 :463–490, 1881.
- [4] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187 :493–494, 1960.
- [5] R. M. White. Generation of elastic waves by transient surface heating. *J. Appl. Phys.*, 34(12) :3559–3567, 1963.
- [6] C. V. Shank and E. P. Ippen. Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser. *Appl. Phys. Lett.*, 24(8) :373–375, 1974.
- [7] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, and J. J. Hauser. Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 53 :989–992, 1984.
- [8] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Phys. Rev. B*, 34 :4129–4138, 1986.
- [9] J. M. Halbout and C. L. Tang. Femtosecond interferometry for nonlinear optics. *Appl. Phys. Lett.*, 40(9) :765–767, 1982.
- [10] P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos, J. C. Gauthier, J. P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, and A. Antonetti. Space-time observation of an electron gas in SiO₂. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :1990–1993, 1994.
- [11] P. Martin, S. Guizard, Ph. Daguzan, G. Petite, P. D’Oliveira, P. Meynadier, and M. Perdrix. Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals. *Phys. Rev. B*, 55 :5799–5810, 1997.

- [12] F. Quéré, S. Guizard, and Ph. Martin. Time-resolved study of laser-induced breakdown in dielectrics. *Europhys. Lett.*, 56(1) :138, 2001.
- [13] V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, A. El-Khamhawy, and D. von der Linde. Multiphoton ionization in dielectrics : Comparison of circular and linear polarization. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :237403, 2006.
- [14] C. Sarpe, J. Köhler, T. Winkler, M. Wollenhaupt, and T. Baumert. Real-time observation of transient electron density in water irradiated with tailored femtosecond laser pulses. *New J. Phys.*, 14(7) :075021, 2012.
- [15] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, and E. Romatet. Interferometric detection of hypersound waves in modulated structures. *Prog. Nat. Sci.*, 6 :444–448, 1996.
- [16] D. H. Hurley and O. B. Wright. Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer. *Opt. Lett.*, 24(18) :1305–1307, 1999.
- [17] H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Picosecond ultrasonics. *IEEE J. Quantum Elect.*, 25(12) :2562–2569, 1989.
- [18] M. A. van Dijk, M. Lippitz, and M. Orrit. Detection of acoustic oscillations of single gold nanospheres by time-resolved interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :267406, 2005.
- [19] P. Zijlstra, A. L. Tchebotareva, J. W. M. Chon, M. Gu, and M. Orrit. Acoustic oscillations and elastic moduli of single gold nanorods. *Nano Lett.*, 8(10) :3493–3497, 2008.
- [20] H. Staleva and G. V. Hartland. Transient absorption studies of single silver nanocubes. *J. Phys. Chem. C*, 112(20) :7535–7539, 2008.
- [21] Y. Guillet, C. Rossignol, B. Audoin, G. Calbris, and S. Ravaine. Optoacoustic response of a single submicronic gold particle revealed by the picosecond ultrasonics technique. *Appl. Phys. Lett.*, 95 :061909, 2009.
- [22] A. Amziane, L. Belliard, F. Decremps, and B. Perrin. Ultrafast acoustic resonance spectroscopy of gold nanostructures : Towards a generation of tunable transverse waves. *Phys. Rev. B*, 83 :014102, 2011.
- [23] R. Marty, A. Arbouet, C. Girard, A. Mlayah, V. Paillard, V. K. Lin, S. L. Teo, and S. Tripathy. Damping of the acoustic vibrations of individual gold nanoparticles. *Nano Lett.*, 11 :3301–3306, 2011.
- [24] Y. Guillet, B. Audoin, M. Ferrié, and S. Ravaine. All-optical spectroscopy of a single nanoparticle-substrate contacts. *Phys. Rev. B.*, 86 :035456, 2012.

- [25] T. A. Major, A. Crut, B. Gao, S. S. Lo, N. Del Fatti, F. Vallee, and G. V. Hartland. Damping of the acoustic vibrations of a suspended gold nanowire in air and water environments. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15 :4169–4176, 2013.
