



**HAL**  
open science

# Confinement élastique au sein de nanostructures : le nanofil isolé, un système modèle

Cyril Jean

► **To cite this version:**

Cyril Jean. Confinement élastique au sein de nanostructures : le nanofil isolé, un système modèle. Physique [physics]. UPMC - Paris 6 Sorbonne Universités, 2017. Français. NNT: . tel-01665881

**HAL Id: tel-01665881**

**<https://theses.hal.science/tel-01665881>**

Submitted on 17 Dec 2017

**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.

**UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

**ÉCOLE DOCTORALE SMAER ED391**

Institut des NanoSciences de Paris

# **Confinement élastique au sein de nanostructures : le nanofil isolé, un système modèle**

Par Cyril Jean

Thèse de doctorat de Physique

Dirigée par Laurent Belliard

Présentée et soutenue publiquement le 23 juin 2017

**Devant le jury composé de :**

<i>Rapporteurs :</i>	Michel Orrit	- PR Leiden University (Leiden)
	Natalia Del Fatti	- PR UCBL (ILM, Lyon)
<i>Directeur de thèse :</i>	Laurent Belliard	- PR UPMC (INSP, Paris)
<i>Examineurs :</i>	Yannick Guillet	- MCF UB1 (I2M, Bordeaux)
	Olivier Thomas	- PR UAM (IM2NP, Marseille)
	Régis Marchiano	- PR UPMC (Institut d'Alembert, Paris)



# Remerciements

Je tiens d'abord à remercier les deux rapporteurs de ma thèse, Natalia Del Fatti et Michel Orrit. Je suis honoré d'avoir été lu par deux grands chercheurs comme vous. C'est également un plaisir de compter parmi les membres du jury Olivier Thomas, Régis Marchiano et Yannick Guillet. Merci de vous être déplacé de l'autre bout de l'Europe (ou de l'autre bout de la grille de Jussieu) pour participer à la discussion.

Il a aussi participé au jury mais de façon un peu particulière puisqu'il est mon directeur de thèse. Laurent, je te remercie donc infiniment pour ces trois années. Depuis le TP de salle blanche de M2, où j'ai découvert ta passion de la pédagogie et tes qualités de brillant expérimentateur, jusqu'à ces derniers mois de rédaction en passant par mes choix controversés d'hôtels à Francfort, tu as toujours été d'un soutien bienveillant. Tu m'as formé puis tu m'as accompagné en trouvant la bonne autonomie à me laisser ! Merci. Ta disponibilité, ton optimisme et tes qualités humaines font qu'il est extrêmement agréable de travailler avec toi. Je souhaiterais aussi remercier Bernard Perrin. Tu n'as pas participé officiellement à l'encadrement de cette thèse mais j'ai beaucoup profité de ta sagesse ! Merci d'avoir partagé toutes tes connaissances sur le monde merveilleux de la recherche académique, de m'avoir permis de participer à deux belles semaines ~~de vacances au ski~~ d'école d'hiver aux Houches, de m'avoir aidé dans les premiers calculs de la thèse et pour toutes les discussions d'après 19h30 !

Je remercie d'ailleurs le « laboratoire d'excellence » Matisse porté par « l'initiative d'excellence » Sorbonne Universités (à ne pas confondre avec Sorbonne Université qui est le nom de la fusion entre l'université Paris-Sorbonne et l'université Pierre-et-Marie-Curie qui résultaient elles-mêmes de l'éclatement de l'université de Paris après mai 1968) pour avoir financé cette école d'hiver dans le cadre d'un choc de simplification éclatant. J'en profite aussi pour remercier l'UPMC (suite à un fléchage par l'ENS d'un financement ministériel, toujours dans un soucis de choc de simplification) d'avoir très grassement financé ces recherches avec un contrat doctoral avec mission d'enseignement. Puisque j'en suis aux financements, je remercie l'INSP et son directeur, Christophe Testelin. Malgré le tarissement des financements récurrents, j'ai pu bénéficier de quelques milliers d'euros par an pour des missions ou l'entretien des laser grâce à la politique du laboratoire. J'ai d'ailleurs beaucoup apprécié pouvoir participer aux conseils du laboratoire. Mes passions inavouables pour la lecture de rapports et les questions de politiques d'enseignements supérieur et de recherche ont ainsi pu être assouvies !

Je souhaite ensuite remercier toutes les personnes qui ont participé aux travaux présentés dans cette thèse. Merci à Éric avec qui j'ai commencé à travailler en montant la manip pompe-sonde sur le microscope. Qu'il s'agisse de faire du ski, d'aller courir le vendredi midi,

---

de distiller les derniers potins du labo ou de râler sur l'organisation de l'ESR, c'était toujours un vrai plaisir d'échanger avec toi! Merci à Loïc, qui se démène en salle blanche. Quelques uns des objets de cette thèse sont les tiens. Merci aussi à Mélanie pour les dépôts que tu as réalisés! Je souhaite aussi remercier Serge, c'est grâce aux LabView que tu développes que j'ai pu me consacrer beaucoup plus à la physique de mes objets qu'aux problèmes d'interfaçage. Je veux aussi remercier Thomas Cornélius, qui a toujours lu attentivement nos papiers. Tes remarques étaient toujours pertinentes et ont permis d'améliorer mes premiers jets! J'espère qu'on aura l'occasion de se rencontrer. Merci à nos collaborateurs en Allemagne : Loïc, Eugenia et Marco. Thank you Eugenia, I really enjoyed my short stay in Darmstadt! Merci aussi à nos collaborateurs à Grenoble, Marie-Ingrid et Sara. J'espère qu'on finira par publier ce papier sur les systèmes cœur/coquille. Merci également à Frédéric qui a lutté sur les dernières simulations d'éléments finis de cette thèse!

Sans soutien à la recherche, il n'y a pas de recherche. J'ai eu la chance d'interagir avec beaucoup de personnes efficaces à l'administration du laboratoire. Merci à Cindy, Betty, Valérie et Myriam à la gestion et au magasin. Il y a eu beaucoup de chamboulements à la gestion sur ces trois années mais j'ai toujours pu partir en mission, faire passer les commandes ou trouver des piles boutons CR2032 dans de bonnes conditions grâce à vous! Merci aussi à Aurélia, au secrétariat pour ma dernière année. Merci à Stéphanie, au secrétariat au début de ma thèse. Tu as participé à mon bon accueil au laboratoire. Ta gentillesse et ta bienveillance m'ont marqué. J'étais triste quand tu es partie dans d'assez mauvaises conditions. Merci aussi à Cécile à la communication. Désolé d'avoir un peu tardé à écrire mon fait d'actu! Merci aussi à toi pour l'organisation de la Fête de la Science et du café gourmand du lundi. Merci à Richard qui a repris l'organisation du café gourmand!

Comme je parle de la Fête de la Science, je voudrais remercier Danièle avec qui j'ai tenu le stand de l'équipe pendant deux ans. De l'épisode LiFi aux journées glaciales sur la dalle de Jussieu, en passant par les déboires de nos diodes à quadrants, c'était vraiment une belle expérience de participer à cette animation scientifique! C'est enrichissant et stimulant, et comme j'aime le contact avec les gens et les enfants pour parler de sciences et de techniques, j'étais comme un poisson dans l'eau. J'espère que des plus jeunes reprendront le relais quand tu partiras! J'en profite pour te remercier pour ta gentillesse, tes rires qui illuminent le couloir et les diverses gourmandises que tu as pu rapporter de l'Auvergne. Je remercie également tous les autres membres permanents de l'équipe acoustique de l'INSP et du laboratoire avec qui j'ai apprécié interagir. Bon courage pour la suite.

Les lignes défilent mais je dois encore remercier énormément de personnes! J'ai eu la chance d'enseigner en licence pendant cette thèse. Merci à Jérôme Tignon qui m'a permis de réparer

---

une boulette obscure d'UFR au moment de la candidature. Merci à Damien Leborgne, Sophie Hameau, Sandra Ninet et Anna Levy qui étaient responsables de l'UE Énergie et Entropie dans laquelle j'ai principalement enseigné. Vous fournissez une énorme quantité de travail pour que tout se passe bien. Merci à mes étudiants, vos petits messages en fin de semestre ou les boîtes de Pim's® que vous m'avez offertes me faisaient bien plus plaisir que n'importe quelle citation supplémentaire sur Google Scholar !

Je voudrais aussi remercier quelques uns des enseignants qui ont marqué mon cursus : Rozenn, M. Fontova, M. Délas (j'ai toujours le Cohen-Tannoudji !), M. Gissot (j'essaie toujours de penser local pour agir global!), M. Hannachi (ma vie est toujours aussi fortuite!) et M. Colin. Par votre énergie, votre gentillesse, votre investissement, votre culture, votre humour, vous m'avez donné le goût de la connaissance. Merci. Merci aux voisines à Castanet : Ghislaine et Marie. Merci à Jérémy pour les après-midis à 32 courses. Merci à mes chefs au cours de mes stages, notamment Myriam. Merci à tous les collègues, devenus parfois amis, rencontrés au cours de ces stages. Ces remerciements ne seraient pas complets si je ne remerciais pas les collègues de la team « salle de convivialité ». Merci à Lise, Pierre-Yves, Romain, Mattia, Suzanne, Houda, Nathalie, Lounès, Céline, Vivien, Gerbold et tous les doctorants adeptes de la pause café de 13h ou 16h avec une petite pensée particulière pour mes co-bureaux anciens et présents : Antoine, Sébastien et Camille. Bon courage à tous pour la rédaction, les concours de l'enseignement ou la recherche de postdoc ! Ce fut un plaisir de râler ensemble, de partager gâteaux, raclettes, bières, crêpes, cafés et globalement tout ce qui se boit ou se mange.

J'aimerais aussi remercier particulièrement quelques anciens de l'équipe et du laboratoire. Merci à Diégo et Juliette pour leur avis éclairé en début de thèse. En vous écrivant, je ne pensais pas avoir visé aussi juste (gros conseil à tous les potentiels futurs doctorants : essayez de rentrer en contact avec des doctorants anciens ou actuels de votre équipe d'accueil). La recherche publique ferait un grand pas en laissant plus de place à des gens jeunes, motivés, dynamiques et brillants (scientifiquement autant qu'humainement!) comme vous ! J'espère voir un jour un papier « A revolution in acoustic manipulation » par D. Baresch auteur unique dans Nature et un « Soundproofing liquid foam » dans Science par J. Pierre. T'inquiète Bruno, je t'oublie pas ! J'espère aussi que tu deviendras une rockstar du jeu de la Science.

C'est par mes amis et ma famille que je veux terminer ces remerciements. Je me rends compte à quel point j'ai les meilleurs amis du monde. Merci pour toutes les discussions et les échanges toujours passionnés et passionnants qui m'ont construit, les aventures cyclistes, pédestres, aquatiques (Team Bébés Évian représente!), alcoolisées ou studieuses à Toulouse, Paris, Marseille, Londres, Manchester, Toulon, Ferret, Vancouver, Bruxelles, en Irlande, à Vieu Boucau ou New-York. Merci aussi de m'avoir soutenu dans les épreuves de la vie. Vous êtes

---

parfois à cinq minutes de chez moi et parfois à quinze heures d'avions mais j'ai toujours une pensée pour vous. J'ai une petite pensée particulière pour Célia et Camille qui me supportent depuis respectivement 23 et 10 ans (mais une année à me supporter en spé ça vaut au moins 10 ans)! À côté des amis, j'ai une toute petite famille mais quelle famille! Maman, Arnaud et Aymeric. Merci à tous les trois. Si je suis fier de la personne que je suis devenue c'est grâce à toi Maman. Et à Papa. C'est dommage qu'il ne puisse pas voir la fin de mes études, c'est globalement parce qu'il me faisait calculer le temps d'arriver au ski sur l'autoroute avec les bornes kilométriques que je suis devenu scientifique... Et c'est grâce à ton abonnement Télérama et ta culture que je suis un scientifique qui aime le cinéma, les questions politiques et de société... Merci à Arnaud et Aymeric pour les discussions et les trolls toujours enflammés, les vacances, les parties de Mario Kart épuisantes (surtout celles où je ne suis pas « dernier de nous »!) et les pèlerinages annuels dans le « Mordor » (surtout les années des championnats d'athétisme où les allemands sont sur le podium). Merci Arnaud d'avoir été bêta-testeur pot de thèse et désolé de t'avoir abandonné toi et les boulangères ces derniers mois pour le déjeuner « convivial ». Merci Aymeric pour les live tweets enflammés pendant les débats présidentiels, ton apaisement communicatif, un futur merci pour tous les certificats médicaux et vaccins que tu nous feras les trente prochaines années. En tout cas, je suis trop fier de mes deux petits frères. Et c'est par la plus belle synthèse de la famille et de l'amitié que je termine ces remerciements. Que d'aventures depuis le verre de Saké du chinois canonique! Merci Frances de partager un petit bout de ta vie avec moi. Des réveils difficiles du matin à nos défis de trails en montagne en passant par l'affaire de la « chaussure dans l'eau » ou la pneumonie dans la tempête des crêtes vosgiennes, c'est une aventure sans cesse renouvelée et excitante qu'on vit.

# Table des matières

Remerciements	i
Introduction	1
<b>1 Propriétés acoustiques des nano-objets</b>	<b>7</b>
I.1 Équation fondamentale de l'élastodynamique des milieux solides continus . . . . .	8
I.1.1 Tenseur des déformations . . . . .	8
I.1.2 Tenseur des contraintes . . . . .	9
I.1.3 Relation fondamentale de la dynamique . . . . .	10
I.2 Loi de Hooke . . . . .	10
I.3 Équation de Navier . . . . .	11
I.4 Guide d'onde cylindrique . . . . .	14
I.4.1 Ondes de compression . . . . .	18
I.4.2 Ondes de torsion et de flexion . . . . .	23
<b>2 Le nanofil, un système modèle</b>	<b>25</b>
II.1 Montage expérimental . . . . .	26
II.2 Fabrication des nanofils de cuivre . . . . .	29
II.3 Réponse acoustique d'un nanofil unique . . . . .	30
II.3.1 Excitation . . . . .	31
II.3.2 Détection . . . . .	32
II.4 Une géométrie auto-suspendue . . . . .	33
II.4.1 Fabrication des tranchées . . . . .	33
II.4.2 Amélioration du confinement acoustique . . . . .	34
II.5 Nanofils poreux et alliages . . . . .	37
II.5.1 Fabrication . . . . .	38
II.5.2 Premières observations . . . . .	40
II.5.3 Alliages : moyennage des propriétés élastiques . . . . .	42
II.5.4 Loi d'échelle pour les propriétés élastiques . . . . .	44
II.6 Nanofils cœur/coquille . . . . .	48
II.6.1 Modèle semi-analytique d'un cylindre infini cœur/coquille . . . . .	48
II.6.2 Fabrication des nanofils cœur/coquille . . . . .	51
II.6.3 Mesures d'acoustique picoseconde sur des nanofils Ge@Si . . . . .	52
II.6.4 Estimation de l'épaisseur de la coquille de silicium . . . . .	54
<b>3 Propagation des phonons acoustiques dans des guides d'ondes nanométriques</b>	<b>59</b>
III.1 Modification du montage expérimental . . . . .	61
III.2 Propagation d'un paquet d'onde gaussien en géométrie axisymétrique . . . . .	62
III.3 Nanofils de cuivre . . . . .	65
III.3.1 Modes propres . . . . .	67

III.3.2	Propagation du mode de respiration . . . . .	70
III.3.3	Propagation du premier mode longitudinal . . . . .	72
III.4	Ponts d'or nanométriques . . . . .	75
III.4.1	Fabrication des poutres d'or nanométriques . . . . .	76
III.4.2	Étude des modes propres des nanopoutres d'or . . . . .	78
III.4.2.1	Mode haute fréquence . . . . .	79
III.4.2.2	Mode basse fréquence . . . . .	81
III.4.3	Propagation contrapropageante dans les nanopoutres d'or . . . . .	84
III.4.3.1	Effet du vecteur d'onde central . . . . .	86
III.4.3.2	Effet de la courbure de la relation de dispersion . . . . .	87
III.4.3.3	Effet de la pente de la relation de dispersion . . . . .	88
III.4.3.4	Effet de la fréquence de coupure de la relation de dispersion . . . . .	88
III.4.4	Application à l'identification sans ambiguïté des modes . . . . .	89
<b>4</b>	<b>Émission d'ondes acoustiques par des nanofils de cuivre : vers des nano-</b>	
	<b>sources acoustiques</b>	<b>97</b>
IV.1	Système étudié : nanofils de cuivre sur membranes de silicium . . . . .	100
IV.2	Expériences de spectroscopie pompe-sonde . . . . .	102
IV.2.1	Dispositif expérimental . . . . .	102
IV.2.2	Étude en réflectivité : modes de respiration confinés . . . . .	104
IV.2.3	Étude en transmission : génération d'ondes longitudinales par le nanofil . . . . .	106
IV.2.3.1	Modèle du silicium isotrope . . . . .	109
IV.3	Différences finies dans le domaine temporel . . . . .	111
IV.4	Un transducteur de fréquence « accordable » . . . . .	112
IV.5	Caractéristiques du champ acoustique rayonné . . . . .	116
IV.6	Approche inverse : excitation d'un nanofil par une onde acoustique . . . . .	118
<b>5</b>	<b>De l'AFM à la microscopie acoustique de résolution nanométrique</b>	<b>123</b>
V.1	Principe . . . . .	124
V.2	Montage expérimental . . . . .	127
V.3	Caractéristiques du champ acoustique . . . . .	129
V.3.1	Étude temporelle . . . . .	129
V.3.2	Insensibilité au positionnement de la pompe . . . . .	130
V.3.3	Longueur d'onde acoustique . . . . .	131
V.3.4	Cartographie spatio-temporelle . . . . .	133
V.3.5	Simulations par éléments finis . . . . .	133
	<b>Conclusion</b>	<b>137</b>
<b>A</b>	<b>Relations de dispersion : éléments finis</b>	<b>141</b>
I.1	Module, géométrie et matériau . . . . .	141
I.2	Paramètres et variables . . . . .	142
I.3	Conditions aux limites et étude paramétrique . . . . .	143
I.4	Post-traitement et récupération des résultats . . . . .	143

---

<b>B Impédances acoustiques</b>	<b>145</b>
<b>C Publications</b>	<b>147</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>164</b>
<b>Résumé</b>	<b>189</b>



# Introduction

La mécanique des milieux continus est une discipline de la physique et de la mécanique classique qui s’est particulièrement développée aux XVIII-ième et XIX-ième siècles. Elle repose sur les travaux de Navier[165] (1785-1836), Cauchy[36, 37] (1789-1857), d’Alembert[53] (1717-1783), Poisson[186] (1781-1840), Saint-Venant[55] (1797-1886) ou Green[82] (1793-1841) entre autres. Le corpus d’équations qui la compose permet de décrire et de prédire de très nombreux phénomènes au sein desquels la mécanique des ondes dans les solides élastiques occupe une place de choix.

Cette physique des ondes mécaniques dans les milieux condensés fait partie intégrante de l’acoustique physique puisque les ondes acoustiques ne se limitent pas aux sons audibles par l’être humain dans l’air. En effet, nous n’entendons des vibrations de l’air qu’entre environ 20 Hz et 20 kHz lorsque ces vibrations excitent nos cellules ciliées de l’oreille interne[11]. Mais les vibrations dans les solides peuvent exister à des fréquences qui vont de quelques millihertz pour certains séismes ou déformations de l’écorce terrestre[216] à plusieurs térahertz pour les oscillations thermiques[141]. Une force de la physique est d’offrir une description unifiée pour tous ces phénomènes (Figure 1) de vibrations mécaniques qui se transmettent à travers un milieu matériel (Figure 2).

Aux plus basses fréquences, on rencontre ainsi les vibrations géologiques, ou sismiques, contre lesquelles les ingénieurs de l’interféromètre gravitationnel LIGO ont dû développer des trésors d’ingéniosité afin de pouvoir observer les fameuses ondes gravitationnelles[3]. Lorsque la fréquence augmente, au-delà des fréquences audibles, dans le mégahertz, on parlera d’ultrasons dont les applications médicales sont innombrables, qu’il s’agisse d’imagerie

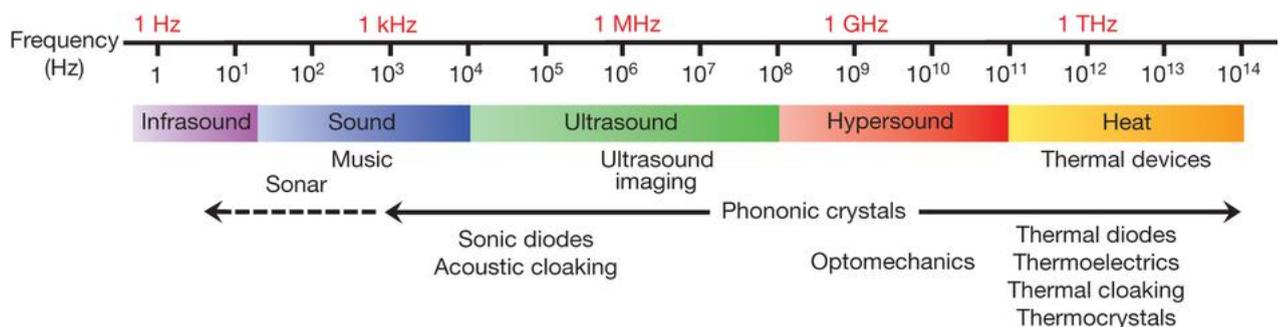


FIGURE 1: Comme pour les ondes électromagnétiques pour lesquelles on est habitué au spectre en fréquences ou en longueurs d’ondes, il est possible de présenter un « spectre phononique » selon la terminologie du travail de M. Maldovan dont est extrait cette figure[141].

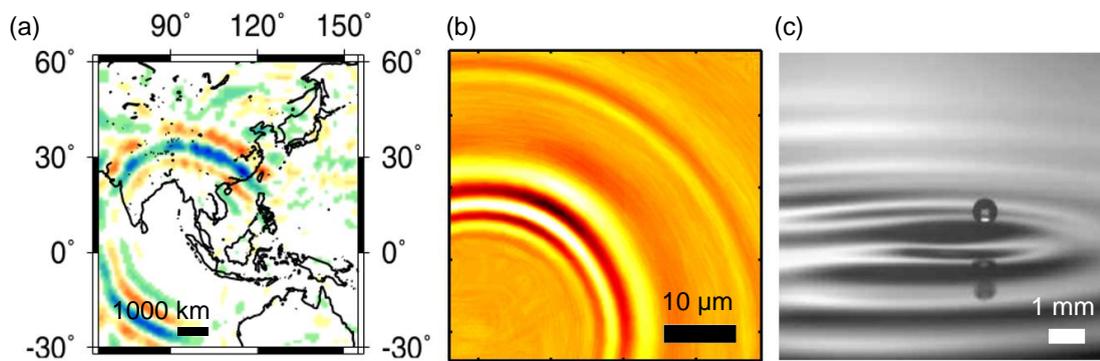


FIGURE 2: Mise en évidence de l'invariabilité des lois de la physique de la propagation des ondes mécaniques dans les milieux élastiques. Les trois Figures représentent à des échelles différentes des ondes de surfaces. (a) Figure extraite d'une étude sur la propagation des ondes sismiques du séisme de Sumatra-Andaman du 26 décembre 2004[126]. Simulation par retournement temporel. (b) Figure extraite d'une étude sur la propagation d'ondes de surface sur une couche mince de tungstène déposée sur du silicium[2]. Expérience pompe-sonde asynchrone. (c) Figure extraite d'une étude sur le rebondissement de gouttelettes d'eau à la surface de l'eau qui sert d'analogie macroscopique de la mécanique quantique[48]. Photographie.

avec l'échographie[214], de traitements grâce aux ultrasons fortement focalisés[114] ou de délivrance localisée de médicaments[136]. C'est également dans la gamme du mégahertz qu'on réalise les contrôles non-destructifs d'équipements industriels, du combustible nucléaire[32] à l'industrie aéronautique[112]. De nombreux physiciens de la matière molle s'intéressent aussi à cette gamme de fréquences acoustiques car il est possible de piéger et de contrôler des objets de l'ordre de  $100\ \mu\text{m}$ [10, 192] et peut-être un jour de développer des pinces acoustiques pour des objets d'intérêt biologique. Entre 100 MHz et 1 THz, on commence à préférer le terme de phonons pour décrire les vibrations mécaniques[235]. Au-delà du térahertz, on parlera de chaleur avec des dispositifs comme les diodes thermiques[40] ou des études sur le camouflage thermique[200] qui intéressent les applications militaires notamment.

Les travaux de cette thèse ont été réalisés dans la gamme de fréquences qui s'étend du gigahertz jusqu'au térahertz. On étudie les phonons acoustiques dans la matière condensée. Pour étudier les vibrations acoustiques à ces fréquences, quelques techniques se démarquent. Les vibrations acoustiques peuvent être étudiées par spectroscopie Raman[223] mais aussi par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps (laser[221] ou rayons X[135]), par des techniques électroniques[42], optiques d'interférométrie[211] ou de couplage évanescent avec des objets dont les vibrations sont simplement maintenues par l'agitation thermique[65]. L'espoir de contrôler les ondes mécaniques à ces fréquences par un couplage avec une onde électromagnétique a vu émerger le domaine de l'optomécanique puis de l'optomécanique quantique[8] pour lequel le caractère de phonon prend peut-être réellement son sens. En effet, certaines

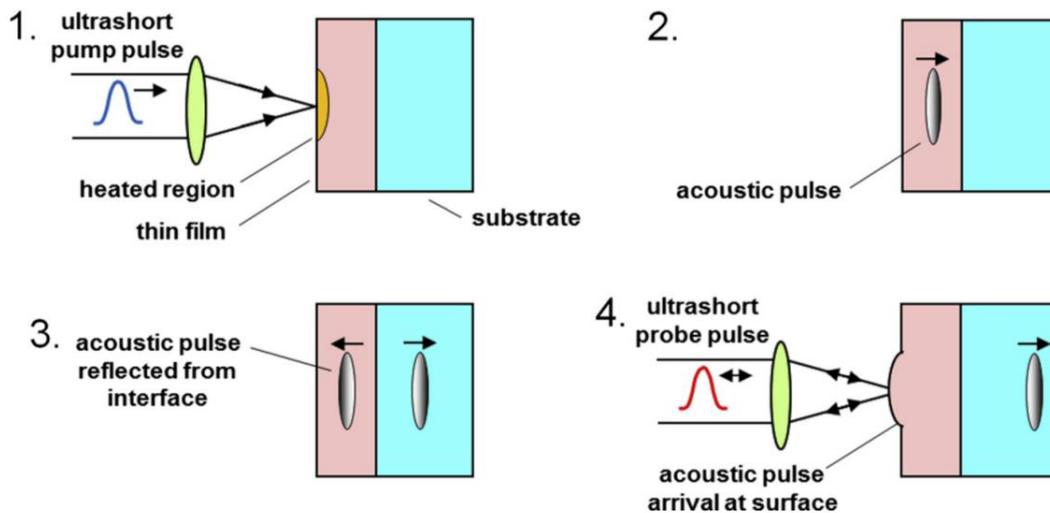


FIGURE 3: Séquence des phénomènes en jeu en acoustique picoseconde. 1. Génération, 2. Propagation, 3. Réflexion, 4. Détection. Figure extraite d’une revue récente de l’équipe d’Olivier B. Wright dans une édition spéciale d’*Ultrasonics* dédiée à l’acoustique picoseconde[148].

équipes arrivent à dépeupler les modes mécaniques jusqu’à ne laisser en moyenne que quelques phonons, voire moins d’un, pour atteindre le graal de l’état quantique fondamental[172, 39].

Dans le cadre de cette thèse, de très nombreux phonons acoustiques sont excités par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps. Cette technique de génération et de détection tout optique de phonons acoustiques a été développée dans les années 1980 par l’équipe de Humphrey Maris à l’université de Brown aux États-Unis[221, 220]. Dans une telle approche, l’expansion thermique induite par l’échauffement rapide d’un substrat absorbant (ou du film mince absorbant déposé sur un substrat transparent) suite à l’absorption d’un pulse laser femtoseconde génère un pulse de déformation élastique (Figure 3) qui va se propager à la vitesse longitudinale ou transverse du son (en fonction du champ de déformation initial) dans le substrat. Ce pulse acoustique est ensuite réfléchi à une interface, puis entraîne finalement un déplacement de surface ou une modification des propriétés optiques par effet photoélastique lorsqu’il revient au niveau de la surface de génération. Afin d’obtenir une expérience résolue en temps, le délai temporel entre le pulse de pompe et le pulse de sonde est usuellement contrôlé par la différence de chemin optique entre les deux pulses. En contrôlant au millimètre près la différence de chemin optique, on maîtrise ainsi un écart temporel inférieur à la picoseconde entre le pulse de pompe et le pulse de sonde. Aux débuts, cette technique détecte principalement la variation de l’indice optique induite par la déformation (effet photoélastique) grâce au laser de sonde. Typiquement, en utilisant une couche transductrice d’aluminium de 100 nm d’épaisseur, le pulse acoustique généré dans un substrat de silicium aura une durée d’environ 10 ps pour une longueur d’onde de l’ordre de 100 nm et une fréquence de l’ordre de 100 GHz. Afin d’être sensible également au déplacement de surface, c’est à partir de la fin des

années 1990 que l'interférométrie est introduite sur des montages d'acoustique picoseconde, d'abord par Bernard Perrin[180] puis par Oliver B. Wright[215]. L'acoustique picoseconde s'est ensuite rapidement développée en explorant la génération grâce à des super-réseaux semi-conducteurs[12, 103], les cavités acoustiques[125, 101, 124], la physique non linéaire avec des phénomènes de solitons[179, 90, 178], la caractérisation de milieux biologiques[196, 54, 176, 60] ou de matériaux en conditions de pressions extrêmes[58, 56, 57, 59]. Les applications industrielles de cette technique ont aussi émergé avec la création de Ménapic par exemple[70].

Mais au sein de l'acoustique picoseconde, les propriétés acoustiques des nano-objets attirent à eux-seuls une attention considérable[140]. En effet, les nano-objets constituent des systèmes de choix pour tester la limite de taille et de fréquences à partir desquelles la théorie classique de la mécanique des milieux continus n'est plus adaptée pour décrire leurs vibrations[132, 111]. En outre, une meilleure compréhension du comportement des phonons dans les nanostructures est aussi cruciale pour la conception de systèmes électromécaniques nanométriques (NEMS)[76, 118]. Ces nano-résonateurs pourraient remplacer petit à petit leurs cousins micrométriques (MEMS) très largement utilisés comme capteurs de force ou accéléromètres dans de très nombreux objets de la vie courante, des smartphones aux appareils photos. Le confinement résultant de la taille nanométrique des objets modifie profondément les relations de dispersion des ondes acoustiques par rapport aux propriétés d'un milieu infini. De telles modifications influencent à la fois les propriétés thermiques[156, 25] et électroniques[9] des nanostructures ce qui s'avère critique pour concevoir par exemple des matériaux et des structures thermoélectriques efficaces pour la production d'énergie ou la réfrigération[238]. Par ailleurs, il est aussi envisagé d'utiliser des nano-objets comme des guides d'ondes ou des transducteurs nanométriques afin d'atteindre une résolution nanométrique en microscopie acoustique[236].

Dans les travaux de cette thèse, on s'intéresse aux vibrations acoustiques de nano-objets métalliques et semi-conducteurs par des expériences pompe-sonde résolues en temps. Ces nano-objets sont essentiellement des nanofils cylindriques dont le diamètre est compris entre 100 nm et 400 nm et la longueur de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ . Des objets de section rectangulaires sont également étudiés. Les fréquences des vibrations acoustiques observées s'étendent de 1 GHz à 60 GHz. Cette thèse est composée de cinq chapitres. Un résumé de chaque chapitre est donné en début de chapitre. Chaque chapitre peut être abordé de façon quasi indépendante même si une cohérence d'ensemble est facilitée par une lecture dans l'ordre.

Le premier chapitre présente succinctement l'équation de Navier, les différents paramètres élastiques que nous utilisons pour décrire les vibrations acoustiques des nano-objets, puis la résolution des équations de l'élasticité dans le cas d'un guide d'onde cylindrique infiniment

long. On présente alors les différents modes acoustiques qu'il est possible de rencontrer, leur champ de déplacement, leur relation de dispersion, les vitesses de groupe ou de phase ainsi que certaines relations importantes à faibles nombres d'ondes.

Le deuxième chapitre commence par évoquer la fabrication des nanofils de cuivre sur lesquels s'est focalisée une grande partie de la thèse. On présente ensuite le montage d'acoustique picoseconde utilisé pour étudier ces nanofils. On décrit ensuite la réponse acoustique d'un nanofil unique dans une expérience pompe-sonde résolue en temps. On montre ensuite l'intérêt de l'utilisation d'une géométrie auto-suspendue pour l'amélioration du confinement acoustique dans ces nano-objets. En profitant de ces développements sur des nanofils de cuivre auto-suspendus, on explore ensuite la réponse acoustique de nanofils uniques auto-suspendus à la porosité contrôlée. La fabrication de ces nanofils poreux est d'abord décrite avant que leurs propriétés mécaniques soient caractérisées. On montre également qu'il est possible de caractériser l'élasticité de nanofils semi-conducteurs cœur/coquille Ge@Si qui ne sont pas parfaitement cylindriques.

Le troisième chapitre présente la première observation expérimentale du guidage de phonons acoustiques gigahertz dans un nano-objet unique. On décrit d'abord les modifications expérimentales nécessaires pour observer ce phénomène puis le cadre théorique avec lequel on décrit la propagation d'un paquet d'onde gaussien en géométrie axisymétrique dans un guide d'onde quasi-unidimensionnel. On présente alors les résultats expérimentaux de la propagation de deux modes acoustiques différents dans un nanofil de cuivre unique. On propose une première application de cette observation à la caractérisation élastique et géométrique du nanofil. Afin de démontrer la versatilité de cette expérience, on montre qu'il est possible d'observer la propagation d'ondes acoustiques gigahertz dans un autre type de nano-objets : des nanopoutres d'or à section rectangulaire conçues par lithographie électronique.

Dans le quatrième chapitre, on augmente à nouveau drastiquement le contact entre le nano-résonateur et le substrat. On n'utilise plus de géométrie auto-suspendue. Au contraire, on souhaite observer l'énergie acoustique dissipée par le nanofil en vibration vers le substrat sous-jacent. On détaille le nouveau dispositif expérimental avant de présenter les cartographies acoustiques spatio-temporelles du champ acoustique rayonné par un nanofil de cuivre de l'autre côté d'une membrane de silicium opaque. On présente également des simulations par différences finies qui viennent supporter les observations expérimentales.

Enfin, dans le cinquième et dernier chapitre, on présente une perspective à l'utilisation de nano-objets pour la génération d'ondes acoustiques avec des résolutions spatiales latérales nanométriques. On présente donc la possibilité de générer une onde acoustique avec une source de dimension latérale nanométrique qui pourrait être facilement déplacée à la surface d'un

---

échantillon et intégrée dans un dispositif compact. La source acoustique que nous utilisons est une pointe d'AFM en silicium dans laquelle nous générons une onde acoustique par un pulse laser femtoseconde. On présente d'abord le concept qui pourrait être utilisé pour réaliser une cartographie des propriétés mécaniques d'un échantillon avec une résolution latérale nanométrique. On présente ensuite le montage expérimental utilisé puis des caractérisations préliminaires du champ acoustique émis par la pointe AFM.

# Chapitre 1

## Propriétés acoustiques des nano-objets

### Sommaire

---

<b>I.1</b>	<b>Équation fondamentale de l'élastodynamique des milieux solides continus</b>	<b>8</b>
I.1.1	Tenseur des déformations	8
I.1.2	Tenseur des contraintes	9
I.1.3	Relation fondamentale de la dynamique	10
<b>I.2</b>	<b>Loi de Hooke</b>	<b>10</b>
<b>I.3</b>	<b>Équation de Navier</b>	<b>11</b>
<b>I.4</b>	<b>Guide d'onde cylindrique</b>	<b>14</b>
I.4.1	Ondes de compression	18
I.4.2	Ondes de torsion et de flexion	23

---

*Les vibrations acoustiques des nano-objets sont le plus couramment décrites grâce à la mécanique des milieux continus. Cette modélisation néglige la nature discrète de la structure atomique des solides. Elle est a priori remise en cause pour les plus petits objets d'une taille caractéristique inférieure à 2 nm : en effet, on ne peut alors plus considérer que la longueur d'onde des vibrations est grande devant les distances interatomiques. Cependant, la comparaison du modèle macroscopique d'élasticité des milieux continus avec des calculs atomistiques et des expériences d'acoustique picoseconde dans des nanosphères métalliques confirme la validité de cette approche même à cette échelle pour le mode de respiration fondamental le plus couramment étudié [199, 47]. Les déviations au modèle linéaire d'élasticité n'apparaissent significativement que pour les harmoniques supérieures du mode de respiration[47]. Comme les objets étudiés pendant cette thèse ont une taille caractéristique au moins un ordre de grandeur au-dessus de cette limite, nous utiliserons une modélisation continue. Dans ce chapitre, nous rappelons les éléments qui permettent d'établir l'équation fondamentale de l'élastodynamique des milieux solides continus, la loi de Hooke, puis dans le cas d'un solide homogène et isotrope nous présentons l'équation de Navier. Enfin, la résolution de l'équation de Navier pour les guides d'onde cylindriques infinis, soit de grands rapports d'aspect comme nos nanofils, est présentée. Pour plus de détails, on se reportera aux nombreux livres de référence à commencer par le Landau et Lifshitz[123], le Royer et Dieulesaint[197] ou le Achenbach[5].*

## I.1 Équation fondamentale de l'élastodynamique des milieux solides continus

### I.1.1 Tenseur des déformations

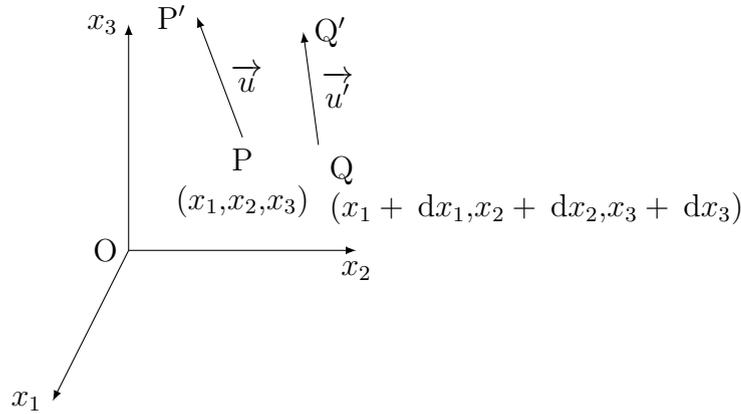


FIGURE 1.1: Déplacement de P et Q vers P' et Q' dans un milieu déformable.

Considérons un solide déformable de forme quelconque. Soient deux points P et Q de ce solide (Figure 1.1) dont les coordonnées initiales (« au repos ») sont respectivement  $(x_1, x_2, x_3)$  et  $(x_1 + dx_1, x_2 + dx_2, x_3 + dx_3)$ . Sous l'action de forces extérieures, P se déplace en P' de coordonnées  $x'_i = x_i + u_i$  (pour  $i = 1, 2, 3$ ). Le vecteur  $\vec{u}(\vec{x}) = \vec{x}' - \vec{x}$  est par définition le *vecteur déplacement* avec  $\vec{x} = \overrightarrow{OP}$  et  $\vec{x}' = \overrightarrow{OP'}$ . Le déplacement étant une fonction continue des coordonnées  $x_k$ , les coordonnées du déplacement du point voisin Q au premier ordre s'écrivent donc :

$$\vec{u}' = \vec{u}(\vec{x} + d\vec{x}) = \vec{u}(\vec{x}) + \nabla \vec{u} \cdot d\vec{x} \quad (1.1)$$

où  $d\vec{x} = \overrightarrow{PQ}$ . On peut alors montrer que le déplacement  $\vec{u}'$  en Q peut s'écrire :

$$\vec{u}' = \vec{u} + \underbrace{\vec{\Omega} \wedge d\vec{x}}_{\text{rotation locale}} + \underbrace{\varepsilon d\vec{x}}_{\text{déformation locale}} \quad (1.2)$$

avec 
$$\vec{\Omega} = \frac{1}{2} \nabla \wedge \vec{u} \quad \text{et} \quad \varepsilon = \frac{1}{2} (\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^\dagger)$$

où  $\varepsilon$  est le *tenseur des déformations* (« strain tensor ») et  $\nabla \vec{u}^\dagger$  est la matrice adjointe de  $\nabla \vec{u}$ . C'est par construction la partie symétrique du gradient des déplacements. Il rend compte du déplacement relatif des divers points matériels du solide les uns par rapport aux autres. Ce tenseur s'annule pour toute transformation qui conserve les distances entre les points matériels : les mouvements de translation ou de rotation.

## I.1.2 Tenseur des contraintes

Deux types de forces régissent la déformation d'un solide : les forces volumiques exercées par les champs (champ de pesanteur, champ électromagnétique, etc.) et les forces surfaciques exercées par contact mécanique. Le *tenseur des contraintes* (« *stress tensor* ») décrit l'ensemble des forces surfaciques susceptibles d'intervenir pour déformer le solide. Soit  $S$  une surface fermée délimitant le volume  $V$  de solide (Figure 1.2). Soit  $d\vec{S}$  un élément de surface orienté positivement vers l'extérieur du solide et situé autour de  $P$  un point de cette surface. Enfin, soit  $d\vec{F}$  la force exercée sur le volume  $V$  à travers la surface  $d\vec{S}$ . Le vecteur de contrainte en  $P$  est défini par

$$\vec{T}(P) = \frac{d\vec{F}}{dS} \quad (1.3)$$

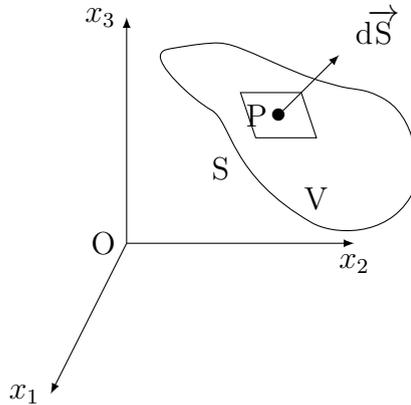


FIGURE 1.2: Surface  $S$  entourant un volume  $V$  d'un solide déformable. L'élément de surface  $dS$  appartient à la surface  $S$ .

On peut décrire intégralement la contrainte grâce à trois vecteurs  $\vec{T}^1(\sigma_{11}, \sigma_{12}, \sigma_{13})$ ,  $\vec{T}^2(\sigma_{21}, \sigma_{22}, \sigma_{23})$  et  $\vec{T}^3(\sigma_{31}, \sigma_{32}, \sigma_{33})$  qui correspondent aux contraintes exercées à travers des surfaces orientées selon les trois axes  $\vec{x}_j$ . Ainsi, on peut écrire que la  $i^{\text{ème}}$  composante du vecteur des contraintes est :

$$T_i = \sum_{j=1}^3 \sigma_{ji} n_j \quad (1.4)$$

où  $n_j = \vec{x}_j \cdot \frac{d\vec{S}}{dS}$ . On forme un tenseur  $\sigma$  de rang 2 de 9 composantes comme le tenseur des déformations. Ce tenseur  $\sigma$  est le *tenseur des contraintes* : la composante  $\sigma_{ji}$  est la projection sur  $x_i$  de la contrainte exercée à travers une surface unité orientée selon  $x_j$ . Ce tenseur est symétrique ( $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$ ) lorsque le solide n'est pas soumis à un couple extérieur. Les composantes diagonales  $\sigma_{ii}$  correspondent à des forces normales responsables des compressions, les composantes hors diagonales  $\sigma_{ij}$  correspondent à des forces tangentielles responsables des déformations de cisaillement.

### I.1.3 Relation fondamentale de la dynamique

Lorsque le solide n'est soumis qu'aux forces surfaciques, la résultante  $\vec{F}$  des forces exercées sur le volume  $V$  est la somme des tensions exercées sur sa surface  $S$  :

$$\vec{F} = \oint_S \vec{T}(P) \cdot d\vec{S} \quad (1.5)$$

Le théorème de Green-Ostrogradski permet de réécrire l'équation 1.5 sous la forme d'une intégrale volumique :

$$\vec{F} = \iiint_V \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} dV \quad (1.6)$$

La deuxième loi de Newton pour un solide de masse volumique  $\rho$  s'écrit alors

$$\iiint_V \left( \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} - \rho \frac{\partial^2 \vec{u}}{\partial t^2} \right) dV = 0 \quad (1.7)$$

On obtient ainsi l'équation fondamentale de l'élastodynamique des milieux solides continus :

$$\rho \frac{\partial^2 \vec{u}}{\partial t^2} = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad (1.8)$$

## I.2 Loi de Hooke

Dans un solide élastique non piézoélectrique, la loi de Hooke décrit la réponse linéaire de la déformation (« strain ») à une petite contrainte (« stress »). Elle a été énoncée pour la première fois en 1679 par Robert Hooke dans le cas de l'allongement d'un fil sous la forme d'une anagramme en latin, « *ceiinossttuv* »[95] pour « *ut tensio, sic vis* » (« L'extension est proportionnelle à la force »). C'est un développement au premier ordre de la relation constitutive :

$$\sigma_{ij}(\varepsilon_{kl}) = \sigma_{ij}(0) + \left( \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \varepsilon_{kl}} \right)_{\varepsilon_{kl}=0} \varepsilon_{kl} + o(\varepsilon_{kl}) \quad (1.9)$$

Avec  $\sigma_{ij}(0) = 0$  et en posant

$$C_{ijkl} = \left( \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \varepsilon_{kl}} \right)_{\varepsilon_{kl}=0} \quad (1.10)$$

on obtient la relation linéaire entre le tenseur des contraintes et celui des déformations :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (1.11)$$

Les  $C_{ijkl}$  sont les composantes d'un tenseur de rang quatre appelé *tenseur des rigidités*. Ce tenseur a  $3^4 = 81$  composantes. Cependant, en raison de la symétrie des tenseurs des contraintes et des déformations, il y a invariance par permutation des indices  $ij$  ou  $kl$ . On peut donc se ramener à 36

constantes élastiques indépendantes. On pose donc  $\alpha$  et  $\beta$  qui parcourent les 6 combinaisons  $ij$  et  $kl$  indépendantes. La loi de Hooke s'écrit alors

$$\sigma_\alpha = C_{\alpha\beta}\varepsilon_\beta \quad (1.12)$$

avec  $C_{\alpha\beta}$  qui prend la forme d'une matrice  $6 \times 6$ . La prise en compte de la structure cristalline du solide permet encore de réduire le nombre de composantes indépendantes de la matrice des rigidités  $\mathbf{C}$ . Cette matrice ne compte ainsi que trois composantes indépendantes dans le cas d'une structure cubique, fréquemment rencontrée dans les métaux et les semi-conducteurs (ce qui sera le cas de cette thèse). La matrice des rigidités s'écrit dans ce cas :

$$\mathbf{C} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \quad (1.13)$$

Des variations des constantes élastiques avec la fréquence sont parfois envisagées pour inclure les effets de viscosité dans les liquides [175, 161] avec une incidence d'autant plus forte que les objets sont petits [49, 139]. Dans le cadre de cette thèse nous travaillons avec des objets de l'ordre de  $\sim 100$  nm, dans l'air, les constantes élastiques  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$  sont donc considérées comme indépendantes de la fréquence et on utilise les valeurs des matériaux macroscopiques pour décrire le comportement des nano-objets.