- [26] L. Belliard, T. W. Cornelius, B. Perrin, L. Kacemi, N. and Becerra, O. Thomas, M. Eugenia Toimil-Molares, and M. Cassinelli. Vibrational response of free standing single copper nanowire through transient reflectivity microscopy. *J. Appl. Phys.*, 114(19) :193509, 2013.
- [27] C. Jean, L. Belliard, T.W. Cornelius, O. Thomas, M.E. Toimil-Molares, M. Cassinelli, L. Becerra, and B. Perrin. Direct observation of gigahertz coherent guided acoustic phonons in free-standing single copper nanowires. *J. Phys. Chem. Lett.*, 5(23) :4100–4104, 2014.
- [28] N. Del Fatti, C. Voisin, F. Chevy, F. Vallée, and C. Flytzanis. Coherent acoustic mode oscillation and damping in silver nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 110(23) :11484–11487, 1999.
- [29] J. H. Hodak, A. Henglein, and G. V. Hartland. Size dependent properties of Au particles : Coherent excitation and dephasing of acoustic vibrational modes. *J. Chem. Phys.*, 111(18) :8613–8621, 1999.
- [30] M. H. Kuok, H. S. Lim, S. C. Ng, N. N. Liu, and Z. K. Wang. Brillouin study of the quantization of acoustic modes in nanospheres. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :255502, 2003.
- [31] T. Bienville, J.-F. Robillard, L. Belliard, I. Roch-Jeune, A. Devos, and B. Perrin. Individual and collective vibrational modes of nanostructures studied by picosecond ultrasonics. *Ultrasonics*, 44(0) :e1289 – e1294, 2006.
- [32] J.-F. Robillard, A. Devos, and I. Roch-Jeune. Time-resolved vibrations of two-dimensional hypersonic phononic crystals. *Phys. Rev. B*, 76 :092301, 2007.
- [33] H. Sakuma, M. Tomoda, P. H. Otsuka, O. Matsuda, O. B. Wright, T. Fukui, K. Tomioka, and I. A. Veres. Vibrational modes of gas hexagonal nanopillar arrays studied with ultrashort optical pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 100(13) :131902, 2012.
- [34] D. Ségur, Y. Guillet, and B. Audoin. Intrinsic geometric scattering probed by picosecond optoacoustics in a cylindrical cavity : Application to acoustic and optical characterizations of a single micron carbon fiber. *Appl. Phys. Lett.*, 97(3) :031901, 2010.

- [35] T. Dehoux, N. Tsapis, and B. Audoin. Relaxation dynamics in single polymer microcapsules probed with laser-generated GHz acoustic waves. *Soft Matter*, 8 :2586–2589, 2012.
- [36] J.-Y. Duquesne and B. Perrin. Ultrasonic attenuation in a quasicrystal studied by picosecond acoustics as a function of temperature and frequency. *Phys. Rev. B*, 68 :134205, 2003.
- [37] O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda, and V. E. Gusev. Optical excitation and detection of picosecond acoustic pulses in liquid mercury. *Phys. Rev. B*, 78 :024303, 2008.
- [38] C. Rossignol, N. Chigarev, M. Ducousso, B. Audoin, G. Forget, F. Guillemot, and M. C. Durrieu. In vitro picosecond ultrasonics in a single cell. *Appl. Phys. Lett.*, 93 :123901, 2008.
- [39] B. Audoin, C. Rossignol, N. Chigarev, M. Ducousso, G. Forget, F. Guillemot, and M. C. Durrieu. Picosecond acoustics in vegetal cells : Non-invasive in vitro measurements at a sub-cell scale. *Ultrasonics*, 50(2) :202 – 207, 2010.
- [40] M. Abi Ghanem, T. Dehoux, O. F. Zouani, A. Gadalla, M. C. Durrieu, and B. Audoin. Remote opto-acoustic probing of single-cell adhesion on metallic surfaces. *J. Biophotonics*, 7(6) :453–459, 2014.
- [41] T. Dehoux, M. Abi Ghanem, O. F. Zouani, M. Ducousso, N. Chigarev, C. Rossignol, N. Tsapis, M. C. Durrieu, and B. Audoin. Probing single-cell mechanics with picosecond ultrasonics. *Ultrasonics*, 56(0) :160 – 171, 2015.