### I.3 Équation de Navier

L'équation de Navier est un cas particulier de l'équation 1.8 lorsque le solide déformable est infini, isotrope et suit la loi élastique linéaire de Hooke (équation 1.11). L'isotropie implique que le tenseur  $C_{ijkl}$  est invariant par toute symétrie ponctuelle, planaire et toute rotation. On peut montrer que

$$C_{44} = \frac{C_{11} - C_{12}}{2} \quad (1.14)$$

Il en découle que la matrice des rigidités se réduit à deux composantes indépendantes  $C_{11}$  et  $C_{12}$ . La loi de Hooke se réécrit ainsi

$$\boldsymbol{\sigma} = C_{12} \text{Tr}(\boldsymbol{\varepsilon}) \text{Id} + 2C_{44} \boldsymbol{\varepsilon} \quad (1.15)$$

$$= C_{12} \nabla \cdot \vec{u} \text{Id} + C_{44} (\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^\dagger) \quad (1.16)$$

$$= \lambda \nabla \cdot \vec{u} \text{Id} + \mu (\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^\dagger) \quad (1.17)$$

où  $\nabla \vec{u}^\dagger$  est la matrice transconjuguée de  $\nabla \vec{u}$  et Id la matrice identité. On peut également écrire le terme général du tenseur :

$$\sigma_{ij} = \lambda \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \right) \delta_{ij} + \mu \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.18)$$

On peut ainsi introduire les coefficients de Lamé  $\lambda$  et  $\mu$ . Le coefficient  $\lambda$  s'interprète simplement comme le coefficient de proportionnalité entre la contrainte purement compressive, pour laquelle seuls les termes diagonaux du tenseur  $\sigma_{ij}$  ne sont pas nuls, et la dilatation  $\text{div} \boldsymbol{\varepsilon} = \text{Tr}(\boldsymbol{\varepsilon}) = \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \right)$ . Le coefficient  $\mu$  s'interprète comme le coefficient de proportionnalité entre une contrainte de cisaillement et l'angle de déformation  $\alpha = 2\varepsilon_{ij}$ . La Figure 1.3 illustre cet angle de déformation lorsque le seul terme non nul du tenseur des contraintes correspond à  $i = 2$  et  $j = 3$ . On a alors  $\alpha = 2\varepsilon_{23} = \frac{\partial u_2}{\partial x_3}$ .

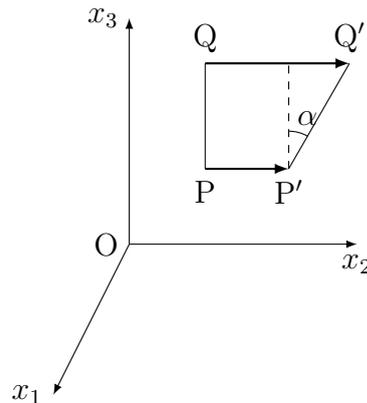


FIGURE 1.3: Déplacement de P et Q vers P' et Q' dans un milieu déformable soumis à une contrainte de cisaillement selon  $x_2$ .

Les descriptions faisant appel aux coefficients de Lamé, aux coefficients  $C_{11}$  et  $C_{12}$  ou au module de Young et au coefficient de Poisson sont équivalentes. Le Tableau 1.4 résume les correspondances entre ces différentes constantes élastiques.

	$C_{11}, C_{12}$	$E, \nu$	$\lambda, \mu$	$c_L, c_T$
$C_{11}$	$C_{11}$	$\frac{E(1-\nu)}{(1+\nu)(1-2\nu)}$	$2\mu + \lambda$	$\rho c_L^2$
$C_{12}$	$C_{12}$	$\frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}$	$\lambda$	$\rho(c_L^2 - 2c_T^2)$
$\lambda$	$C_{12}$	$\frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}$	$\lambda$	$\rho(c_L^2 - 2c_T^2)$
$\mu$	$\frac{C_{11} - C_{12}}{2}$	$\frac{E}{2(1+\nu)}$	$\mu$	$\rho c_T^2$
$\nu$	$\frac{C_{12}}{C_{11} + C_{12}}$	$\nu$	$\frac{\lambda}{2(\mu + \lambda)}$	$\frac{c_L^2 - 2c_T^2}{2(c_L^2 - c_T^2)}$
$E$	$C_{11} - \frac{2C_{12}^2}{C_{11} + C_{12}}$	$E$	$\frac{\mu(3\lambda + 2\mu)}{\lambda + \mu}$	$\frac{\rho c_T^2(6c_L^2 - 8c_T^2)}{2(c_L^2 - c_T^2)}$
$c_L$	$\sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}}$	$\sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}}$	$\sqrt{\frac{(2\mu + \lambda)}{\rho}}$	$c_L$
$c_T$	$\sqrt{\frac{C_{11} - C_{12}}{2\rho}}$	$\sqrt{\frac{E}{2\rho(1+\nu)}}$	$\sqrt{\frac{\mu}{\rho}}$	$c_T$

FIGURE 1.4: Relations entre les différentes constantes élastiques d'un solide isotrope.

En combinant l'équation 1.17 et l'équation 1.8 et en utilisant les relations entre les opérateurs<sup>1</sup>, on obtient l'équation de Navier

$$\rho \frac{\partial^2 \vec{u}}{\partial t^2} = (\lambda + \mu) \nabla (\nabla \cdot \vec{u}) + \mu \nabla^2 \vec{u} \quad (1.19)$$

Suivant la décomposition de Helmholtz, on pose  $\vec{u} = \vec{u}_T + \vec{u}_L$  avec  $\nabla \cdot \vec{u}_T = 0$  et  $\nabla \wedge \vec{u}_L = \vec{0}$ . On obtient ainsi deux équations d'ondes découplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \vec{u}_L - \frac{1}{c_L^2} \frac{\partial^2 \vec{u}_L}{\partial t^2} = 0 \end{array} \right. \quad (1.20)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \vec{u}_T - \frac{1}{c_T^2} \frac{\partial^2 \vec{u}_T}{\partial t^2} = 0 \end{array} \right. \quad (1.21)$$

où on a posé  $c_L = \sqrt{(2\mu + \lambda)/\rho}$  et  $c_T = \sqrt{\mu/\rho}$ , respectivement vitesses longitudinale et transverse. On peut également poser  $\vec{u}_L = \nabla \Phi$  et  $\vec{u}_T = \nabla \wedge \vec{\Psi}$ , où  $\Phi$  et  $\vec{\Psi}$  sont respectivement les potentiels scalaire et vectoriel. On remarque qu'on a rajouté une variable supplémentaire, on devra donc imposer

---

1.  $\nabla \cdot (\nabla \cdot \vec{u} \text{ Id}) = \nabla \nabla \cdot \vec{u}$  et  $\nabla \cdot (\nabla \vec{u}^\dagger) = \nabla \nabla \cdot \vec{u}$

une condition de jauge :  $\nabla \cdot \vec{\Psi} = 0$  par exemple. L'équation de Navier devient

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \Phi - \frac{1}{c_L^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial t^2} = 0 \\ \nabla^2 \vec{\Psi} - \frac{1}{c_T^2} \frac{\partial^2 \vec{\Psi}}{\partial t^2} = 0 \end{array} \right. \quad (1.22)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \vec{\Psi} - \frac{1}{c_T^2} \frac{\partial^2 \vec{\Psi}}{\partial t^2} = 0 \end{array} \right. \quad (1.23)$$

On montre ainsi que dans un milieu élastique linéaire et isotrope, deux types d'ondes — ou de déformations — peuvent se propager : des ondes transverses à la vitesse  $c_T$  dont la déformation  $\vec{u}_T$  est orthogonale à la direction de propagation et des ondes longitudinales à la vitesse  $c_L$  dont la déformation  $\vec{u}_L$  est parallèle à la direction de propagation. En considérant que  $C_{11}$  et  $C_{44}$  sont indépendante de la fréquence, les ondes pouvant se propager dans ce type de solide infini ne sont donc pas dispersives.

## I.4 Guide d'onde cylindrique

Lorsque les vibrations acoustiques sont confinées, peu de systèmes admettent une résolution analytique. Les systèmes isotropes et de symétrie élevée comme les sphères, les cylindres infinis ou encore les plaques infinis admettent des solutions partiellement analytiques. Comme nous étudions notamment des nanofils polycristallins de forts rapports d'aspect, nous décrivons la résolution de l'équation de Helmholtz dans un guide d'onde cylindrique, infini, homogène et isotrope.

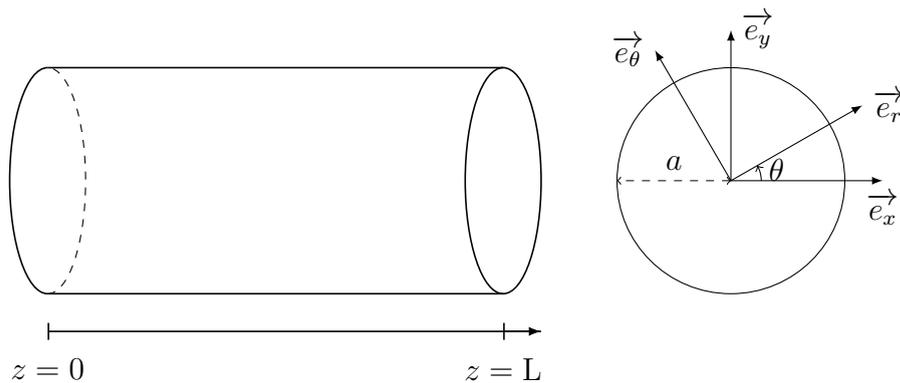


FIGURE 1.5: Guide d'onde cylindrique de rayon  $a$  et de longueur  $L \gg a$ .

Considérons la géométrie de la Figure 1.5. En utilisant la décomposition de Helmholtz, on peut réécrire le champ de déplacement comme

$$\vec{u} = \nabla \Phi + \nabla \wedge \vec{\Psi} \quad (1.24)$$

On cherche des solutions aux équations 1.22 et 1.23. Pour cela on pose comme ansatz la forme des solutions à variables séparées pour l'onde guidée

$$\Phi(r, \theta, z) = f(r) g(\theta) e^{i(\omega t - kz)} \quad (1.25)$$

L'équation du potentiel scalaire (1.22) se scinde alors en :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^2 g}{d\theta^2} + n^2 g(\theta) = 0, \quad n \text{ entier} \end{array} \right. \quad (1.26)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^2 f}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{df}{dr} + \left( \frac{\omega^2}{c_L^2} - k^2 \right) f - \frac{n^2}{r^2} f(r) = 0 \end{array} \right. \quad (1.27)$$

Les solutions de l'équation pour  $g$  sont des fonctions trigonométriques d'argument  $n\theta$  ( $n$  doit être un entier pour que  $g$  soit  $2\pi$  périodique comme l'impose l'axisymétrie du problème). Les solutions de l'équation pour  $f$  sont des fonctions de Bessel ordinaires. Étant donné que les champs des contraintes et des déformations doivent être finis au centre du cylindre, seules les fonctions de Bessel de première espèce peuvent être retenues. Le potentiel scalaire s'écrit

$$\Phi(r, \theta, z) = J_n(pr) [A_1 \cos(n\theta) + A_2 \sin(n\theta)] e^{i(\omega t - kz)} \quad (1.28)$$

où  $p$  est un nombre d'onde radial et est défini par

$$p^2 = \frac{\omega^2}{c_L^2} - k^2 \quad (1.29)$$

En ce qui concerne le potentiel vectoriel  $\vec{\Psi}$ , de composantes  $\Psi_i = \psi_{i,r}(r) \psi_{i,\theta}(\theta) e^{i(\omega t - kz)}$  en régime harmonique régi par l'équation 1.23, on obtient les trois équations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \Psi_z + \frac{\omega^2}{c_T^2} \Psi_z = 0 \end{array} \right. \quad (1.30)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \Psi_r - \frac{\Psi_r}{r^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial \Psi_\theta}{\partial \theta} - \frac{\omega^2}{c_T^2} \Psi_r = 0 \end{array} \right. \quad (1.31)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla^2 \Psi_\theta - \frac{\Psi_\theta}{r^2} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial \Psi_r}{\partial \theta} - \frac{\omega^2}{c_T^2} \Psi_\theta = 0 \end{array} \right. \quad (1.32)$$

L'équation d'onde de  $\Psi_z$  a la même forme que l'équation 1.22, ses solutions peuvent donc être obtenues de la même façon.  $\Psi_z$  s'écrit

$$\Psi_z(r, \theta, z) = J_n(qr) [B_1 \cos(n\theta) + B_2 \sin(n\theta)] e^{i(\omega t - kz)} \quad (1.33)$$

où  $q$  est un nombre d'onde radial et est défini par

$$q^2 = \frac{\omega^2}{c_T^2} - k^2 \quad (1.34)$$

La résolution des équations couplées sur  $\Psi_r$  et  $\Psi_\theta$  est plus délicate. Étant donnée la symétrie du problème, on introduit une dépendance trigonométrique avec  $\theta$ . Par ailleurs l'alternance de signe entre les équations 1.31 et 1.32 indique une dépendance en cosinus sur  $\Psi_\theta$  et une dépendance en sinus sur  $\Psi_r$ . On cherche donc des solutions sous la forme

$$\begin{cases} \Psi_r(r, \theta, z) = \psi_r(r) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} & (1.35) \\ \Psi_\theta(r, \theta, z) = \psi_\theta(r) \cos(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} & (1.36) \end{cases}$$

On obtient les équations sur  $\psi_r$  et  $\psi_\theta$  en substituant les formes de  $\Psi_r$  et  $\Psi_\theta$  dans les équations (1.31) et (1.32) :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \psi_r}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\psi_r}{dr} + \frac{1}{r^2} (-n^2 \psi_r + 2n\psi_\theta - \psi_r) - k^2 \psi_r + \frac{\omega^2}{c_T^2} \psi_r = 0 & (1.37) \\ \frac{d^2 \psi_\theta}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\psi_\theta}{dr} + \frac{1}{r^2} (-n^2 \psi_\theta + 2n\psi_r - \psi_\theta) - k^2 \psi_\theta + \frac{\omega^2}{c_T^2} \psi_\theta = 0 & (1.38) \end{cases}$$

Il apparaît immédiatement que  $\psi_r - \psi_\theta$  et  $\psi_r + \psi_\theta$  sont respectivement des solutions de l'équation de Bessel d'ordre  $n + 1$  et  $n - 1$ .

$$\begin{cases} \psi_r - \psi_\theta = 2C_1 J_{n+1}(qr) & (1.39) \\ \psi_r + \psi_\theta = 2C_2 J_{n-1}(qr) & (1.40) \end{cases}$$

Par suite :

$$\begin{cases} \psi_r = C_1 J_{n-1}(qr) + C_2 J_{n+1}(qr) & (1.41) \\ \psi_\theta = C_2 J_{n+1}(qr) - C_1 J_{n-1}(qr) & (1.42) \end{cases}$$

Par ailleurs, le nombre de conditions aux limites à la surface libre du cylindre  $r = a$  est de trois :  $\sigma_{rr} = 0$ ,  $\sigma_{rz} = 0$ ,  $\sigma_{r\theta} = 0$ . Il est donc possible de se ramener de six à trois inconnues en choisissant par exemple  $A = A_1$ ,  $A_2 = 0$ ,  $B = B_2$ ,  $B_1 = 0$ ,  $C = C_1$  et  $C_2 = 0$ . Les expressions de  $\Phi$  et des composantes de  $\vec{\Psi}$  sont donc :

$$\begin{cases} \Psi_r = C J_{n+1}(qr) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} & (1.43) \\ \Psi_z = B J_n(qr) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} & (1.44) \\ \Psi_\theta = -C J_{n+1}(qr) \cos(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} & (1.45) \\ \phi = A J_n(pr) \cos(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} & (1.46) \end{cases}$$

or les déplacements  $u_r$ ,  $u_\theta$  et  $u_z$  s'expriment en fonction de ces mêmes potentiels :

$$\left\{ \begin{array}{l} u_r = \frac{\partial \Phi}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_z}{\partial \theta} - \frac{\partial \Psi_\theta}{\partial z} \end{array} \right. \quad (1.47)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} u_z = \frac{\partial \Phi}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial (r \Psi_\theta)}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_r}{\partial \theta} \end{array} \right. \quad (1.48)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} u_\theta = \frac{1}{r} \frac{\partial \Phi}{\partial \theta} + \frac{\partial \Psi_r}{\partial z} - \frac{\partial \Psi_z}{\partial r} \end{array} \right. \quad (1.49)$$

ce qui permet d'exprimer les contraintes  $\sigma_{rr}$ ,  $\sigma_{rz}$ ,  $\sigma_{r\theta}$  en fonctions de ces déplacements :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{rr} = \lambda \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial (r u_r)}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_\theta}{\partial \theta} + \frac{\partial u_z}{\partial z} \right] + 2\mu \frac{\partial u_r}{\partial r} \end{array} \right. \quad (1.50)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{r\theta} = \mu \left[ \frac{1}{r} \left( \frac{\partial u_r}{\partial \theta} - u_\theta \right) + \frac{\partial u_\theta}{\partial r} \right] \end{array} \right. \quad (1.51)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{rz} = \mu \left[ \frac{\partial u_r}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial r} \right] \end{array} \right. \quad (1.52)$$

Ces mêmes contraintes  $\sigma_{rr}$ ,  $\sigma_{rz}$ ,  $\sigma_{r\theta}$  exprimées en fonctions des potentiels sont finalement :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{rr} = \lambda \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial \Phi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} \right] + 2\mu \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial \Phi}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_z}{\partial \theta} - \frac{\partial \Psi_\theta}{\partial z} \right) \end{array} \right. \quad (1.53)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{r\theta} = \mu \left[ \frac{1}{r} \left( \frac{\partial}{\partial \theta} \left( 2 \frac{\partial \Phi}{\partial r} - \frac{\Phi}{r} \right) - \left( \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \theta \partial z} \right) \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial \Psi_r}{\partial r} - \frac{\Psi_r}{r} \right) \right. \end{array} \right. \quad (1.54)$$

$$\left. \begin{array}{l} - \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial \Psi_z}{\partial r} + \frac{\Psi_z}{r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \Psi_z}{\partial \theta^2} \right] \\ \sigma_{rz} = \mu \left[ \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\partial \Phi}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_z}{\partial \theta} - \frac{\partial \Psi_\theta}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial \Phi}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial r \Psi_\theta}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_r}{\partial \theta} \right) \right] \end{array} \right. \quad (1.55)$$

L'annulation de ces trois contraintes en  $r = a$  fournit un système homogène de trois équations linéaires à trois inconnues qui admet des solutions non triviales si le déterminant du système est nul. Expliciter cette relation permet d'obtenir la relation de dispersion des ondes acoustiques dans le guide d'onde cylindrique. Cette relation lie  $\omega$  et  $k$  pour chaque ordre circonférentiel  $n$ . Il existe une infinité de solutions  $\omega$  pour un vecteur d'onde  $k$  (réel) et un ordre  $n$  (entier naturel) fixés. Ces solutions  $\omega$  de la relation de dispersion sont les pulsations des modes acoustiques guidés selon l'axe  $z$ . Avant de développer la relation de dispersion, nous allons nous limiter à deux cas simples qui contiennent une part importante de la physique nécessaire à la compréhension de l'acoustique dans

des nanofils. Limitons nous d'abord aux modes d'ordre circonférentiel nul. Parmi ces modes, deux familles de modes vont émerger : la première correspond aux modes de *compression* pour lesquels les seules composantes non nulles du déplacement sont  $u_r$  et  $u_z$ . Ces composantes sont par ailleurs indépendantes de  $\theta$ . La seconde famille regroupe les ondes de *torsion* dont la seule composante du déplacement non nulle et indépendante de  $\theta$  est  $u_\theta$ .

### I.4.1 Ondes de compression

Pour cette famille de modes, décrits par les composantes  $u_r(r,z)$  et  $u_z(r,z)$  du déplacement, les potentiels des équations 1.31-1.46 sont :

$$\begin{cases} \Psi_r = 0 & (1.56) \\ \Psi_z = 0 & (1.57) \\ \Psi_\theta = -C J_1(qr) e^{i(\omega t - kz)} & (1.58) \\ \phi = A J_0(pr) e^{i(\omega t - kz)} & (1.59) \end{cases}$$

En utilisant les relations usuelles entre les dérivés des fonctions de Bessel<sup>2</sup>, on obtient les composantes radiale et axiale du déplacement :

$$\begin{cases} u_r = -[pA J_1(pr) + ikC J_1(qr)] e^{i(\omega t - kz)} & (1.60) \\ u_z = -[ikA J_0(pr) + qC J_0(qr)] e^{i(\omega t - kz)} & (1.61) \end{cases}$$

Seules deux contraintes des formules 1.54-1.55 ne sont pas toujours nulles et imposent des conditions non triviales en  $r = a$  :

$$\begin{cases} \sigma_{rr} = \left[ (-\lambda(p^2 + k^2) - 2\mu p^2) J_0(pa) + 2\mu \frac{p}{a} J_1(pa) \right] A + & (1.62) \\ & 2\mu ik \left[ -q J_0(qa) + \frac{1}{a} J_1(qa) \right] C = 0 \\ \sigma_{rz} = -2\mu ik p J_1(pa) A - \mu(q^2 - k^2) J_1(qa) C = 0 & (1.63) \end{cases}$$

Ces deux équations sont simultanément vérifiées si le déterminant des coefficients est nul, soit si

---

2.  $\frac{d}{dx} [J_0(x)] = -J_1(x)$  et  $\frac{d}{dx} [J_1(x)] = J_0(x) - J_1(x)/x$

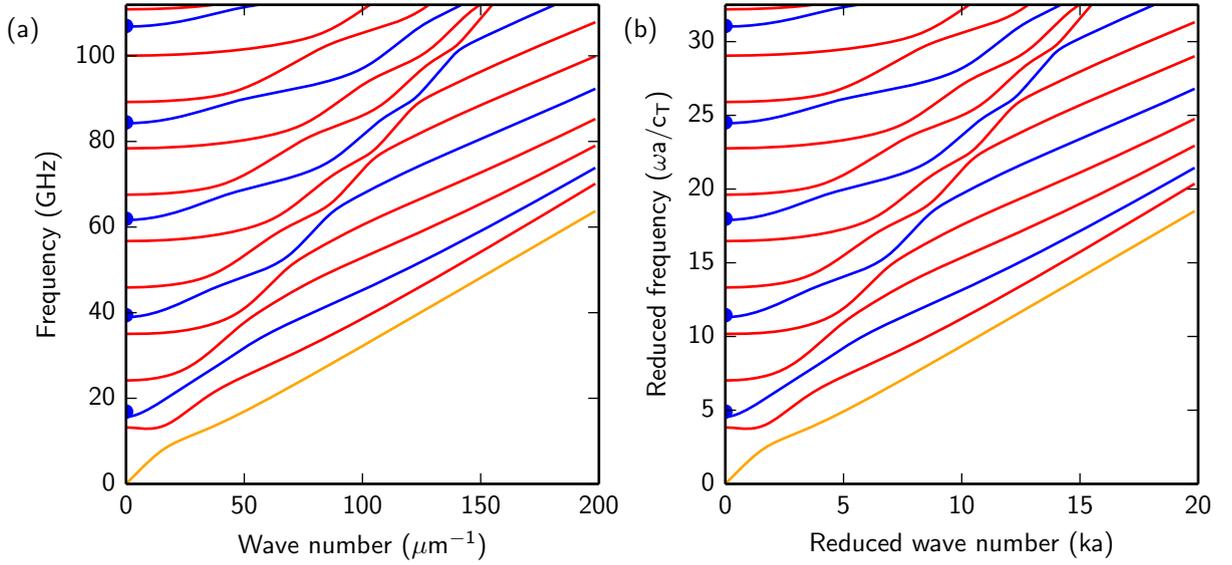


FIGURE 1.6: Courbes de dispersion des modes de compression d'un cylindre de cuivre de 200 nm de diamètre en coordonnées dimensionnées (a) et adimensionnées (b). Les paramètres élastiques utilisés sont  $\nu = 0,35$ ,  $E = 110$  GPa et  $\rho = 8700$  kg m $^{-3}$ . Le mode L(0,0) est représenté en orange, les modes dont les fréquences de coupure sont les solutions de l'équation 1.75 sont représentées en bleues et ceux dont les fréquences de coupure sont les zéros de la fonction de Bessel d'ordre un sont représentées en rouge. Les points bleus correspondent à l'approximation de l'équation 1.77.

$$\frac{2p}{a}(q^2 + k^2)J_1(pa)J_1(qa) - (q^2 - k^2)^2J_0(pa)J_1(qa) - 4k^2pqJ_1(pa)J_0(qa) = 0 \quad (1.64)$$

C'est l'équation de dispersion de Pochhammer-Chree. Les modes propres  $(\omega_n, k)$  du guide d'onde dépendent du rayon  $a$  du cylindre et des vitesses longitudinales  $c_L$  et transverses  $c_T$  du son dans le matériau. Il est parfois commode d'introduire les variables adimensionnées  $K = ka$ ,  $\Omega_n = \omega_n a / c_T$ ,  $P_n^2 = (\Omega_n / \beta)^2 - K^2$ ,  $Q_n^2 = \Omega_n^2 - K^2$  et  $\beta^2 = (c_L / c_T)^2 = (2 - 2\nu) / (1 - 2\nu)$ . L'équation de Pochhammer-Chree s'écrit avec les variables adimensionnées :

$$2P_n(Q_n^2 + K^2)J_1(P_n)J_1(Q_n) - (Q_n^2 - K^2)^2J_0(P_n)J_1(Q_n) - 4K^2P_nQ_nJ_1(P_n)J_0(Q_n) = 0 \quad (1.65)$$

En outre, cette écriture n'est correcte que si  $Q_n^2 > 0$  et  $P_n^2 > 0$ . En distinguant les différents cas on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} 2P_n(Q_n^2 + K^2)J_1(P_n)J_1(Q_n) - (Q_n^2 - K^2)^2 J_0(P_n)J_1(Q_n) - \\ \qquad 4K^2 P_n Q_n J_1(P_n)J_0(Q_n) = 0 \quad \text{si } Q_n^2 > 0 \text{ et } P_n^2 > 0 \end{array} \right. \quad (1.66)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} 2|P_n|(Q_n^2 + K^2)I_1(|P_n|)J_1(Q_n) - (Q_n^2 - K^2)^2 I_0(|P_n|)J_1(Q_n) - \\ \qquad 4K^2 |P_n|Q_n I_1(|P_n|)J_0(Q_n) = 0 \quad \text{si } Q_n^2 > 0 \text{ et } P_n^2 < 0 \end{array} \right. \quad (1.67)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} 2|P_n|(Q_n^2 + K^2)I_1(|P_n|)I_1(|Q_n|) - (Q_n^2 - K^2)^2 I_0(|P_n|)I_1(|Q_n|) - \\ \qquad 4K^2 |P_n||Q_n| I_1(|P_n|)I_0(|Q_n|) = 0 \quad \text{si } Q_n^2 < 0 \text{ et } P_n^2 < 0 \end{array} \right. \quad (1.68)$$

où  $I_0$  et  $I_1$  sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre 1 qui vérifient pour tout réel  $x$ ,  $J_0(ix) = I_0(x)$  et  $J_1(ix) = iI_1(x)$ . Ces différentes formes de l'équation de Pochhammer-Chree sont résolues numériquement sur la Figure 1.6 pour un nanofil de cuivre de 200 nm de diamètre. D'après la convention de Silk et Bainton, ces modes sont des modes longitudinaux axialement symétriques[204, 197] indexés  $L(0,i)$  avec  $i$  un nombre entier positif qui vaut zéro pour le mode dont la fréquence de coupure est nulle. Les vitesses de phase  $\omega(k)/k$  et de groupe  $\frac{d\omega}{dk}$  sont également calculées et tracées sur la Figure 1.7. Parmi les trois premiers modes, seul le mode de fréquence de coupure nulle possède une vitesse de groupe non nulle à longueur d'onde infinie. On peut montrer au premier ordre en  $k$  que la vitesse de groupe et la vitesse de phase du mode  $L(0,0)$  (en orange) est

$$v_{L(0,0)} = \sqrt{\frac{E}{\rho}} \quad (1.69)$$

Ce qui donne numériquement  $v_{L(0,0)} = 3,6 \mu\text{m ns}^{-1}$ , en accord avec les valeurs à  $k = 0$  des vitesses calculées numériquement sur la Figure 1.7. On peut également montrer que la relation de dispersion du premier mode de respiration  $L(0,2)$  est parabolique en  $K = 0$  :  $\Omega_2(K) = \Omega_2(K = 0) + \delta \times K^2$ . La courbure  $\delta$  est définie par

$$\delta = \frac{4(2\Omega_2 J_0(\Omega_2) - 3J_1(\Omega_2)) + \beta^2 \Omega_2^2 J_1(\Omega_2)}{2\Omega_2 \beta J_1(\Omega_2) (\Omega_2^2 + 4(1/\beta^2 - 1))} \quad (1.70)$$

En coordonnées non réduites on obtient  $\omega_2(k) = \omega_2(k = 0) + \delta c_L a k^2$  avec  $\delta c_L a = 0,167 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$ . La vitesse de groupe de ce mode est linéaire

$$v_{L(0,2)} = 2\delta c_L a k = 0,334 k \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1} \quad (1.71)$$

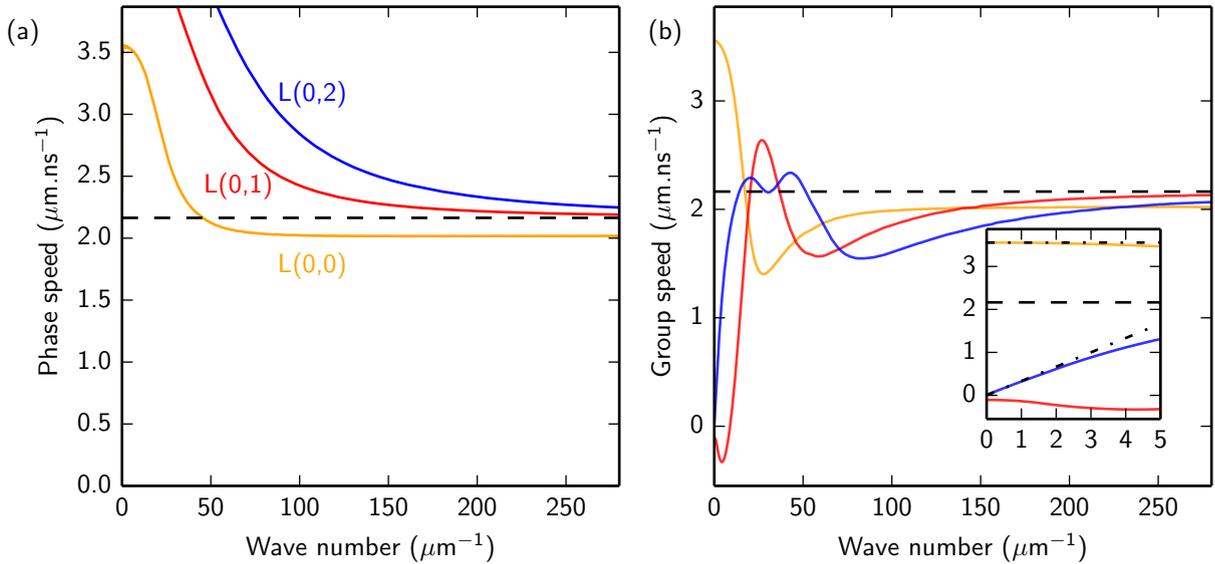


FIGURE 1.7: Vitesses de phase  $\omega(k)/k$  (a) et vitesses de groupe  $\frac{d\omega}{dk}$  (b) pour les trois premiers modes de compression d'un cylindre de cuivre. La ligne noire pointillée représente la vitesse transverse des ondes acoustiques de volume. L'insert est un zoom à faible nombre d'onde. Les deux lignes pointillées représentent l'approximation à l'ordre un des vitesses de groupe :  $v_{L(0,0)} = 3,6 \mu\text{m ns}^{-1}$  et  $v_{L(0,2)} = 2\delta c_L a k = 0,334 k \mu\text{m ns}^{-1}$ .

Deux familles de modes sont nettement distinguables en fonction de leur champ de déplacement. Prenons l'équation de Pochhammer-Chree à  $K = 0$ . Elle se réduit à

$$\left[ 2J_1\left(\frac{\Omega_n}{\beta}\right) - \beta\Omega_n J_0\left(\frac{\Omega_n}{\beta}\right) \right] J_1(\Omega_n) = 0 \quad (1.72)$$

Les zéros de la fonction de Bessel  $J_1$  définissent une première famille de modes. À  $K = 0$ , le champ de déplacement de ces modes s'écrit d'après les équations 1.61-1.61 :

$$\begin{cases} u_r = 0 \\ u_z = qCJ_0(qr) e^{i\omega t} \quad \text{avec } C \neq 0 \end{cases} \quad (1.73)$$

Ce sont des modes dont le champ de déplacement à  $K = 0$  est purement selon l'axe du cylindre, ce sont des modes purement longitudinaux. À contrario, il existe une deuxième famille de modes qui vérifient

$$2J_1\left(\frac{\Omega_m}{\beta}\right) - \beta\Omega_m J_0\left(\frac{\Omega_m}{\beta}\right) = 0 \quad (1.75)$$

Il est possible d'obtenir une valeur approchée des  $\Omega_m$ <sup>3</sup> à l'aide d'un développement asymptotique aux grands vecteurs d'onde<sup>4</sup>. L'équation 1.75 devient

$$\tan\left(\frac{\Omega_m}{\beta} - \frac{\pi}{4}\right) = \frac{\beta\Omega_m}{2} \quad (1.76)$$

équation dont les racines sont  $\Omega_m = \beta\pi\left(m + \frac{3}{4}\right)$ . Selon cette approximation, les fréquences propres des modes de respiration ne dépendent que de la vitesse longitudinale du matériau et du rayon du cylindre :

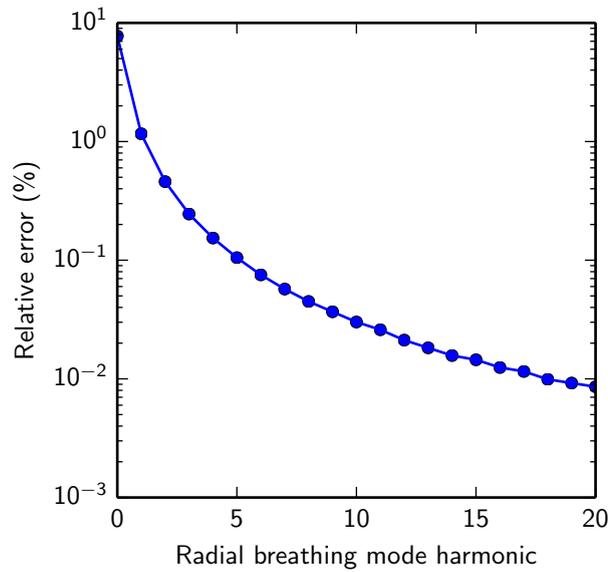


FIGURE 1.8: Erreur relative commise en prenant l'approximation de l'équation 1.77 pour les fréquences de coupure des modes de respiration (équation 1.75).

$$f_m = \frac{c_L}{2a}\left(m + \frac{3}{4}\right) \quad (1.77)$$

3. On note que lorsque  $n$  parcourt  $\llbracket 0; 11 \rrbracket$  pour les onze premiers modes acoustiques axisymétriques,  $m$  parcourt  $\llbracket 0; 3 \rrbracket$  pour les quatre premiers modes de respiration.

4.  $J_\nu \underset{x \rightarrow +\infty}{\sim} \sqrt{\frac{2}{\pi x}} \cos\left(x - \nu \frac{\pi}{2} - \frac{\pi}{4}\right) + O(x^{-1})$ [4]

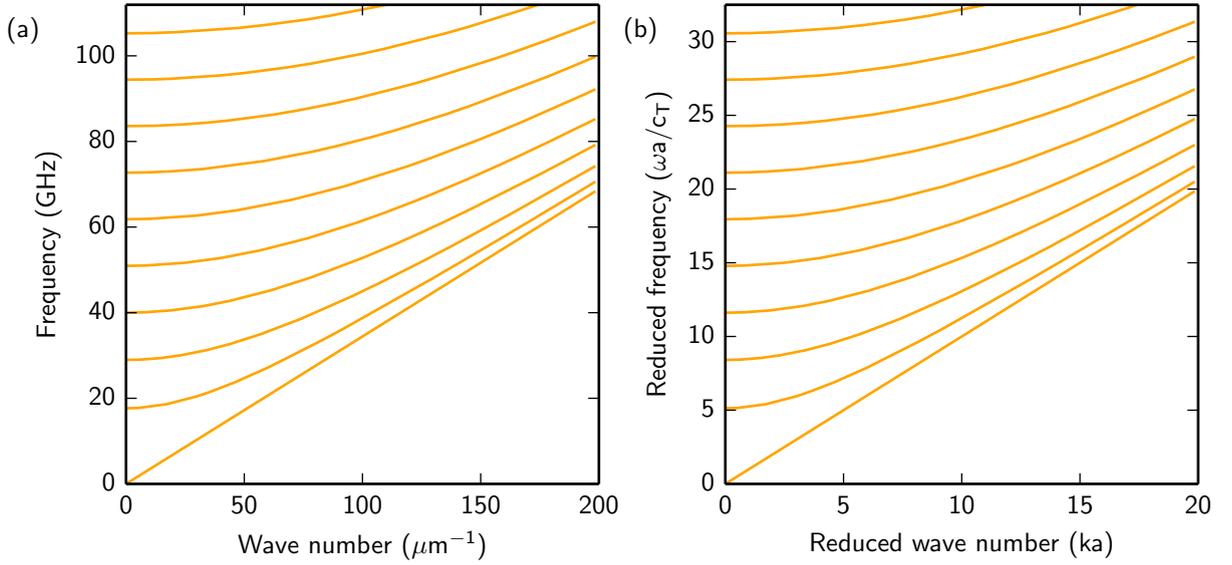


FIGURE 1.9: Courbes de dispersion des modes de torsion d'un cylindre de cuivre de 200 nm de diamètre en coordonnées dimensionnées (a) et adimensionnées (b). Les paramètres élastiques utilisés sont  $\nu = 0,35$ ,  $E = 110$  GPa et  $\rho = 8700$  kg m<sup>-3</sup>.

La fréquence de coupure de ces modes ne dépend que de la vitesse longitudinale en première approximation. Les fréquences correspondantes à cette approximation sont reportées sur la Figure 1.6 sous la forme de points bleus. L'erreur commise avec cette approximation approche les 10% pour la fréquence de coupure du mode de respiration fondamental, mais elle diminue pour atteindre le pourcent dès le premier harmonique (Figure 1.8). À  $K = 0$ , le champ de déplacement de ces modes de respiration s'écrit d'après les équations (1.61-1.61) :

$$\begin{cases} u_r = -pAJ_1(pr) e^{i\omega t} & \text{avec } A \neq 0 \\ u_z = 0 \end{cases} \quad (1.78)$$

$$(1.79)$$

Le champ de déplacement de ces modes est purement radial. Ce sont les modes de respiration. Ces modes revêtent une importance capitale dans l'étude de l'acoustique des nanofils et seront largement utilisés dans la suite.

## I.4.2 Ondes de torsion et de flexion

D'autres types de modes existent dans les guides d'ondes de grands rapports d'aspects, notamment cylindriques. En cherchant, par exemple, des modes dont le déplacement est purement

orthoradial  $u_\theta(r,z,t)$  et indépendant de  $\theta$ , on obtient la famille des modes de torsion qui vérifient l'équation

$$Q_m J_0(Q_m) = 2J_1(Q_m) \quad (1.80)$$

où  $m$  est un entier. La première solution de cette équation  $Q_0 = 0$  définit un mode de torsion qui n'est pas dispersif et dont la vitesse de phase, égale à la vitesse de groupe est  $c_T$  pour tout nombre d'onde. Les autres modes sont dispersifs. Tous ces modes sont représentés sur la Figure 1.9. Ces modes de torsion, comme les modes de flexion que nous ne décrivons pas, ne jouent pas un rôle primordial dans l'étude de l'acoustique dans les nano-objets par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps. Cela tient aux phénomènes d'excitation et de détection que nous détaillons par la suite. Notons cependant que les modes de flexion (selon l'axe de l'objet) sont très largement étudiés à l'échelle micrométrique dans la gamme du mégahertz[75, 74, 211]. Dans ce cas-là, c'est souvent la théorie des poutres d'Euler-Bernoulli qui est choisie pour décrire les modes de flexion[123].

Pour conclure, toute la description physique présentée ici est invariante par changement d'échelle. On trouve ainsi une abondante littérature sur les modes propres dans des guides d'ondes cylindrique du hertz, dans les miroirs des interféromètres LIGO[80], au térahertz[111, 226] en passant par le mégahertz[160]. La description nanométrique n'est présente que dans le choix du rayon du guide d'onde étudié. C'est cette dimension géométrique de l'ordre de la centaine de nanomètre et les vitesses de l'ordre de plusieurs milliers de mètres par seconde qui renvoient les fréquences des premiers modes acoustiques dans les dizaines de gigahertz. Cette description élastique de mécanique des milieux continus est confrontée à l'expérience sur des objets nanométriques depuis plusieurs dizaines d'années et n'est pour l'instant pas remise en cause même pour des objets métalliques qui ne contiennent que quelques centaines d'atomes[111, 52]. Cependant, notons que lorsqu'on annonce l'utilisation des paramètres élastiques de « volume » pour décrire l'acoustique des nano-objets, il existe une variabilité importante de ces paramètres dans la littérature qui est parfois supérieure à la dizaine de pourcents en fonction de la technique de fabrication des matériaux et de la méthode de caractérisation des propriétés élastiques. Par ailleurs, l'étude d'ensemble de nano-objets, la plus commune dans la littérature, nécessite une connaissance fine des distributions de tailles et des études statistiques rigoureuses afin de corriger les effets d'élargissement inhomogène[212]. En outre, si une résolution semi-analytique des équations de l'élasticité dans un guide d'onde cylindrique infini libre est possible, l'influence du contact avec un substrat sur les fréquences des modes acoustiques est souvent mal connue, difficile à modéliser et nécessite l'utilisation de modèles numériques. Afin de se rapprocher le plus possible du système modèle unique et libre, nous présentons dans le chapitre suivant l'étude de l'acoustique de nanofils métalliques et semi-conducteurs individuels de grands rapports d'aspects et presque libres dans un régime élastique.

# Chapitre 2

## Le nanofil, un système modèle

### Sommaire

---

<b>II.1 Montage expérimental</b> . . . . .	<b>26</b>
<b>II.2 Fabrication des nanofils de cuivre</b> . . . . .	<b>29</b>
<b>II.3 Réponse acoustique d'un nanofil unique</b> . . . . .	<b>30</b>
II.3.1 Excitation . . . . .	31
II.3.2 Détection . . . . .	32
<b>II.4 Une géométrie auto-suspendue</b> . . . . .	<b>33</b>
II.4.1 Fabrication des tranchées . . . . .	33
II.4.2 Amélioration du confinement acoustique . . . . .	34
<b>II.5 Nanofils poreux et alliages</b> . . . . .	<b>37</b>
II.5.1 Fabrication . . . . .	38
II.5.2 Premières observations . . . . .	40
II.5.3 Alliages : moyennage des propriétés élastiques . . . . .	42
II.5.4 Loi d'échelle pour les propriétés élastiques . . . . .	44
<b>II.6 Nanofils cœur/coquille</b> . . . . .	<b>48</b>
II.6.1 Modèle semi-analytique d'un cylindre infini cœur/coquille . . . . .	48
II.6.2 Fabrication des nanofils cœur/coquille . . . . .	51
II.6.3 Mesures d'acoustique picoseconde sur des nanofils Ge@Si . . . . .	52
II.6.4 Estimation de l'épaisseur de la coquille de silicium . . . . .	54

---

*Les premières expériences d'acoustique ultrarapide sur des nano-objets décrivent des ensembles d'objets sphériques constitués d'un seul métal[61]. Mais progressivement, les variations relatives d'intensité détectables par les montages expérimentaux ont été améliorées et les techniques de fabrication ont permis d'obtenir des nano-objets toujours plus complexes et de qualité. Ce chapitre décrit l'utilisation de la spectroscopie pompe-sonde résolue en temps pour la caractérisation de nano-objets grâce à leurs fréquences de vibrations. Des nanofils de cuivre, d'alliages AuAg, poreux ou à structure cœur/coquille sont étudiés dans une géométrie auto-suspendue. On montre d'abord que l'augmentation du confinement acoustique résultant de la géométrie auto-suspendue permet d'observer expérimentalement les trois premiers modes de respiration d'un nanofil de cuivre. On montre aussi qu'il est possible d'étudier des nanofils poreux et d'obtenir une loi d'échelle de la variation d'une constante élastique avec la porosité. Enfin, on montre également que l'étude du mode de respiration fondamental sur des nanofils cœur/coquille permet d'estimer l'épaisseur de la coquille du nanofil.*

Depuis près de deux décennies, de nombreux travaux sont dévolus à la spectroscopie résolue en temps des vibrations de nano-objets en contact avec un substrat : on rencontre le plus souvent l'étude de nanoparticules métalliques[61, 94, 62, 175, 226, 106] mais également des boîtes quantiques semi-conductrices[120], des nanotubes de carbone[77], des nanotriangles d'or ou d'argent[218, 100, 22], des nanocolonnes d'argent[29], des nanorods[98], des anneaux d'or[113] ou des particules cœur/coquille[159, 33]. À partir du milieu des années 2000 et des travaux pionniers de l'équipe de Michel Orrit qui a étudié la dynamique vibrationnelle de nanosphères individuelles d'or[225], plusieurs équipes ont exploré expérimentalement les vibrations de nano-objets uniques de formes, de matériaux et de tailles variés[245, 198, 146, 30, 18, 6, 209, 210, 208, 245]. Toutes ces études ont mis en évidence que les modes propres de vibration de ces systèmes sont fortement corrélés à des paramètres géométriques ou physiques des nano-objets : leur taille, leur forme, leur composition, ou leur couplage avec l'environnement. Plus récemment, pour remédier à l'amortissement extrêmement fort des oscillations acoustiques de ces nano-objets qui se produit notamment à cause de l'interaction entre l'objet nanométrique et son substrat, l'utilisation de géométries dites « auto-suspendues » a été introduite[139, 15]. L'augmentation des facteurs de qualité mécanique des nano-résonateurs qui en résulte permet alors une meilleure compréhension de leurs propriétés élastiques. C'est ce que nous décrivons dans ce chapitre.