- [42] T. Dehoux, M. Abi Ghanem, O. F. Zouani, J. M. Rampnoux, Y. Guillet, S. Dilhaire, M. C. Durrieu, and B. Audoin. All-optical broadband ultrasonography of single cells. *Sci. Rep.*, 5 :8650, 2015.
- [43] A. Abbas. *Développement d’un dispositif pompe-sonde hétérodyne : application à l’imagerie en acoustique picoseconde*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2014.
- [44] S. Dilhaire, W. Claeys, J-M. Rampnoux, and C. Rossignol. Optical heterodyne sampling device - brevet international WO2006FR02384 20061020, FR20050010776 20051021, 2005.
- [45] A. Bartels, F. Hudert, C. Janke, T. Dekorsy, and 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.

- [46] S. Dilhaire, G. Pernot, G. Calbris, J. M. Rampnoux, and S. Grauby. Heterodyne picosecond thermoreflectance applied to nanoscale thermal metrology. *J. Appl. Phys.*, 110(11) :114314, 2011.
- [47] A. Abbas, Y. Guillet, J.-M. Rampnoux, P. Rigail, E. Mottay, B. Audoin, and S. Dilhaire. Picosecond time resolved opto-acoustic imaging with 48 MHz frequency resolution. *Opt. Express*, 22(7) :7831–7843, 2014.
- [48] E. Romatet. *Réalisation et applications d'un dispositif d'acoustique picoseconde*. PhD thesis, Université Paris 6, 1996.
- [49] D. R. Lide. *CRC Handbook of chemistry and Physics*. CRC Press, 2005.
- [50] C. Rossignol. *Etude théorique et numérique d'expériences d'acoustique picoseconde*. PhD thesis, Université Paris 6, 2000.
- [51] S. Laborde. *Acoustique picoseconde dans les multicouches métalliques*. PhD thesis, Université Pierre & Marie Curie, 2006.
- [52] R. Legrand. *Acoustique - étude et utilisation de nouvelles sources et transducteurs aux longueurs d'onde nanométriques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris 6, 2013.
- [53] H. Michel. *Imagerie pompe-sonde femtoseconde : Application à l'étude thermique de nanomatériaux pour la microélectronique*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2008.
- [54] R. Gebs, G. Klatt, C. Janke, T. Dekorsy, and A. Bartels. High-speed asynchronous optical sampling with sub-50 fs time resolution. *Opt. Express*, 18(6) :5974–5983, 2010.
- [55] D. G. Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris, R. Merlin, and S. R. Phillpot. Nanoscale thermal transport. *J. Appl. Phys.*, 93(2) :793–818, 2003.
- [56] Y. Ezzahri, S. Grauby, J.-M. Rampnoux, H. Michel, G. Pernot, W. Claeys, S. Dilhaire, C. Rossignol, G. Zeng, and A. Shakouri. Coherent phonons in Si/SiGe superlattices. *Phys. Rev. B*, 75(19) :195309, 2007.
- [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, and N. Mingo. Precise control of thermal conductivity at the nanoscale through individual phonon-scattering barriers. *Nat. Mater.*, 9(6) :491–495, 2010.

- [58] T. Dehoux. *Génération et détection par couplage élasto-optique tridimensionnel de champs acoustiques picosecondes diffractés*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2007.
- [59] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Picosecond interferometric technique for study of phonons in the brillouin frequency range. *Opt. Commun.*, 60(1–2) :55 – 58, 1986.
- [60] P. Ruello M. Edely P. Babilotte C. Mechri J.-M. Breteau D. Mounier, E. Morosov and V. Gusev. Application of transient femtosecond polarimetry / ellipsometry technique in picosecond laser ultrasonics. *J. Phys. : Conf. Ser.*, 92 :012179, 2007.
- [61] D. Mounier, E. Morozov, P. Ruello, J.-M. Breteau, P. Picart, and V. Gusev. Detection of shear picosecond acoustic pulses by transient femtosecond polarimetry. *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, 153(1) :243–246, 2008.