Le montage expérimental ainsi que le procédé de fabrication des tranchées pyramidales de silicium sont d'abord détaillés puis l'utilisation d'une géométrie auto-suspendue est justifiée par l'augmentation du confinement acoustique observé pour les nanofils de cuivre. Pour chacun des systèmes étudiés (nanofil de cuivre, alliage AuAg, nanoporeux d'or, cœur/coquille Ge@Si), nous détaillons le procédé de fabrication des nanofils puis nous étudions les propriétés élastiques de nanofils individuellement suspendus au-dessus de tranchées de silicium lors d'expériences de réflectivité pompe-sonde résolues en temps.

## II.1 Montage expérimental

Dans la gamme de fréquence qui s'étend de 1 GHz à 1 THz, les expériences de spectroscopie optique résolues en temps sont largement utilisées. Dans cette approche, les électrons de conduction du nanofil métallique sont excités par l'absorption du pulse laser bleu de la pompe (Figure 2.1). Le refroidissement ultérieur des électrons par interactions électron-réseau[162] conduit à une élévation de la température du réseau cristallin. Cette augmentation de température produit à son tour la dilatation du nano-objet[94, 230]. Étant donné la diffusion particulièrement rapide des électrons dans les métaux, cette augmentation de température brutale du réseau cristallin n'est pas confinée à la surface du nanofil. En effet, si le coefficient de diffusion de la chaleur dans le cuivre est de l'ordre de  $1 \text{ cm s}^{-1}$ [35], le coefficient de diffusion des électrons est deux ordres de grandeur plus grand[217]. Dans le cas présent, la situation la plus défavorable concerne les plus gros nanofils puisque le temps

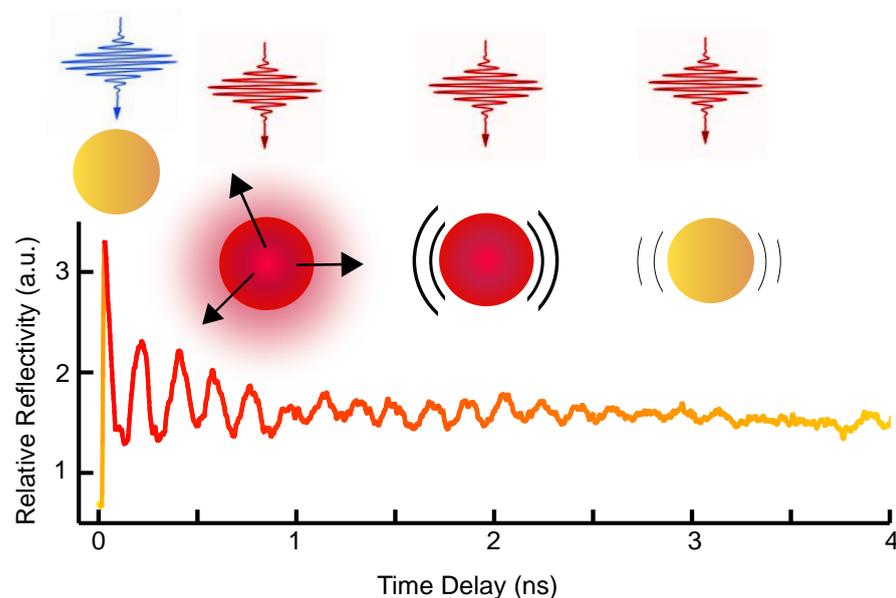


FIGURE 2.1: Signal expérimental typique de réflectivité relative obtenu sur un nano-objet métallique unique. Les 4 schémas indiquent les différentes étapes du mécanisme : absorption de la lumière du laser de pompe, dilatation du nano-objet induite par échauffement, vibration cohérente du nano-objet, refroidissement et atténuation des oscillations.

de diffusion augmente avec le carré de la taille alors que la période des oscillations est linéaire avec le rayon. Le temps de diffusion des électrons chauds sur 400 nm est donc de l'ordre de  $\tau \sim 16$  ps, un ordre de grandeur en dessous de la période acoustique correspondante pour un nanofil de cuivre ( $f_{L(0,2)} = 8$  GHz, soit  $T_{L(0,2)} = 125$  ps). En première approximation, l'ensemble de l'épaisseur du nanofil est le siège de contractions et d'expansions radiales périodiques. Ces oscillations isotropes qui s'accompagnent d'une variation du volume du nano-objet ont été identifiées comme le mode de respiration fondamental du nanofil[139, 15]. Ces oscillations périodiques entraînent une modulation de l'indice de réfraction optique du métal, ce qui se répercute sur la variation de la réflectivité relative  $\Delta R/R$  de la sonde. Ce signal oscillant est superposé à une décroissance non-oscillante dont le temps caractéristique est de l'ordre de quelques centaines de picoseconde.

Le dispositif expérimental intégral présenté sur la Figure 2.2 est un montage pompe-sonde qui utilise une source laser ultrarapide Ti :saphir (MAI-TAI Spectra) à 800 nm avec un taux de répétition de 79,3 MHz. La largeur temporelle du pulse laser est inférieure à 100 fs. Le faisceau laser traverse un premier télescope qui permet de régler la divergence puis est divisé en deux parties à l'aide d'un cube séparateur en polarisation. La quantité d'énergie envoyée sur le bras de sonde et le bras de pompe est gérée à l'aide d'une lame demi onde placée avant le cube de polarisation. La pompe est modulée à 1,8 MHz à l'aide d'un modulateur acousto-optique (AOM) pour la détection synchrone. Le diaphragme à iris (ID) permet d'éliminer l'ordre spéculaire à la traversée de l'AOM. Le faisceau de pompe est focalisé sur un nanofil unique grâce à objectif de grossissement 100 $\times$  et d'ouverture numérique 0,95 (Olympus UMPlanFI). Le montage expérimental est également doté d'un dispositif d'imagerie en lumière blanche afin de repérer la position des nanofils. Par ailleurs, afin d'éviter que

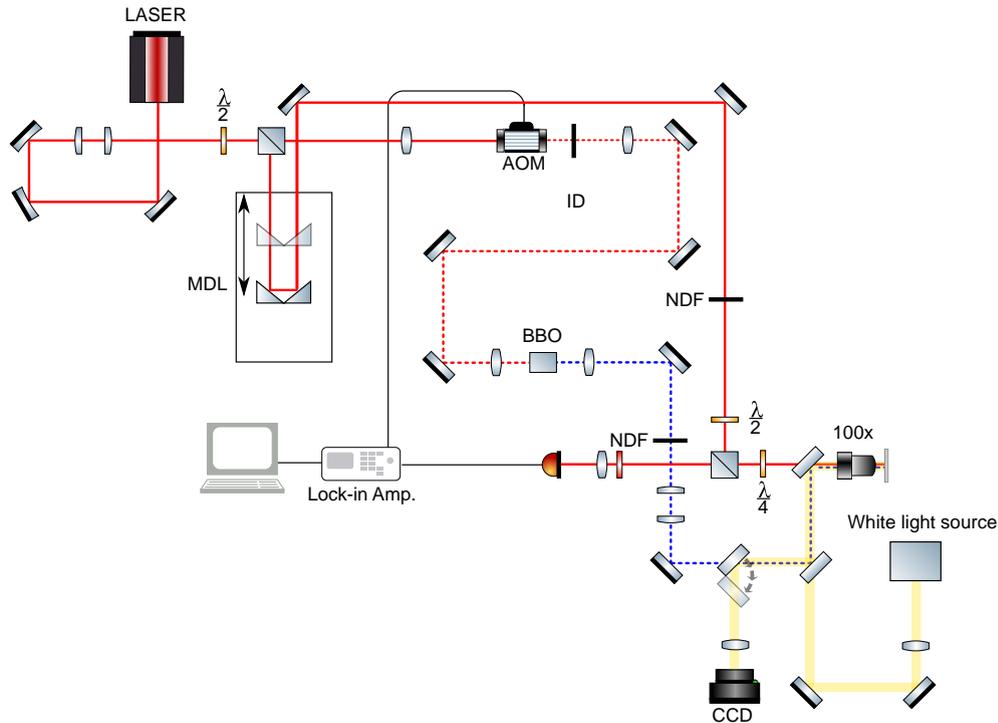


FIGURE 2.2: Schéma du montage expérimental complet utilisé dans l'équipe à l'INSP pour étudier les vibrations cohérentes de nano-objets individuels. AOM : modulateur acousto-optique, BBO : cristal doubleur, NDF : filtre à densité neutre, CCD : caméra, MDL : ligne à retard motorisée. ID : diaphragme à iris.

de la lumière diffusée par le laser de pompe n'affecte la détection synchrone, un cristal doubleur (BBO) est inséré sur le chemin de la pompe. Les expériences sont donc réalisées avec une pompe à  $\lambda_{\text{pompe}} = 400 \text{ nm}$  et une sonde à  $\lambda_{\text{sonde}} = 800 \text{ nm}$ . Les diamètres,  $d_s$  et  $d_p$ , du faisceau laser de pompe et de sonde à  $1/e^2$  sont estimés à  $d_s \simeq 1 \mu\text{m}$  et  $d_p \simeq 0,5 \mu\text{m}$ . Le faisceau de sonde passe lui à travers la ligne à retard motorisée. Deux coins de cube sont montés sur une platine de translation d'une longueur de 60 cm en face d'un coin de cube statique. Les trois allers-retours parcourus par la lumière nous permettent d'obtenir une différence de chemin optique maximal de 3,6 m ce qui correspond à un délai maximum de 12 ns entre les pulses de la pompe et de la sonde (on approche ainsi le taux de répétition du laser de 12,6 ns ce qui permet de limiter les délais pour lesquels nous serions « aveugle » à la présence d'un signal). Le faisceau sonde est ensuite focalisé par le même objectif que celui utilisé pour focaliser le faisceau de pompe sur un nanofil. Un cube à séparation de polarisation est positionné à l'entrée de l'objectif afin de collecter le faisceau de sonde réfléchi par l'échantillon. La lame quart d'onde positionnée après le cube séparateur permet de polariser la lumière de façon circulaire à l'aller et de récupérer au retour une polarisation linéaire à  $90^\circ$  de la polarisation incidente pour traverser le cube séparateur en transmission. Ce faisceau réfléchi est récupéré sur une photodiode à avalanche positionnée après un filtre coloré rouge pour s'affranchir de la présence de toute lumière bleue diffusée.

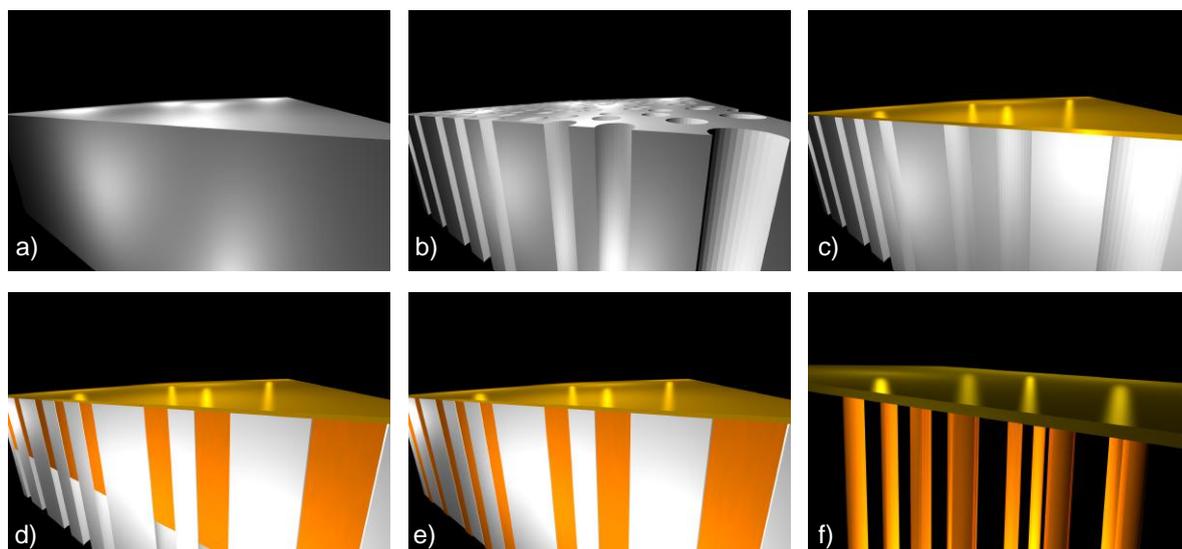


FIGURE 2.3: (a) Membrane de polycarbonate de  $30\ \mu\text{m}$  d'épaisseur. (b) Après irradiation par des ions lourds accélérés, les zones modifiées par les ions sont sélectivement dissoutes et agrandies jusqu'à obtenir des canaux nanométriques cylindriques et lisses. (c) Une cathode est réalisée en pulvérisant une couche d'or de  $100\ \text{nm}$  d'épaisseur sur un côté de la membrane. (d)-(e) L'électrodéposition de Cu dans les pores de la membrane est réalisée dans un système à deux électrodes. (f) La membrane plastique est dissoute dans le dichlorométhane.

## II.2 Fabrication des nanofils de cuivre

Pour fabriquer les nanofils de cuivre[222], on utilise des membranes de polycarbonate de  $30\ \mu\text{m}$  d'épaisseur (Makrofol N, Bayer AG). Ces membranes sont irradiées par l'équipe de Maria-Eugenia Toimil Morales dans l'accélérateur linéaire UNILAC du GSI Helmholtz Centre for Heavy Ion Research de Darmstadt avec des ions lourds d'or accélérés à  $\sim 2\ \text{GeV}$  avec une fluence typique de  $\sim 10^8\ \text{ions/cm}^2$ . À la traversée de la membrane, chaque ion endommage une zone rectiligne qui forme une « trace latente ». Après cette irradiation, les deux côtés de la membrane sont exposés à la lumière ultraviolette pendant 1 h (30 W, T-30M, Vilber Lourmat). Les « traces latentes » sont ensuite dissoutes sélectivement dans une solution chaude ( $50\ ^\circ\text{C}$ ) de NaOH à  $6\ \text{mol L}^{-1}$  pendant 4 min à 15 min résultant en des pores nanométriques cylindriques de  $100\ \text{nm}$  à  $400\ \text{nm}$  de diamètre. L'augmentation du diamètre des pores est quasi-linéaire avec le temps de gravure chimique. Cette membrane est alors utilisée comme matrice pour la synthèse de nanofils métalliques (Figure 2.3b). On pulvérise une couche d'or de  $200\ \text{nm}$  d'épaisseur sur un côté de la membrane (Figure 2.3c) pour servir de cathode. Cathode qui est ensuite renforcée par le dépôt électrochimique d'une couche de cuivre d'environ  $1\ \mu\text{m}$  d'épaisseur. On réalise alors le dépôt de cuivre dans les pores de la membrane de polycarbonate en trempant la membrane dans une solution de sulfate de cuivre et d'acide sulfurique ( $238\ \text{g L}^{-1}\ \text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  et  $21\ \text{g L}^{-1}\ \text{H}_2\text{SO}_4$ ) et en appliquant une tension constante  $U = -0,03\ \text{V}$  dans un montage à deux électrodes (Figure 2.3d-e). Après la croissance des nanofils, la membrane

de polymère est dissoute dans du dichlorométhane (Figure 2.3f), puis les nanofils sont détachés de la cathode par agitation aux ultrasons. Dans une dernière étape, les nanofils sont déposés en solution sur un substrat (un wafer de silicium avec ou sans structuration par exemple). Lorsque l'étape de dissolution est bien réalisée, les nanofils de cuivre apparaissent lisses et orange en microscopie optique en lumière blanche (Figure 2.4).

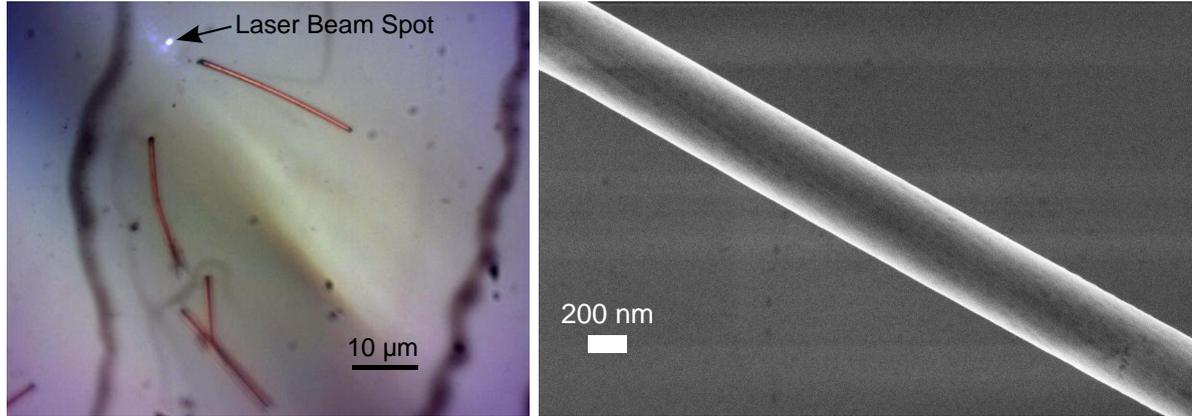


FIGURE 2.4: (a) Des nanofils de cuivre de 400 nm de diamètre, déposés sur un substrat de silicium, sont observés en lumière blanche à l'aide d'un objectif 100× dont l'ouverture numérique est 0.95. Le laser de sonde est focalisé quelques micromètres à côté d'un nanofil. (b) Un de ces nanofils observé au microscope électronique à balayage.

### II.3 Réponse acoustique d'un nanofil unique

Lorsqu'on enregistre la variation de réflectivité en fonction du délai temporel entre la pompe et la sonde sur un nanofil de cuivre unique déposé sur un substrat de silicium, on obtient le signal de la Figure 2.5a. Après la variation initiale, brève et brutale, liée à la mise hors équilibre du nuage électronique et qu'on nomme coïncidence électronique, on observe une modulation du signal de réflectivité relative à deux fréquences caractéristiques. La première fréquence  $f_1 = f_{L(0,2)} = 15,6$  GHz est en très bon accord avec la fréquence du mode de respiration radiale fondamental calculé à l'aide de l'équation 1.75 avec les propriétés élastiques du cuivre polycristallin  $\nu = 0,35$ ,  $E = 110$  GPa et  $\rho = 8700 \text{ kg m}^{-3}$ [128]. La seconde composante basse fréquence  $f_0$  est liée au contact de Hertz entre le nanofil et son substrat et a déjà été étudiée expérimentalement[85, 13]. Ces deux fréquences dépendent de la taille du nanofil et augmentent lorsque le rayon du nanofil diminue (insert de la Figure 2.5). Le facteur de qualité des oscillations  $Q_i = \pi f_i \tau_i$  peut être obtenu en ajustant les signaux de réflectivité par une somme de cosinus amortis de la forme

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = \sum_i A_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \cos(2\pi f_i t + \phi_i) \quad (2.1)$$

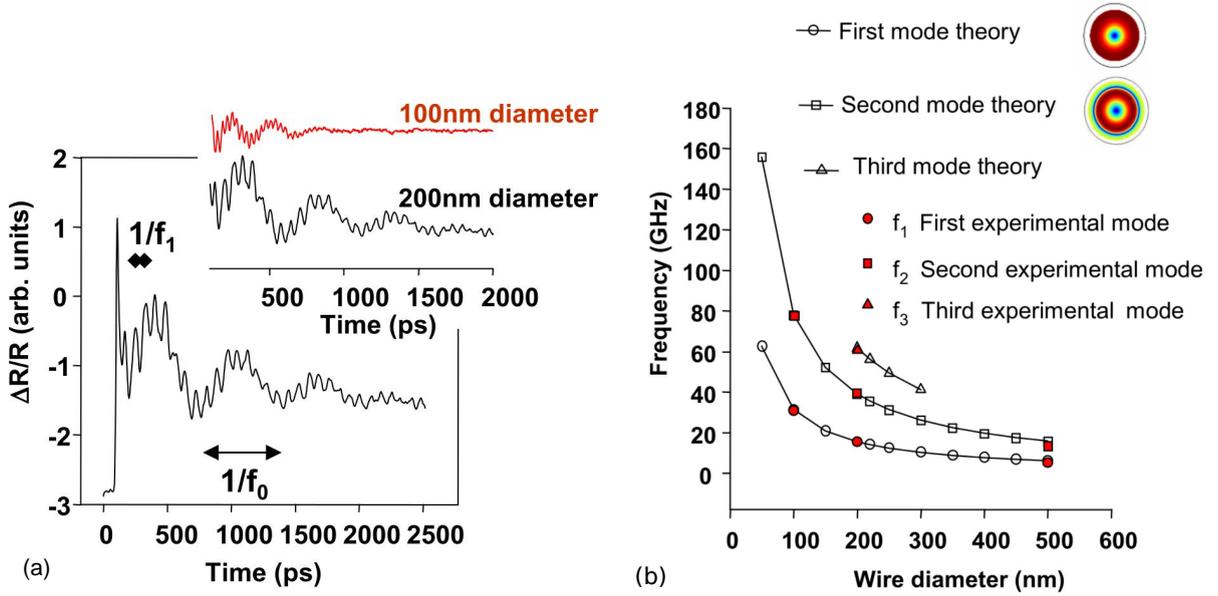


FIGURE 2.5: (a) Signal de réflectivité relative résolue en temps obtenu sur un nanofil de cuivre de 200 nm de diamètre déposé sur un substrat de silicium. Après la coïncidence électronique, on observe une composante basse fréquence ( $f_0$ ) liée au contact entre le fil et le substrat et une composante haute fréquence ( $f_1$ ) liée au mode de respiration fondamental du nanofil. En insert : Mesures résolues en temps pour un nanofil de cuivre de 100 nm de diamètre (en rouge) et de 200 nm de diamètre (en noir). (b) Calculs (marqueurs ouverts) par éléments finis des fréquences des trois premiers modes de respiration pour différentes tailles de nanofils de cuivre et mesures expérimentales (marqueurs rouges) sur des nanofils uniques auto-suspendus. Ces Figures sont extraites du travail de l'équipe de l'INSP de 2013[15].