- [62] Denis Mounier, Pascal Picart, Philippe Babilotte, Pascal Ruello, Jean-Marc Breteau, Thomas Pézeril, Gwenaëlle Vaudel, Mansour Kouyaté, and Vitalyi Gusev. Jones matrix formalism for the theory of picosecond shear acoustic pulse detection. *Opt. Express*, 18(7) :6767–6778, Mar 2010.
- [63] A. V. Scherbakov, M. Bombeck, J. V. Jäger, A. S. Salasyuk, T. L. Linnik, V. E. Gusev, D. R. Yakovlev, A. V. Akimov, and M. Bayer. Picosecond opto-acoustic interferometry and polarimetry in high-index gaas. *Opt. Express*, 21(14) :16473–16485, Jul 2013.
- [64] R. L. Whitman and A. Korpel. Probing of acoustic surface perturbations by coherent light. *Appl. Opt.*, 8(8) :1567–1576, 1969.
- [65] J. Higuët, T. Valier-Brasier, T. Dehoux, and B. Audoin. Beam distortion detection and deflectometry measurements of gigahertz surface acoustic waves. *Rev. Sci. Instrum.*, 82(11) :114905, 2011.
- [66] J.E. Rothenberg. Observation of the transient expansion of heated surfaces by picosecond photothermal deflection spectroscopy. *Opt. Lett.*, 13(9) :713–715, 1988.
- [67] O. B. Wright and K. Kawashima. Coherent phonon detection from ultrafast surface vibrations. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :1668–1671, 1992.
- [68] O. B. Wright. Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver. *Phys. Rev. B*, 49 :9985–9988, 1994.
- [69] R. Salenbien, R. Côte, J. Goossens, P. Limaye, R. Labie, and 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(9) :093104, 2011.
- [70] N. Chigarev, C. Rossignol, and B. Audoin. Surface displacement measured by beam distortion detection technique : Application to picosecond ultrasonics. *Rev. Sci. Instrum.*, 77(11) :114901, 2006.
- [71] Y. Li, Q. Miao, A. V. Nurmikko, and H. J. Maris. Picosecond ultrasonic measurements using an optical cavity. *J. Appl. Phys.*, 105(8) :083516, 2009.
- [72] C. Rossignol, B. Perrin, S. Laborde, L. Vandenbulcke, M. I. De Barros, and P. Djemia. Nondestructive evaluation of micrometric diamond films with an interferometric picosecond ultrasonics technique. *J. Appl. Phys.*, 95 :4157, 2004.
- [73] O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda, and V. E. Gusev. Optical excitation and detection of picosecond acoustic pulses in liquid mercury. *Phys. Rev. B*, 78 :024303, 2008.
- [74] Y.-C. Shen and P. Hess. Real-time detection of laser-induced transient gratings and surface acoustic wave pulses with a michelson interferometer. *J. Appl. Phys.*, 82(10) :4758–4762, 1997.
- [75] D. H. Hurley, R. Lewis, O. B. Wright, and O. Matsuda. Coherent control of gigahertz surface acoustic and bulk phonons using ultrafast optical pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 93(11) :113101, 2008.
- [76] S. Bramhavar, B. Pouet, and T. W. Murray. Superheterodyne detection of laser generated acoustic waves. *Appl. Phys. Lett.*, 94(11) :114102, 2009.
- [77] J. V. Knuuttila, P. T. Tikka, and M. M. Salomaa. Scanning michelson interferometer for imaging surface acoustic wave fields. *Opt. Lett.*, 25(9) :613–615, 2000.
- [78] C. J. K. Richardson, M. J. Ehrlich, and J. W. Wagner. Interferometric detection of ultrafast thermoelastic transients in thin films : theory with supporting experiment. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16 :1007–1015, 1999.
- [79] 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*. PhD thesis, Université de Bordeaux 1, 2003.
- [80] M. Nikoonahad, S. Lee, and H. Wang. Picosecond photoacoustics using common-path interferometry. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :514, 2000.