On estime alors un facteur de qualité de l'ordre de  $Q_1 = 30$  pour les nanofils de 200 nm et 100 nm de diamètre. Ces facteurs de qualité sont de l'ordre de grandeur d'expériences précédentes dans des géométries similaires[209]. L'amortissement important du mode de respiration fondamental est lié notamment au canal de relaxation que constitue le contact entre le nanofil et son substrat.

### II.3.1 Excitation

Au-delà de la fréquence des oscillations, on peut affirmer que le mode acoustique dont la fréquence est  $f_1 = f_{L(0,2)}$  est le mode fondamental de respiration radiale en explorant les phénomènes d'excitation des modes acoustiques par un pulse laser de pompe. Comme décrit dans la partie II.1, on peut considérer qu'en première approximation, l'ensemble de l'épaisseur du nanofil est chauffé de manière homogène par le laser de pompe ce qui entraîne une déformation initiale purement radiale de la forme :  $\vec{\eta}(\vec{r}) = \eta_0 \vec{e}_r$ . On projette alors le champ de déplacement  $\vec{u}_{L(0,j)}(\vec{r}, \vec{k})$  de chaque mode acoustique  $j$  représenté sur la Figure 1.6 sur ce champ de déformation initiale et on intègre sur une section de cylindre pour obtenir l'excitation  $A_j(k)$  :

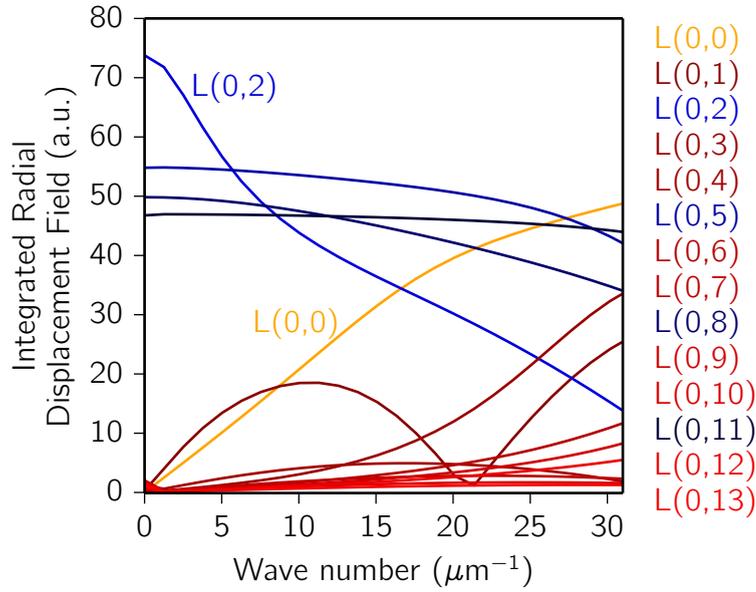


FIGURE 2.6: Intégrale du champ de déplacement radial projeté sur la déformation initiale sur la section d'un cylindre pour tous les modes acoustiques de la Figure 1.6 en fonction du nombre d'onde.

$$A_j(k) = \iint_{section} \eta_0 \vec{e}_r \cdot \vec{u}_{L(0,j)}(\vec{r}, \vec{k}) r d\theta dr \quad (2.2)$$

On représente  $A_j(k)$  pour les treize premiers modes sur la Figure 2.6. On observe ainsi qu'à vecteur d'onde nul, cette intégrale « d'excitation » est nulle pour tous les modes sauf pour les modes  $L(0,2)$ ,  $L(0,5)$ ,  $L(0,8)$  et  $L(0,11)$  qui sont les quatre premiers modes de respiration radiale. Tous les autres modes ne possèdent pas de composante radiale ou possèdent une composante radiale en moyenne nulle sur une section du cylindre[139]. Lorsque  $k$  augmente, on observe que certains modes supplémentaires ( $L(0,0)$  ou  $L(0,1)$  par exemple) ont une composante d'excitation radiale  $A_j(k)$  non nulle.

### II.3.2 Détection

Si on excite préférentiellement des modes de dilatation axisymétriques à cause du champ de déformation initial, les phénomènes de détection sont aussi essentiels et donnent des règles de sélection pour l'observation des modes acoustiques. On décrit généralement la réflectivité relative en acoustique picoseconde par l'équation 2.3[149, 220] :

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = \rho(t) + i\phi(t) = -2ik_0 u_z(0,t) + ik_0 \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta} \frac{4\tilde{n}}{1 - \tilde{n}^2} \int_0^\infty e^{2ik_0 \tilde{n} z} \eta(z,t) dz \quad (2.3)$$

où  $u_z(0,t)$  est le déplacement hors plan à la surface du matériau,  $k_0$  est le vecteur d'onde dans le vide du champ électrique incident,  $\tilde{n}$  est l'indice optique du matériau,  $\eta(z,t) = \frac{\partial u_z}{\partial z}$  un champ de déformation longitudinale et  $\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}$  le coefficient photoélastique. Cette équation considère les changements relatifs d'amplitude ( $\rho$ ) et de phase ( $\phi$ ) d'une onde lumineuse plane monochromatique polarisée rectilignement réfléchi en incidence normale par une couche semi-infinie selon la profondeur  $z$ . C'est évidemment bien éloigné des phénomènes de détection dans un objet unidimensionnel comme un nanofil mais on identifie une composante liée au déplacement hors plan de la surface et une composante liée à l'effet photoélastique. On détectera d'autant mieux un mode qui présente un fort déplacement de surface et une grande variation de volume. Les phénomènes de détection sont donc également favorables à la détection des modes de respiration.

## II.4 Une géométrie auto-suspendue

L'étude des vibrations acoustiques hautes fréquences dans les nano-objets est d'autant plus précise que les ondes sont peu atténuées. En effet, la principale caractéristique extraite des expériences pompe-sonde résolues en temps sur les nano-objets est la fréquence de la vibration. Or, la finesse spectrale est inversement proportionnelle à la durée de la vibration, on cherche donc à maximiser la durée de vibration. De multiples sources d'altération du signal temporel ont été évoquées : l'étalement inhomogène qui est un effet de moyennage lors de l'étude d'ensembles d'objets, l'atténuation intrinsèque du matériau qui est liée à la qualité cristalline de l'échantillon notamment et l'atténuation extrinsèque qui est un transfert d'énergie radiatif le long du nano-objet ou vers le substrat. Cette dernière source d'altération du signal temporel est souvent évoquée comme « clamping losses » par les nanomécaniciens des NEMS[76, 91] et de l'optomécanique[168] notamment. Dans la communauté des acousticiens, un effort important a été réalisé ces dernières années pour découpler le nano-résonateur de son support grâce à la microstructuration des substrats[78, 139, 15]. Cette microstructuration est réalisée par des techniques usuelles de microfabrication en salle blanche. Nous décrivons par la suite l'approche utilisée à l'INSP.

### II.4.1 Fabrication des tranchées

Les différentes étapes sont résumées dans la figure 3.13. On utilise des wafer de silicium de type n orientés (001). Une oxydation sèche dans un four à tube sous dioxygène permet la formation d'une couche de silice qui jouera le rôle d'un masque solide pour la gravure au KOH. Le substrat est ensuite enduit d'une résine positive (Shipley S1813) à la tournette puis exposé à la lumière UV grâce à un procédé de lithographie optique standard. L'étape clé de ce procédé est l'alignement de la lithographie avec l'axe (110) du wafer afin de pouvoir réaliser une gravure correcte selon les plans

(111) du silicium. Après le développement de la résine et le recuit, l'échantillon est sélectivement gravé au HF puis la résine est dissoute dans l'acétone. Le masque d'oxyde permet la protection du silicium quand le wafer est trempé dans du KOH chaud. La gravure sélective du silicium permet la définition de tranchées pyramidales avec des facettes (111). Le masque de silice est ensuite dissout dans du HF.

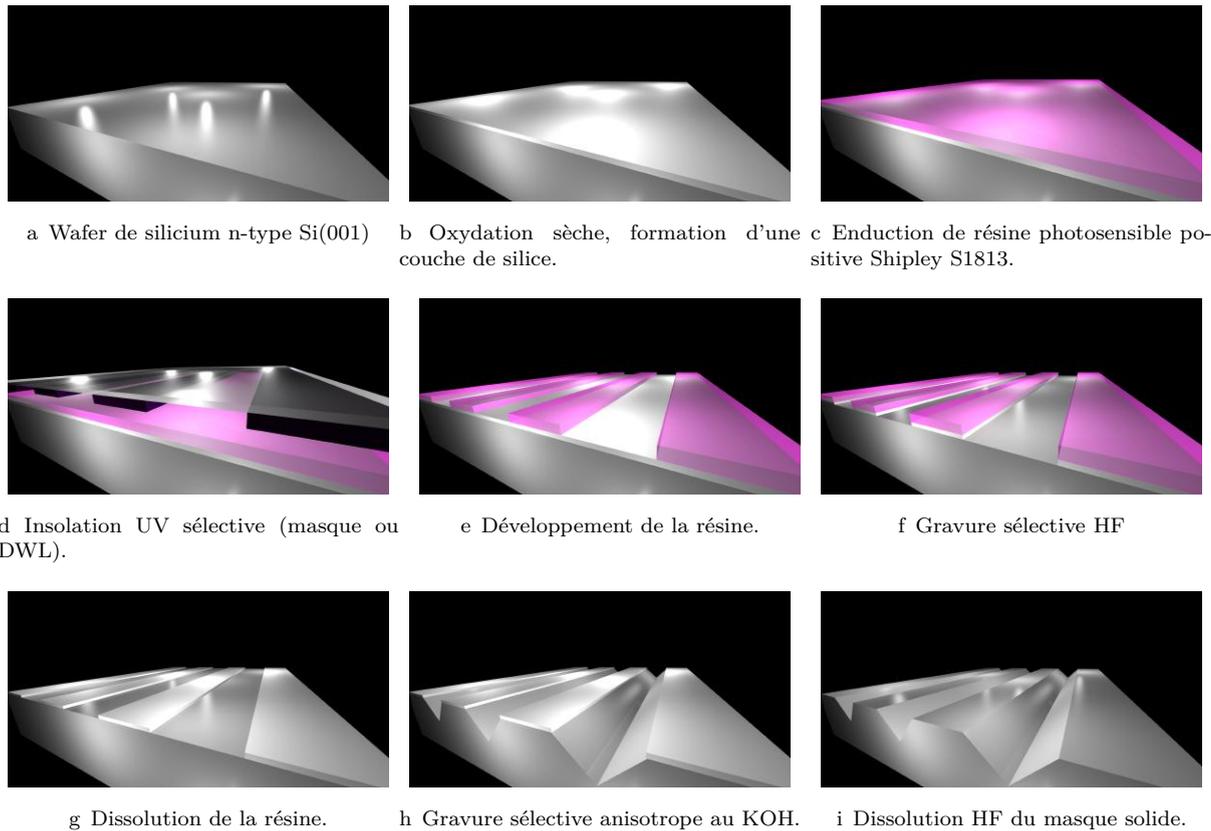


FIGURE 2.7: Neuf étapes de fabrication des tranchées de silicium par gravure chimique anisotrope.

## II.4.2 Amélioration du confinement acoustique

Grâce à l'élimination de l'influence du substrat en plaçant les nanofils au-dessus des tranchées de silicium, on espère augmenter la résolution spectrale des expériences résolues en temps. On s'attend également à ce qu'on puisse détecter des signatures acoustiques des modes de plus haute fréquence. La figure 2.8 présente une telle expérience sur un nanofil de cuivre de 200 nm librement suspendu au-dessus d'une tranchée de silicium. Le paysage vibrationnel est largement enrichi par rapport à la Figure 2.5a. Le facteur de qualité des oscillations dépasse à présent  $Q = 100$  et le spectre fréquentiel (Figure 2.5b) exhibe entre trois et quatre composantes. Les composantes  $f_1 = 15,6$  GHz,  $f_2 = 39,6$  GHz et  $f_3 = 60$  GHz sont en très bons accords avec les fréquences des trois premiers modes

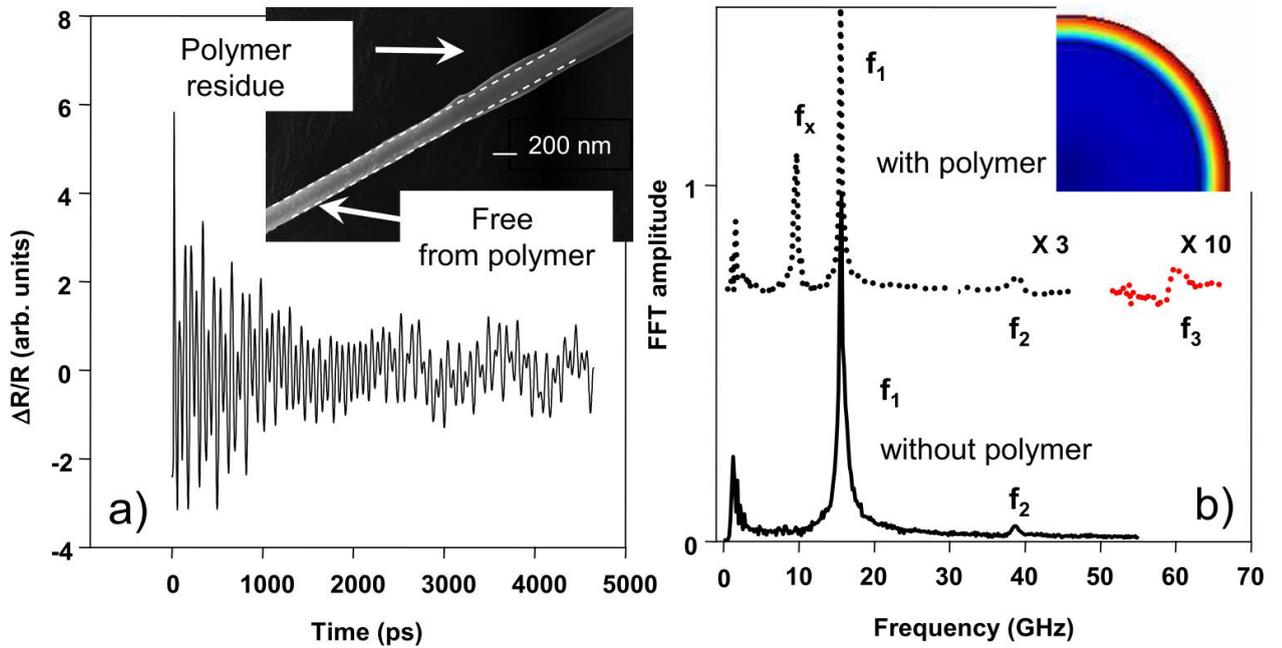


FIGURE 2.8: (a) Signal de réflectivité relative obtenu sur un nanofil de cuivre de 200 nm de diamètre suspendu au-dessus d'une tranchée de silicium. L'insert est une image au microscope électronique qui met en évidence la présence d'un résidu de polymère de la membrane sur certains nanofils. (b) Spectre fréquentiel du signal en Figure 2.8a (avec polymère) et d'un autre signal réalisé sur un nanofil sans polymère. Sur ce dernier, on distingue les trois signatures fréquentielles des modes de respiration  $f_1 = f_{L(0,2)} = 15,6$  GHz,  $f_2 = f_{L(0,5)} = 39,6$  GHz et  $f_3 = f_{L(0,8)} = 60$  GHz. La composante  $f_x = 9$  GHz est en accord avec un mode de vibration confiné dans la coquille composée de polymère lorsqu'on considère une épaisseur de 20 nm, une densité de  $1200 \text{ kg m}^{-3}$ , un module de Young de 2,1 GPa et un coefficient de Poisson de 0,38, en accord avec les propriétés mécaniques du polymère Makrofol. Le champ de déplacement de ce mode est représenté en insert. Ces Figures sont extraites du travail de l'équipe de l'INSP de 2013[15].

de respiration d'un nanofil de cuivre infini et libre :  $f_1 = f_{L(0,2)}$ ,  $f_2 = f_{L(0,5)}$  et  $f_3 = f_{L(0,8)}$ . Les différentes fréquences de ces modes de respiration mesurées sur différentes tailles de nanofils ont été reportées sur la Figure 2.5b et sont en très bon accord avec la résolution de l'équation 1.75 ou des simulations par éléments finis. On observe également que la signature acoustique des nanofils dépend de la présence de résidu de polymère. En effet, sur les nanofils qui présentent un résidu de polymère, on observe une composante supplémentaire entre 3 GHz et 10 GHz qui est attribuée à la vibration d'une coquille de polymère de 15 nm à 50 nm d'épaisseur. On se reportera au travail de l'équipe de l'INSP de 2013 pour plus de détails[15]. D'autres phénomènes comme l'interaction entre deux nanofils ont aussi pu être explorés sur ces nanofils suspendus grâce à l'amélioration du confinement acoustique et donc de la résolution spectrale.

Ainsi, jusqu'au chapitre 4, la quasi-totalité des systèmes étudiés seront des nanofils uniques suspendus au-dessus de tranchées de silicium. En étudiant des nano-objets individuellement

---

suspendu, on évite l'étalement inhomogène, on profite de l'augmentation du confinement acoustique et on obtient donc une meilleure résolution spectrale. Après cette première étude sur des nanofils de cuivre individuels, on se concentre sur des nanofils poreux en or et des nanofils semi-conducteurs cœur/coquille.

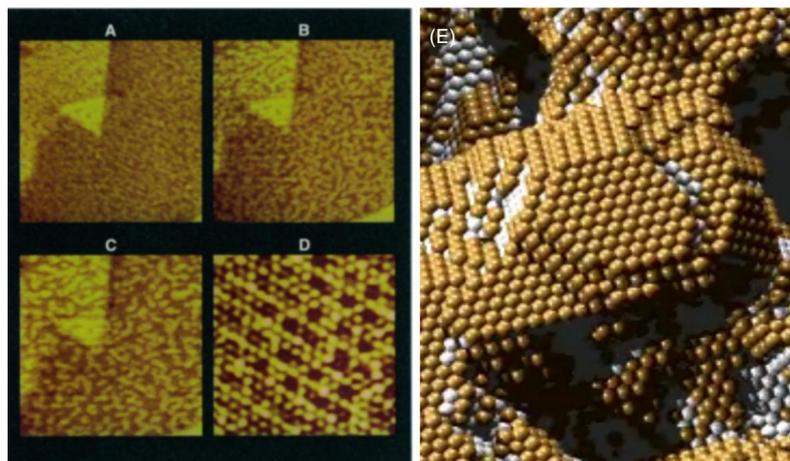


FIGURE 2.9: (a)-(c) Séquence d'images au microscope à effet tunnel (STM) de la corrosion d'un alliage Ag-Au à l'air qui montre la reconstruction de surface. (d) Zoom de l'image (c) avec une résolution atomique. (e) Extrait d'une simulation Monte Carlo de dissolution de l'argent dans un alliage Ag-Au, réalisée par J. Erlebacher[71].

## II.5 Nanofils poreux et alliages

La corrosion d'alliages binaires métalliques or-argent ou or-cuivre était déjà utilisée dans les cultures andines précolombiennes pour obtenir des surfaces d'or pur à partir d'un alliage moins précieux[207, 21]. Cette technique de « désalliage » (néologisme à partir de l'anglais « dealloying ») connaît un regain d'intérêt depuis la fin des années 1990[167] et le début des années 2000[72] (voir Figure 2.9) avec la fabrication de nano-objets poreux. Les mécanismes physiques qui se déroulent pendant ce désalliage et qui mènent à un enrichissement en or de la surface ou à des structures d'or nanoporeuses (pores et filaments dont la taille est comprise entre quelques nanomètres et quelques centaines de nanomètres) sont mal compris mais de plus en plus explorés[72, 174]. Les propriétés particulières de ces objets nanoporeux ont également permis d'envisager l'or nanoporeux pour des applications en catalyse chimique[66, 243], filtration[195], membranes d'échanges pour des piles à combustible[241], détection de molécules[121], ou micro-actionneur[119]. Les propriétés mécaniques des objets nanoporeux sont également largement explorées, notamment par nanoindentation[87, 130]. La limite d'élasticité étant la contrainte pour laquelle un matériau cesse de se déformer de façon élastique, il a notamment été démontré que la limite d'élasticité des objets nanoporeux était fortement dépendante de l'organisation et de la taille des pores et des ligaments et de leur organisation spatiale et qu'elle pouvait atteindre voire dépasser la limite d'élasticité de l'or non poreux[87, 231, 16]. En deçà de cette limite d'élasticité, on s'attend à ce que les paramètres élastiques de l'or nanoporeux suivent des lois d'échelle prédites pour les matériaux poreux[79], par exemple

$$E_{\text{np}} \propto E_s \left( \frac{\rho_{\text{np}}}{\rho_s} \right)^n \quad (2.4)$$

où les modules de Young de l'or nanoporeux et de l'or non poreux (« solide ») sont notés respectivement  $E_{np}$  et  $E_s$ . Les masses volumiques de l'or nanoporeux et de l'or non poreux (« solide ») sont notées  $\rho_{np}$  et  $\rho_s$ .  $n$  dépend de la déformation de la structure via la flexion des ligaments. Des constantes de proportionnalité de l'ordre de l'unité et  $n \simeq 2$  pour des structures dites à « cellules ouvertes » sont régulièrement utilisées pour décrire les propriétés élastiques de l'or nanoporeux[16, 130] même si certaines études rapportent des modules élastiques bien plus élevés que prévu pour des couches minces d'or nanoporeux[147]. Dans cette partie, on explore les propriétés de nanofils poreux dans le domaine élastique par des expériences pompe-sonde résolues en temps. De la même façon que précédemment, les expériences sont réalisées sur des nanofils uniques, suspendus au-dessus de tranchées (sauf lorsque c'est explicitement infirmé, notamment pour les nanofils les plus poreux et donc les plus fragiles). On montre d'abord qu'il est possible d'observer des modes de « quasi-respiration » sur ces systèmes et que l'augmentation de la porosité s'accompagne d'une diminution du facteur de qualité des nano-résonateurs. On montre ensuite qu'on retrouve une loi d'échelle similaire à l'équation 2.4 pour la constante élastique  $C_{11}$  en fonction de la porosité.

### II.5.1 Fabrication

Les nanofils utilisés ont été synthétisés au GSI Helmholtz Centre for Heavy Ion Research de Darmstadt par Loïc Burr par électrodéposition dans les canaux nanométriques d'une membrane de polycarbonate préalablement irradiée par des ions lourds fortement accélérés à 11,1 MeV/n dans l'accélérateur linéaire du GSI. Les zones traversées par les ions sont sélectivement gravées et agrandies dans une solution aqueuse de NaOH à  $2 \text{ mol L}^{-1}$  à  $50^\circ\text{C}$  pendant 30 minutes. Les nanocanaux ainsi obtenus possèdent un diamètre d'environ 185 nm. Avant de procéder au dépôt électrochimique, une fine couche conductrice d'or d'environ 200 nm est pulvérisée sur une face de la membrane afin de servir de cathode. Cette cathode est renforcée par une électrodéposition de cuivre (dans une solution  $\text{CuSO}_4$  à  $238 \text{ g L}^{-1}$  et de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  à  $21 \text{ g L}^{-1}$ , au potentiel de  $-0,6 \text{ V}$  et à  $60^\circ\text{C}$ ). On réalise alors le dépôt électrochimique de l'or ou de l'alliage AuAg dans les nanocanaux de la membrane dans une configuration à trois électrodes à un potentiel constant de  $-1,1 \text{ V}$  par rapport à l'électrode de référence Ag/AgCl et à  $60^\circ\text{C}$ . Des électrolytes avec différentes concentrations de  $\text{KAu}(\text{CN})_2$  et de  $\text{KAg}(\text{CN})_2$  sont préparés (Tableau 2.10) pour obtenir des nanofils d'alliages AuAg dont la fraction molaire en or varie de  $p_{\text{Au}} = 0,2$  à  $p_{\text{Au}} = 0,6$ . Après l'électrodéposition, la membrane de polycarbonate est dissoute dans le dichlorométhane et les nanofils sont nettoyés grâce à trois cycles consécutifs d'ultrasonication, agitation mécanique, centrifugation et échange du dichlorométhane. Afin de déposer les nanofils sur des grilles de microscope électronique à transmission (TEM) en cuivre ou sur des substrats de silicium microstructurés par des tranchées, les substrats sont immergés pendant 10 minutes dans la solution de nanofils dispersés dans du dichlorométhane[31]. Contrairement aux alliages, les nanofils poreux nécessitent une étape supplémentaire. Le substrat de silicium microstructuré sur lequel sont déposés les nanofils est ainsi immergé dans une solution concentrée d'acide

Électrolyte	Neutraliseur d'acidité	Au (fraction mol. %)	diamètre nanofil (nm)
20 mM KAu(CN <sub>2</sub> )	0.25 M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	100	185 ± 5 nm
50 mM KAu(CN <sub>2</sub> ) 20 mM KAg(CN <sub>2</sub> )	0,25 M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	60 ± 5**	185 nm
50 mM KAu(CN <sub>2</sub> ) 50 mM KAg(CN <sub>2</sub> )	0,25 M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	40 ± 5**	185 ± 5 nm
40 mM KAu(CN <sub>2</sub> ) 50 mM KAg(CN <sub>2</sub> )	0,25 M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	36 ± 3*	185 ± 5 nm
30 mM KAu(CN <sub>2</sub> ) 50 mM KAg(CN <sub>2</sub> )	0,25 M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	29 ± 2*	185 ± 5 nm
20 mM KAu(CN <sub>2</sub> ) 50 mM KAg(CN <sub>2</sub> )	0,25 M Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	17 ± 5*	185 ± 5 nm

FIGURE 2.10: Électrolytes utilisés pour la croissance électrochimique des nanofils d'alliages AuAg, neutraliseur d'acidité utilisé, taille des pores de la membrane utilisée (et donc des nanofils) et fraction molaire d'or dans le nanofil final. La composition molaire des nanofils est vérifiée par diffraction des rayons X au microscope électronique en transmission pour les nanofils marqués par une astérisque. Cette composition n'a pas été vérifiée au TEM pour les nanofils marqués par deux astérisques. Pour ces derniers, la composition est estimée par EDX de plus faible résolution au MEB.

nitrique pendant 3h à température ambiante ce qui entraîne la dissolution de l'argent dans l'alliage. La composition des alliages AuAg avant dissolution de l'argent a été obtenue par diffraction des rayons X au TEM (Tableau 2.10).

Au cours de la dissolution de l'argent, de nombreux réarrangements structuraux ont lieu et entraînent une réduction de la taille des nanofils de l'ordre de 20% à 30% (voir Figure 2.11, les alliages initiaux possédaient un diamètre de l'ordre de 185 nm). Cette contraction est rencontrée de façon générale dans cette méthode de fabrication et est expliquée par des déformations plastiques au cours de la dissolution[174, 137]. On observe également que les nanofils, censés être poreux, obtenus après dissolution d'un alliage AuAg dont la fraction molaire en or est  $p_{Au} = 0,60$  ne le sont en fait pas (Figure 2.11a). La contraction, les réarrangements, les phénomènes de diffusion et de ségrégation de surface mènent à la formation d'un nanofil d'AuAg non poreux, enrichi en or par rapport à l'alliage initial mais qui conserve une fraction non négligeable d'argent (les nanoparticules observées sur le nanofil sont notamment des nanoparticules d'argent qui se forment pendant le vieillissement de nanofils entreposés à l'air)[31]. On cherche maintenant à observer la réponse acoustique de ces différents nanofils.

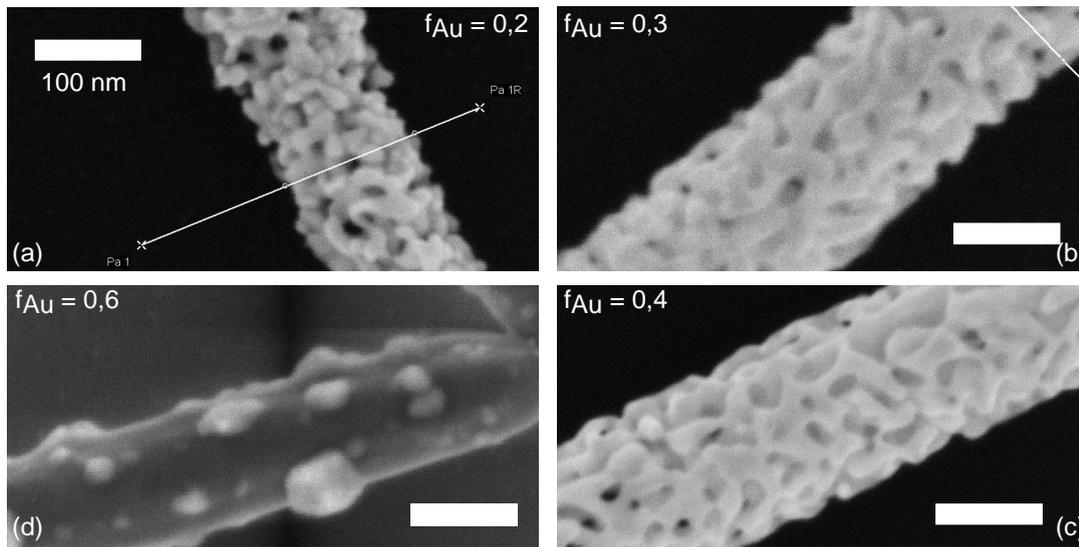


FIGURE 2.11: 4 nanofils observés au microscope électronique à balayage pour différentes fractions molaires initiales d'or. (a)  $p_{\text{Au}} = 0,2$  (b)  $p_{\text{Au}} = 0,3$  (c)  $p_{\text{Au}} = 0,4$  (d)  $p_{\text{Au}} = 0,6$ . La porosité diminue lorsqu'on va de (a) à (d). Il semble même que la dernière fraction molaire ( $p_{\text{Au}} = 0,6$ ) ne conduise pas à un objet poreux après dissolution de l'argent. On observe sur la surface une légère ségrégation d'argent qui ne se dissout pas en accord avec les travaux de thèse de Loïc Burr[31]. On remarque également que les nanofils poreux dont la fraction molaire en or est  $p_{\text{Au}} = 0,3$  et  $p_{\text{Au}} = 0,4$  sont bien cylindriques avec un diamètre de  $170 \pm 10$  nm après contraction mais que les nanofils dont la fraction molaire en or est  $p_{\text{Au}} = 0,2$  sont plus petits et de section variable entre 130 nm et 150 nm.

## II.5.2 Premières observations

On utilise le montage expérimental décrit extensivement dans la partie II.1. On enregistre le signal de réflectivité relative en fonction du délai entre la pompe et la sonde. La puissance moyenne du laser de pompe ne dépasse pas 200  $\mu\text{W}$  quand celle de la sonde est limitée à 20  $\mu\text{W}$ . Les impulsions de pompe et de sonde sont focalisées sur une tâche de l'ordre de 0,5 à 1  $\mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$ . Avec le laser Ti :saphir utilisé, l'énergie surfacique par impulsion est de l'ordre de 12  $\text{pJ } \mu\text{m}^{-2}$  à 0,3  $\text{pJ } \mu\text{m}^{-2}$  respectivement pour la pompe et la sonde. La réflectivité de l'échantillon est mesurée à l'aide d'une photodiode à avalanche et d'une détection synchrone. Dans de telles conditions expérimentales, le signal acoustique enregistré ainsi que la réflectivité restent constantes durant tout le processus de moyennage. On reporte sur la Figure 2.12a, cinq signaux dérivés de réflectivité relative résolue en temps pour des nanofils alliages AuAg dont la fraction molaire en or varie de  $p_{\text{Au}} = 0,2$  à  $p_{\text{Au}} = 1$  (on représente le signal dérivé pour s'affranchir de la composante décroissante thermique). Les spectres de fréquences de ces signaux sont représentés sur la Figure 2.12c. Malgré de fortes fluctuations d'un fil à l'autre, il semble que la fréquence des modes acoustiques détectés et excités pour ces alliages augmente lorsque la fraction en or diminue. Par ailleurs, ces fréquences sont comprises entre 12 GHz et 15 GHz. Les facteurs de qualité des oscillations sont similaires entre les différents signaux et varient de quelques dizaines à une centaine.

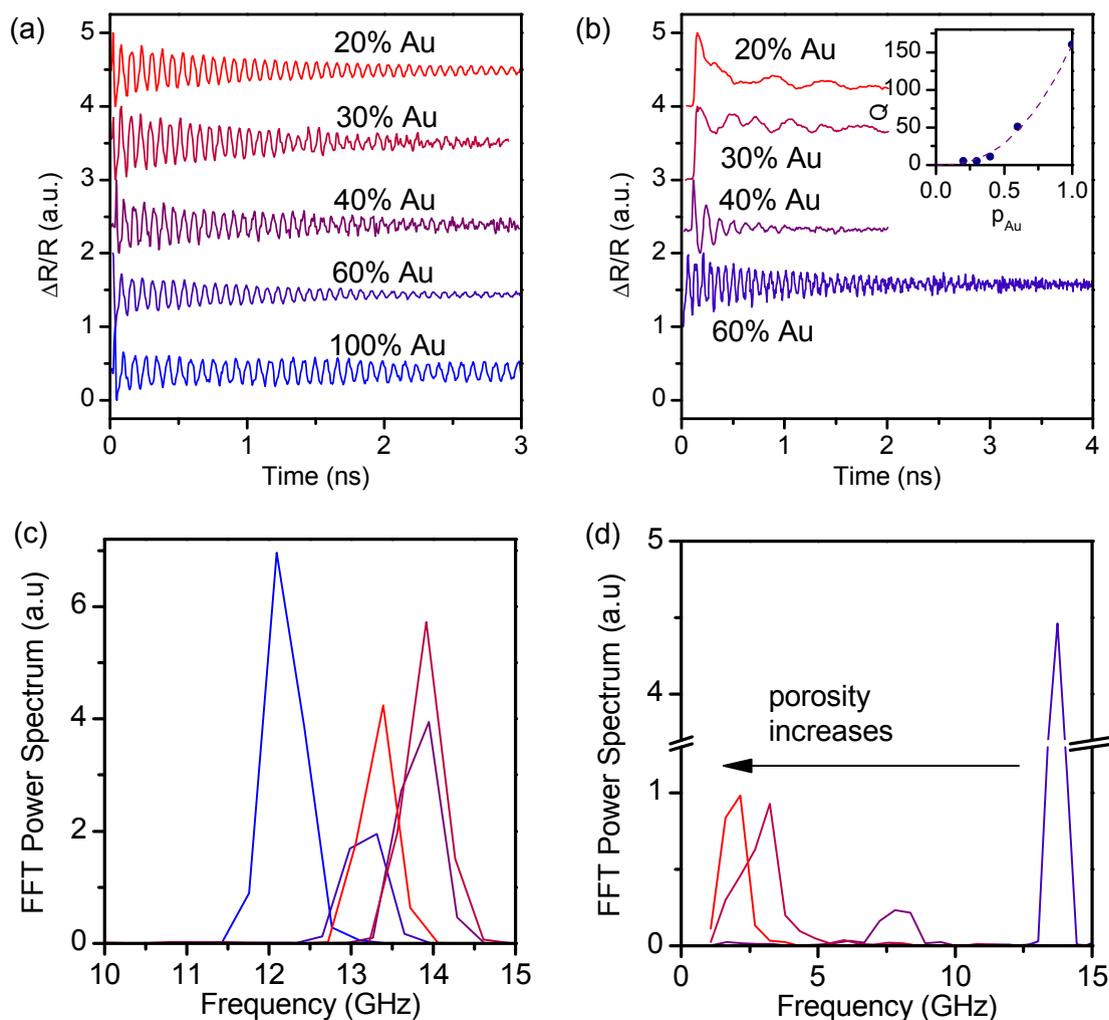


FIGURE 2.12: (a) Variation relative de réflectivité pour cinq nanofils d'alliages AuAg (pourcentage molaire indiqué au-dessus de chaque trace) représentatifs des mesures réalisées sur de nombreux nanofils. (b) Variation relative de réflectivité pour quatre nanofils après la dissolution de l'argent dans les alliages AuAg. Le pourcentage molaire avant dissolution est indiqué au-dessus de chaque courbe. Le facteur de qualité de ces oscillations est représenté en fonction de la fraction molaire en or  $p_{\text{Au}}$  des nanofils en insert. Le point correspondant à  $p_{\text{Au}} = 1$  est obtenu grâce au signal d'un nanofil d'or pur non poreux de la Figure 2.12a. (c) Spectre de puissance de la FFT réalisée sur chacune des courbes de la Figure 2.12a. (d) Spectre de puissance de la FFT réalisée sur chacune des courbes de la Figure 2.12b. L'augmentation de la porosité diminue la fréquence du mode de vibration observé.

On représente sur la Figure 2.12b des signaux expérimentaux typiques obtenus sur des nanofils après désalliage et en Figure 2.12d leur spectre de fréquence. L'augmentation de la porosité diminue fortement la fréquence du mode acoustique principalement détecté en spectroscopie pompe-sonde : cette fréquence passe de 13,5 GHz pour  $p_{\text{Au}} = 0,6$  à 2 GHz pour  $p_{\text{Au}} = 0,2$  ce qui semble indiquer une moindre rigidité. De plus, le facteur de qualité des oscillations diminue très fortement lorsque la porosité augmente. Cette diminution est essentiellement intrinsèque puisque les nanofils sont tous suspendus au-dessus de tranchées (sauf pour les nanofils dont la fraction molaire est  $p_{\text{Au}} = 0,2$ ) qui sont trop fragiles pour supporter leur propre poids). Par ailleurs la décroissance thermique semble également plus lente pour les nanofils les plus poreux ( $p_{\text{Au}} = 0,2$  et  $p_{\text{Au}} = 0,3$ ) : à des délais de plusieurs nanosecondes, la réflectivité moyenne n'a pas encore rejoint la ligne de base initiale. Cette observation est en accord avec les travaux consacrés à la faible conductivité thermique des nanofils poreux[96]. Qu'il s'agisse de la conductivité thermique ou du facteur qualité des oscillations acoustiques cohérentes, on peut attribuer ces propriétés dégradées aux très nombreuses surfaces rencontrées dans des objets poreux, ce qui augmente les phénomènes de diffusion[96].

Nous avons présenté des signaux expérimentaux typiques sur la Figure 2.12 pour chacun des échantillons que nous avons à disposition. Cependant, malgré une distribution de taille très étroite avant désalliage, une géométrie auto-suspendue et des expériences sur objet unique, les fréquences du mode acoustique excité et détecté sur les alliages et les nanofils poreux sont assez fortement dispersées. Notons par ailleurs qu'on profite peu de la géométrie auto-suspendue pour ces objets poreux puisque le facteur d'atténuation intrinsèque semble dominer. On présente dans la suite les résultats obtenus sur plusieurs dizaines de nanofils étudiés individuellement.

### II.5.3 Alliages : moyennage des propriétés élastiques

En ce qui concerne les nanofils constitués d'un alliage d'or et d'argent avant désalliage, nous avons représenté la fréquence mesurée sur différents nanofils en fonction de la fraction volumique d'or estimée à partir de la fraction molaire (déterminée par rayons X en microscopie électronique en transmission) sur la Figure 2.13. La fraction volumique  $p_{\text{v,Au}}$  s'exprime en fonction de la fraction molaire  $p_{\text{Au}}$  et des masses molaires ( $M_{\text{Au}}$  et  $M_{\text{Ag}}$ ), et masses volumiques respectives ( $\rho_{\text{Au}}$  et  $\rho_{\text{Ag}}$ ) de l'or et de l'argent :

$$p_{\text{v,Au}} = \frac{1}{1 + \frac{M_{\text{Ag}}}{M_{\text{Au}}} \frac{\rho_{\text{Au}}}{\rho_{\text{Ag}}} \left( \frac{1}{p_{\text{Au}}} - 1 \right)} \quad (2.5)$$

Comme  $M_{\text{Au}} = 197 \text{ g mol}^{-1}$ ,  $M_{\text{Ag}} = 108 \text{ g mol}^{-1}$ ,  $\rho_{\text{Au}} = 19\,300 \text{ kg m}^{-3}$  et  $\rho_{\text{Ag}} = 10\,500 \text{ kg m}^{-3}$ , on a  $p_{\text{v,Au}} \simeq p_{\text{Au}}$ . Malgré les fortes fluctuations d'un fil à un autre, on observe une croissance monotone de

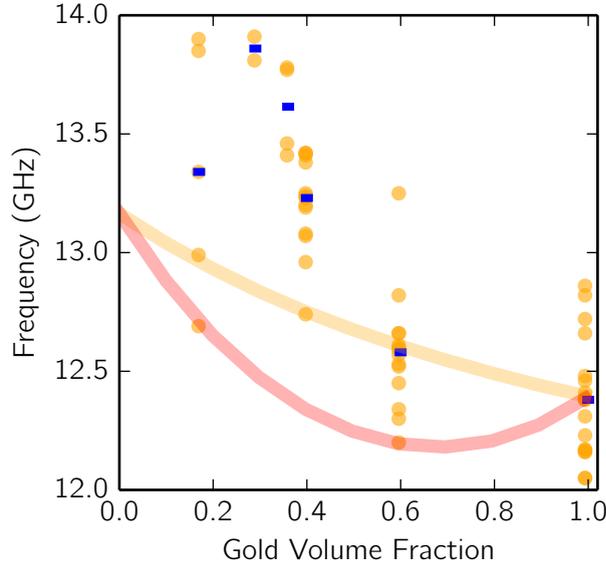


FIGURE 2.13: Représentation de la fréquence du mode acoustique confiné observé en spectroscopie pompe-sonde en fonction de la fraction volumique en or. Malgré les fortes fluctuations d'un fil à un autre, on observe une augmentation de la fréquence du mode de respiration détecté dans ces nano-objets lorsqu'on diminue la fraction volumique d'or au profit de l'argent. Cette tendance est correctement reproduite par le modèle de Voigt des moyennages des propriétés élastiques (ligne orange) mais est plus éloignée du modèle de Reuss (ligne rouge). Les traits bleus correspondent aux médianes des mesures de chacun des échantillons.

la fréquence du mode acoustique détecté dans ces nano-objets lorsqu'on diminue la fraction volumique d'or au profit de l'argent. On attribue ce mode acoustique à un mode de respiration radiale similaire à celui observé dans les nanofils de cuivre de la partie II.3. En utilisant les paramètres élastiques de l'or et de l'argent (Tableau B.1) et l'équation 1.75, on peut calculer les fréquences des modes propres de respiration pour  $p_{\text{Au}} = 0$  et  $p_{\text{Au}} = 1$ . Ainsi  $f_{L(0,2),\text{Au}} = 12,4 \text{ GHz}$  et  $f_{L(0,2),\text{Ag}} = 13,2 \text{ GHz}$ . Pour évaluer les fréquences du mode de respiration pour les fractions molaires intermédiaires, on a recouru à un moyennage des propriétés élastiques afin d'obtenir un milieu effectif. On trouve essentiellement deux façons d'effectuer ce moyennage dans la littérature : la méthode de Voigt et celle de Réuss. On considère les coefficients de Lamé de l'or et de l'argent qu'on écrit respectivement  $\lambda_{\text{Au}}, \mu_{\text{Au}}, \lambda_{\text{Ag}}$  et  $\mu_{\text{Ag}}$ . Sachant que le coefficient de compression isostatique d'un matériau  $i$  est  $K_i = \lambda_i + \frac{2}{3}\mu_i$ , la méthode de Voigt donne les paramètres élastiques  $\lambda_{\text{Voigt}}(p_{\text{v,Au}})$  et  $K_{\text{Voigt}}(p_{\text{v,Au}})$  d'un alliage dont la fraction volumique est  $p_{\text{v,Au}}$  par :

$$\lambda_{\text{Voigt}}(p_{\text{v,Au}}) = p_{\text{v,Au}} \lambda_{\text{Au}} + (1 - p_{\text{v,Au}}) \lambda_{\text{Ag}} \quad (2.6)$$

$$K_{\text{Voigt}}(p_{\text{v,Au}}) = p_{\text{v,Au}} K_{\text{Au}} + (1 - p_{\text{v,Au}}) K_{\text{Ag}} \quad (2.7)$$

La méthode de Réuss donne également les paramètres élastiques  $\lambda_{\text{Réuss}}(p_{\text{v,Au}})$  et  $K_{\text{Réuss}}(p_{\text{v,Au}})$  d'un alliage dont la fraction volumique est  $p_{\text{v,Au}}$  par :

$$\lambda_{\text{Réuss}}(p_{\text{v,Au}}) = \frac{1}{\frac{p_{\text{v,Au}}}{\lambda_{\text{Au}}} + \frac{1 - p_{\text{v,Au}}}{\lambda_{\text{Ag}}}} \quad (2.8)$$

$$K_{\text{Réuss}}(p_{\text{v,Au}}) = \frac{1}{\frac{p_{\text{v,Au}}}{K_{\text{Au}}} + \frac{1 - p_{\text{v,Au}}}{K_{\text{Ag}}}} \quad (2.9)$$

Dans les deux cas, la masse volumique de l'alliage,  $\rho(p_{\text{v,Au}})$ , est

$$\rho(p_{\text{v,Au}}) = p_{\text{v,Au}}\rho_{\text{Au}} + (1 - p_{\text{v,Au}})\rho_{\text{Ag}} \quad (2.10)$$

On obtient alors les fréquences du mode de respiration fondamental  $f_{L(0,2)}(p_{\text{v,Au}})$  pour les deux types de moyennage. On reporte ces fréquences sur la Figure 2.13 (en rouge pour le modèle de Réuss et en orange pour le modèle de Voigt). Malgré une forte dispersion des mesures, les fréquences mesurées sont assez bien reproduites par le modèle de Voigt de moyennage des propriétés élastiques. Cette dispersion des mesures est à relativiser puisque la dispersion est de l'ordre du gigahertz pour chaque échantillon, soit une variation relative de  $\pm 5\%$  par rapport aux médianes. Ces résultats de mesure d'élasticité sur des objets nanométriques composés alliages métalliques sont similaires aux résultats présentés sur des ensembles de nanoparticules sphériques d'alliages AuAg[212].