- [81] A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, and A. Lemaître. Terahertz coherent acoustic experiments with semiconductor superlattices. *App. Phys. Lett.*, 99(19) :191908, 2011.
- [82] M. F. Pascual-Winter, A. Fainstein, B. Jusserand, B. Perrin, and A. Lemaître. Spectral responses of phonon optical generation and detection in superlattices. *Phys. Rev. B*, 85 :235443, 2012.
- [83] T. Tachizaki, T. Muroya, O. Matsuda, Y. Sugawara, D. H. Hurley, and O. B. Wright. Scanning ultrafast Sagnac interferometry for imaging two-dimensional surface wave propagation. *Rev. Sci. Instrum.*, 77(4) :043713, 2006.
- [84] M. J. LaGasse, D. Liu-Wong, J. G. Fujimoto, and H. A. Haus. Ultrafast switching with a single-fiber interferometer. *Opt. Lett.*, 14(6) :311–313, 1989.
- [85] E. Tokunaga, T. Kobayashi, and A. Terasaki. Frequency-domain interferometer for femtosecond time-resolved phase spectroscopy. *Opt. Lett.*, 17(16) :1131–1133, 1992.
- [86] M. A. van Dijk, M. Lippitz, D. Stolwijk, and M. Orrit. A common-path interferometer for time-resolved and shot-noise-limited detection of single nanoparticles. *Opt. Express*, 15(5) :2273–2287, 2007.
- [87] H.-N. Lin, R. J. Stoner, H. J. Maris, and J. Tauc. Phonon attenuation and velocity measurements in transparent materials by picosecond acoustic interferometry. *J. Appl. Phys.*, 69(7) :3816–3822, 1991.
- [88] M. A. van Dijk. *Nonlinear-optical studies of single gold nanoparticles*. PhD thesis, Université de Leiden, 2007.
- [89] G. Ghosh. Dispersion-equation coefficients for the refractive index and birefringence of calcite and quartz crystals. *Opt. Commun.*, 163(1–3) :95–102, 1999.
- [90] O. Schubert, M. Eisele, V. Crozatier, N. Forget, D. Kaplan, and R. Huber. Rapid-scan acousto-optical delay line with 34 kHz scan rate and 15 as precision. *Opt. Lett.*, 38(15) :2907–2910, 2013.
- [91] D. Brida, C. Manzoni, and G. Cerullo. Phase-locked pulses for two-dimensional spectroscopy by a birefringent delay line. *Opt. Lett.*, 37(15) :3027–3029, 2012.
- [92] J. Réhault, M. Maiuri, C. Manzoni, D. Brida, J. Helbing, and G. Cerullo. 2D IR spectroscopy with phase-locked pulse pairs from a birefringent delay line. *Opt. Express*, 22(8) :9063–9072, 2014.
- [93] R. C. Jones. A new calculus for the treatment of optical systems. *J. Opt. Soc. Am.*, 31(7) :488–493, 1941.

- [94] F. L. Pedrotti and L. S. Pedrotti. *Introduction to Optics*. Prentice-Hall International, Inc., 1993.
- [95] V. E. Gusev and A. Karabutov. *Laser optoacoustics*. 1993.
- [96] B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, and J.-C. Jeannet. Interferometric detection in picosecond ultrasonics. *Physica B*, 263–264(0) :571–573, 1999.
- [97] D. W. Prine. Synthetic aperture ultrasonic imaging. In *Proc. Eng. Appl. Holography Symp.*, volume 287, 1972.
- [98] K. Mayer, R. Marklein, K. J. Langenberg, and T. Kreutter. Three-dimensional imaging system based on fourier transform synthetic aperture focusing technique. *Ultrasonics*, 28(4) :241–255, 1990.
- [99] L.J. Busse. Three-dimensional imaging using a frequency-domain synthetic aperture focusing technique. *IEEE T. Ultrason. Ferr.*, 39(2) :174 –179, 1992.
- [100] D. Lévesque, A. Blouin, C. Néron, and J.-P. Monchalin. Performance of laser-ultrasonic f-saft imaging. *Ultrasonics*, 40(10) :1057 – 1063, 2002.