## II.5.4 Loi d'échelle pour les propriétés élastiques

Lorsque les nanofils sont plongés dans une solution d'acide nitrique, on réalise la dissolution de l'argent de l'alliage AuAg. On a d'abord observé que la fréquence du mode acoustique excité et détecté diminue fortement lorsque la porosité augmente (Figure 2.12). On se demande maintenant quelle loi suit la fréquence de ce mode acoustique en fonction de la porosité des nanofils (ou de façon équivalente en fonction de la fraction volumique d'or). Pour les divers échantillons du Tableau 2.10, on représente la fréquence du mode acoustique en fonction de la fraction molaire d'or avant désalliage sur la Figure 2.14a en vert. On conserve également les points expérimentaux de la Figure 2.13 en orange. Pour certains échantillons ( $p_{\text{Au}} = 0,17$  ou  $p_{\text{Au}} = 0,37$ ), nous n'avons réussi à obtenir que très peu de points : certains échantillons poreux se sont avérés très fragiles ou très peu réfléchissants avec une impossibilité d'observer une oscillation cohérente sur les expériences de réflectivité relative résolue en temps. On observe que les fréquences du mode acoustique de tous les nanofils poreux sont

beaucoup plus dispersées que pour les nanofils alliages correspondants. La première raison est la baisse du facteur de qualité des oscillations qui rend l'estimation de la fréquence plus imprécise. Par ailleurs, les nanofils poreux subissent une contraction de 20 à 30% qui varie d'un nanofil à l'autre et malgré nos efforts, nous n'avons pas pu mesurer précisément les diamètres des nanofils après désalliage. En effet, la façon dont ces échantillons étaient montés entraînait une forte accumulation de charge au microscope électronique à balayage, ce qui limitait la résolution de l'observation même quand on parvenait à retrouver le nanofil poreux étudié en spectroscopie pompe-sonde auparavant.

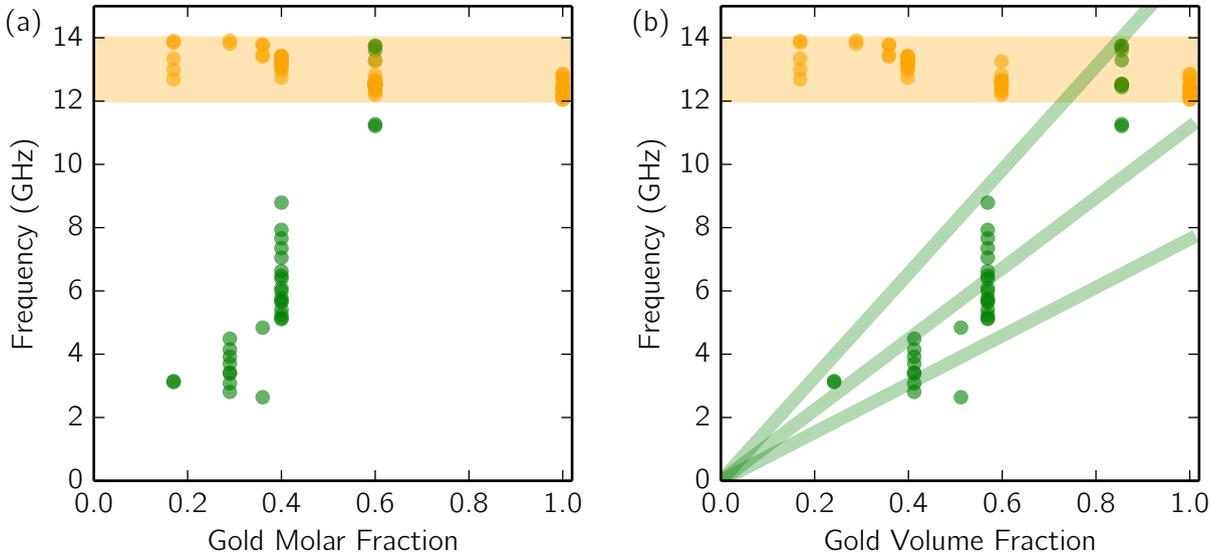


FIGURE 2.14: (a) Représentation de la fréquence du mode acoustique confiné observé en spectroscopie pompe-sonde en fonction de la fraction molaire en or pour les échantillons répertoriés dans le Tableau 2.10. Les nanofils poreux sont représentés en vert, les nanofils non poreux après dissolution sont représentés en rouge. Les nanofils avant dissolution sont représentés en orange. La zone orange donne l'intervalle de fluctuation des fréquences pour les nanofils alliages. (b) Même représentation en fonction de la fraction volumique en or en considérant que les nanofils subissent une contraction de l'ordre de 30%. Les lignes vertes correspondent respectivement à des lois de puissance en  $p_{v,Au}^{0.8}$ ,  $p_{v,Au}^{0.95}$  et  $p_{v,Au}^{1.1}$ .

Cependant, il semble que les mesures que nous avons effectuées suivent globalement une loi d'échelle linéaire. Par ailleurs, les fractions molaires avant dissolution que nous avons utilisées pour la Figure 2.14a ne rendent pas compte de la fraction molaire d'or réelle après dissolution et de la contraction des nanofils. On représente donc ces mêmes fréquences en fonction de la fraction volumique en or après contraction de l'ordre de 30% sur la Figure 2.14b. Les points expérimentaux se retrouvent essentiellement dans la zone de la loi d'échelle  $f_{L(0,2),np} \propto p_{v,Au}^{1 \pm 0.2}$ . On cherche donc à trouver un lien entre cette loi d'échelle pour la fréquence du mode de respiration fondamentale et une loi d'échelle pour un paramètre élastique de l'or nanoporeux comme  $C_{11,np}$  par exemple. On suppose d'abord qu'il s'agit d'un mode de respiration « effectif » d'un milieu homogène et isotrope dont la densité est  $\rho_{np} = p_{v,Au} \rho_{Au}$  et les propriétés élastiques sont  $C_{11,np}$  et  $C_{12,np}$ . Le milieu nanoporeux n'est évidemment pas homogène et isotrope mais on cherche avant tout une loi d'échelle et en première

approximation, l'approche du milieu effectif est la plus simple. On reporte sur la Figure 2.14b les lois d'échelle en  $p_{v,Au}^{0.8}$ ,  $p_{v,Au}^{0.95}$  et  $p_{v,Au}^{1.1}$  en traits pleins verts. La quasi-totalité des points expérimentaux est en accord avec une loi d'échelle en  $p_{v,Au}^{0.95 \pm 0.15}$  avec une pente  $f_{L(0,2),Au} = 12,4$  GHz. On peut donc en déduire la loi d'échelle pour la fréquence du mode de respiration effectif d'un nanofil d'or nanoporeux

$$f_{L(0,2),np} = f_{L(0,2),Au} p_{v,Au}^{0.95 \pm 0.15} \quad (2.11)$$

Or, d'après l'équation 1.77, on a une valeur approchée à 10% de la fréquence du mode de respiration fondamental d'un nanofil d'or infiniment long :

$$f_{L(0,2),Au} = \frac{3c_{L,Au}}{8a} = \frac{3}{8a} \sqrt{\frac{C_{11,Au}}{\rho_{Au}}} \quad (2.12)$$

Ainsi qu'une valeur approchée à 10% de la fréquence du mode de quasi-respiration fondamental d'un nanofil nanoporeux infiniment long :

$$f_{L(0,2),np} = \frac{3c_{L,np}}{8a} = \frac{3}{8a} \sqrt{\frac{C_{11,np}}{\rho_{np}}} \quad (2.13)$$

On a donc

$$\frac{3}{8a} \sqrt{\frac{C_{11,np}}{\rho_{np}}} = \frac{3}{8a} \sqrt{\frac{C_{11,Au}}{\rho_{Au}}} \left( \frac{\rho_{np}}{\rho_{Au}} \right)^{0.95 \pm 0.15} \quad (2.14)$$

Finalement, on en déduit que la constante élastique  $C_{11,np}$  est assez bien décrite par la loi d'échelle

$$C_{11,np} \propto \left( \frac{\rho_{np}}{\rho_{Au}} \right)^{1.9 \pm 0.3} C_{Au} \quad (2.15)$$

Cette loi d'échelle est très communément rencontrée pour des matériaux poreux[79] dits à « cellules ouvertes ». On trouve plus précisément une démonstration de cette loi pour le module de Young  $E$  avec un coefficient de Poisson  $\nu$  de l'ordre de  $1/3$  (p. 184 du Gibson et Ahsby[79]). Or, pour  $\nu \simeq 1/3$ ,

on a  $C_{11} \simeq 1,5 E$  (Tableau B.1). Dans le cadre de ce modèle de mousse à « cellules ouvertes », on s'attend donc à la même loi d'échelle pour  $C_{11}$  et  $E$  à un coefficient proche de l'unité près.

Finalement, on a pu étudier des nanofils individuels de 185 nm de diamètre constitués d'alliages AuAg avant désalliage et poreux après désalliage. L'étude des alliages a permis de mettre en évidence une évolution des fréquences du mode de respiration fondamental avec la fraction molaire en or en accord avec une moyenne pondérée des propriétés élastiques. Une première étude des nanofils poreux a permis de montrer que l'évolution de la fréquence du mode de respiration « effectif » est en accord avec une variation quadratique de la constante élastique  $C_{11}$ . Cette variation quadratique confirme que les matériaux nanoporeux d'or suivent cette loi de « mousses à cellules ouvertes » dans leur domaine élastique[79, 16, 130].

## II.6 Nanofils cœur/coquille

Les nano-objets cœur/coquille semi-conducteurs sont relativement peu étudiés en acoustique ultrarapide[120] comparés aux nano-objets bi-composants métal-isolant[159], métal-métal[33, 183, 94, 232, 212], ou mono-composant[111, 139, 15, 29] alors qu'ils apparaissent comme de bons candidats pour une large variété d'applications. En ingénierie phononique et photonique par exemple, des nanofils semi-conducteurs ont permis de concevoir des sources de photons uniques contrôlées par des ondes de surface[92] ou de réaliser des dispositifs thermoélectriques[93, 97, 234]. Par ailleurs, à l'exception de cette jolie étude de l'équipe de Michel Orrit[240] qui étudie le dépôt in-situ d'une couche nanométrique d'argent sur un nanocylindre d'or, les systèmes cœur/coquille ou d'alliages métalliques ont pour l'instant été étudiés en acoustique ultrarapide sur des ensembles de particules uniquement[33, 212], ce qui entraîne un élargissement inhomogène des propriétés physiques et limite la finesse de l'analyse des résultats. De plus, ces études sont restreintes à des métaux présentant de faibles contrastes acoustiques, ce qui rend l'interprétation encore plus délicate. Cependant, différents comportements intéressants ont déjà pu être observés : la vibration de la coquille seulement lorsque l'adhésion à l'interface est mauvaise[86, 152] ou au contraire une vibration principalement localisée dans le cœur[159], l'observation de caractéristiques acoustiques qui correspondent aux propriétés élastiques moyennes pondérées pour les alliages[212], ou l'accord des mesures expérimentales avec une modélisation matricielle du système cœur/coquille[212]. Dans ce contexte, l'étude acoustique de nano-objets cœur/coquille semi-conducteurs individuels présente une réelle nouveauté. Dans cette partie, nous présentons le modèle semi-analytique utilisé pour décrire les vibrations des nanofils cœur/coquille puis nous étudions la réponse acoustique de ces nanofils par des mesures d'acoustique picoseconde. Grâce à ces mesures et ce modèle, nous tentons d'estimer l'épaisseur de la coquille des nanofils.

### II.6.1 Modèle semi-analytique d'un cylindre infini cœur/coquille

Dans un premier temps, nous avons simulé numériquement la réponse acoustique de nanofils infiniment longs Ge@Si<sup>1</sup>. Nous avons utilisé les deux approches principales de la littérature : des simulations par éléments finis et une résolution numérique « matricielle »[145] des équations de l'élasticité d'un nanofil cœur/coquille. Dans cette dernière approche, l'interface cœur/coquille est considérée sans contrainte. La prise en compte des contraintes liées au désaccord de paramètre de maille à l'interface est complexe[117] et nous négligeons cet aspect. Dans la suite, nous appelons « premier mode de respiration » un mode où les déformations et les déplacements sont purement radiaux, axisymétriques et ne présentent pas de nœuds radiaux. Le premier mode de respiration, de fréquence  $f_{L(0,j)}$ , d'un nanofil infini de rayon  $a$  constitué d'un unique matériau isotrope (vitesse

1. On note Ge@Si, un système composé d'un cœur de germanium et d'une coquille de silicium[127].

longitudinale  $c_L$  et vitesse transverse  $c_T$ ) est donné par la solution  $j = 2$  de l'équation 1.72 que nous reproduisons ici sous une autre forme (équation 2.16), avec  $x_j = 2\pi f_{L(0,j)} a/c_L$ [51]

$$\left[ 2 \left( \frac{c_T}{c_L} \right)^2 J_1(x_j) - x_j J_0(x_j) \right] J_1 \left( x_j \left( \frac{c_L}{c_T} \right) \right) = 0 \quad (2.16)$$

Le premier mode de respiration, de fréquence  $f_{L(0,2)}^{(co/sh)}$ , d'un nanofil infini de rayon  $a^{(sh)}$ , constitué d'un matériau isotrope de cœur (vitesse longitudinale  $c_L^{(co)}$  et vitesse transverse  $c_T^{(co)}$ , constantes élastiques  $C_{11}^{(co)}$  et  $C_{12}^{(co)}$ ) de rayon  $a^{(co)}$  et d'un matériau isotrope de coquille (vitesse longitudinale  $c_L^{(sh)}$  et vitesse transverse  $c_T^{(sh)}$ , de constantes élastiques  $C_{11}^{(sh)}$  et  $C_{12}^{(sh)}$ ) d'épaisseur  $e = a^{(sh)} - a^{(co)}$ , est donné par la solution  $j = 2$  de l'équation 2.17[145]. On pose  $x_j^{(sh)} = 2\pi f_{L(0,j)}^{(co/sh)} a^{(sh)}/c_L^{(sh)}$ ,  $\gamma = c_L^{(sh)}/c_L^{(co)}$  et  $f = a^{(co)}/a^{(sh)}$ .

$$\begin{vmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} \\ 0 & d_{32} & d_{33} \end{vmatrix} = 0 \quad (2.17)$$

où

$$\begin{aligned} d_{11} &= J_1(x_j^{(sh)} \gamma f) \\ d_{12} &= -J_1(x_j^{(sh)} \gamma) \\ d_{13} &= -Y_1(x_j^{(sh)} \gamma) \\ d_{21} &= \frac{C_{11}^{(co)}}{a^{(co)}} \left[ x_j^{(sh)} \gamma f J_0(x_j^{(sh)} \gamma f) - 2 \left( \frac{c_T^{(co)}}{c_L^{(co)}} \right)^2 J_1(x_j^{(sh)} \gamma f) \right] \\ d_{22} &= \frac{C_{11}^{(sh)}}{a^{(co)}} \left[ -x_j^{(sh)} \gamma J_0(x_j^{(sh)} \gamma) + 2 \left( \frac{c_T^{(sh)}}{c_L^{(sh)}} \right)^2 J_1(x_j^{(sh)} \gamma) \right] \\ d_{23} &= \frac{C_{11}^{(sh)}}{a^{(co)}} \left[ -x_j^{(sh)} \gamma Y_0(x_j^{(sh)} \gamma) + 2 \left( \frac{c_T^{(sh)}}{c_L^{(sh)}} \right)^2 Y_1(x_j^{(sh)} \gamma) \right] \\ d_{32} &= \frac{C_{11}^{(sh)}}{a^{(sh)}} \left[ -x_j^{(sh)} J_0(x_j^{(sh)}) + 2 \left( \frac{c_T^{(sh)}}{c_L^{(sh)}} \right)^2 J_1(x_j^{(sh)}) \right] \\ d_{33} &= \frac{C_{11}^{(sh)}}{a^{(sh)}} \left[ -x_j^{(sh)} Y_0(x_j^{(sh)}) + 2 \left( \frac{c_T^{(sh)}}{c_L^{(sh)}} \right)^2 Y_1(x_j^{(sh)}) \right] \end{aligned}$$

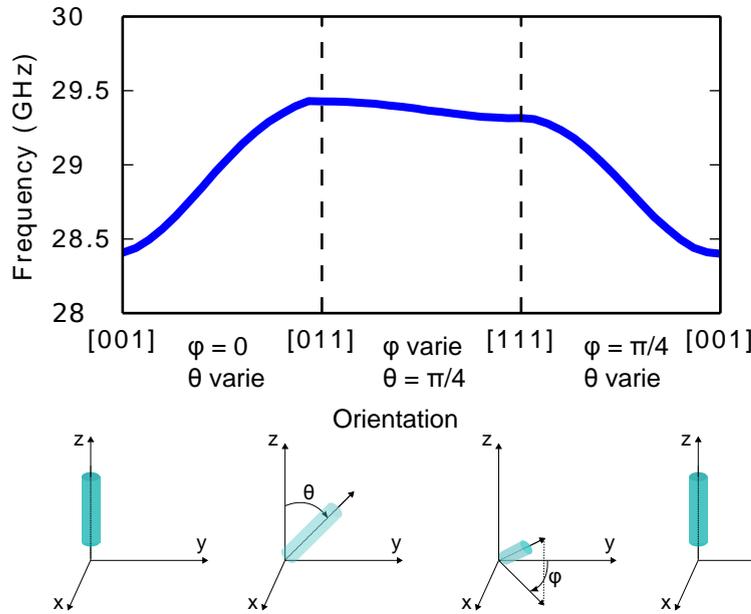


FIGURE 2.15: Fréquence du premier mode de respiration d'un nanofil de silicium, libre, infiniment long, de 200 nm de diamètre. Les paramètres élastiques utilisés sont  $C_{11}(\text{Si}) = 166$  GPa,  $C_{12}(\text{Si}) = 64,0$  GPa et  $C_{44}(\text{Si}) = 80$  GPa. L'orientation du nanofil par rapport aux axes cristallins est représentée par des schémas sous la figure.

Cette équation 2.17 nécessite les mêmes hypothèses que pour obtenir l'équation 2.16. On considère un cylindre infiniment long, constitué de deux matériaux élastiques homogènes et isotropes. Par ailleurs, on ne cherche que les modes dont les déplacements sont purement radiaux et axisymétriques. Les conditions aux limites sont un déplacement fini au centre du cylindre, une contrainte nulle à la limite  $a^{(sh)}$ , ainsi qu'un déplacement continu en  $a^{(co)}$ . Lorsque  $\gamma = f = 1$ , on vérifie qu'on se ramène à l'équation 2.16. Nous avons vérifié que la première méthode (éléments finis) et la deuxième méthode (équation 2.17) sont équivalentes. Dans la suite, toutes les simulations sont basées sur la résolution de l'équation 2.17. Nous avons donc étudié la fréquence du premier mode de respiration en fonction du diamètre total du fil pour différentes épaisseurs de coquille (Figure 2.19) avec les paramètres élastiques résumés dans le Tableau 2.1. Le silicium et le germanium sont évidemment des matériaux anisotropes dont les matrices élastiques ont pour coefficients  $C_{11}(\text{Ge}) = 126$  GPa,  $C_{12}(\text{Ge}) = 44$  GPa,  $C_{44}(\text{Ge}) = 68$  GPa,  $C_{11}(\text{Si}) = 166$  GPa,  $C_{12}(\text{Si}) = 64,0$  GPa et  $C_{44}(\text{Si}) = 80$  GPa. Cependant, l'influence de l'orientation cristalline sur les modes de respiration des nanofils de grands rapports d'aspects est faible[51]. La figure 2.15 représente la variation de la fréquence du premier mode de respiration d'un nanofil cylindrique de 200 nm de diamètre et infiniment long de silicium monocristallin en fonction de l'axe de croissance du nanofil calculée par éléments finis. Les variations de la fréquence sont de l'ordre de 8%. On décide donc par simplicité d'utiliser des paramètres isotropes du silicium et du germanium polycristallins qui exhibent eux-aussi une variabilité du même ordre en fonction des références [138, 44, 206] ou des techniques de moyennage[50, 24]. Tous les fils proviennent de la même croissance, donc quelle que soit l'axe de croissance, il est fixé pour tous les

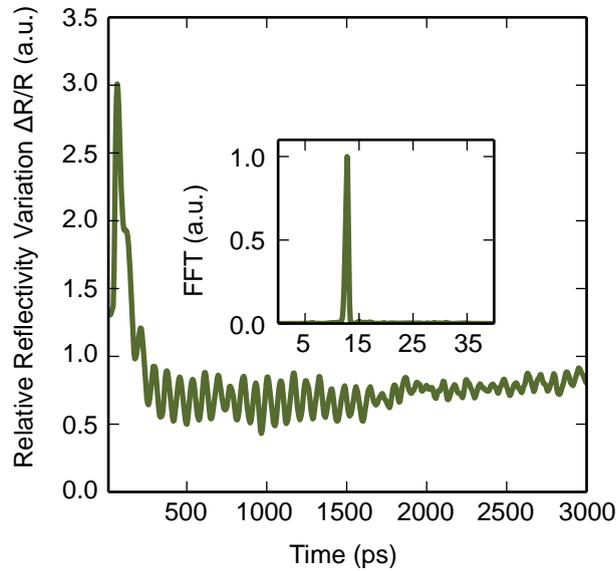


FIGURE 2.16: Signal de réflectivité d'un nanofil Ge@Si sur les tranchées de silicium. Après le signal électronique de coïncidence des 100 premières picosecondes, le signal temporel exhibe une période d'oscillation d'environ 70 ps. L'insert est la transformée de Fourier rapide (FFT) en puissance du signal temporel. On identifie le premier mode de respiration à 14 GHz.

TABLE 2.1: Paramètres élastiques : module d'Young  $E$ , coefficient de Poisson  $\nu$  et masse volumique  $\rho$  utilisés dans nos simulations. Ce sont les paramètres pour des systèmes polycristallins isotropes.

matériau	$E$ (GPa)	$\nu$	$\rho$ ( $\text{kg m}^{-3}$ )
Si	169	0,22	2330
Ge	132	0,19	5320

fil et on suppose qu'on peut prendre les mêmes propriétés élastiques pour tous les fils d'un même échantillon. Ces variabilités des propriétés élastiques entre nano-objets rajouteront du bruit dans nos expériences.

## II.6.2 Fabrication des nanofils cœur/coquille

Les nanofils que nous avons étudiés ont été fabriqués dans le cadre de la thèse de Sara Fernandez à l'ESRF de Grenoble. Ces nanofils ont été fabriqués par croissance épitaxiale du germanium sur un substrat de silicium (Figure 2.17a). La coquille de silicium est ensuite déposée par dépôt chimique en phase vapeur (CVD)[81]. Nous disposons de deux échantillons dont la coquille est estimée à 20 nm au moment de la fabrication. Ces deux échantillons sont distincts par la taille moyenne des nanofils. Le premier échantillon est constitué de nanofils dont le diamètre est de l'ordre de 300 nm quand le second est constitué de nanofils dont le diamètre est de l'ordre de 200 nm.

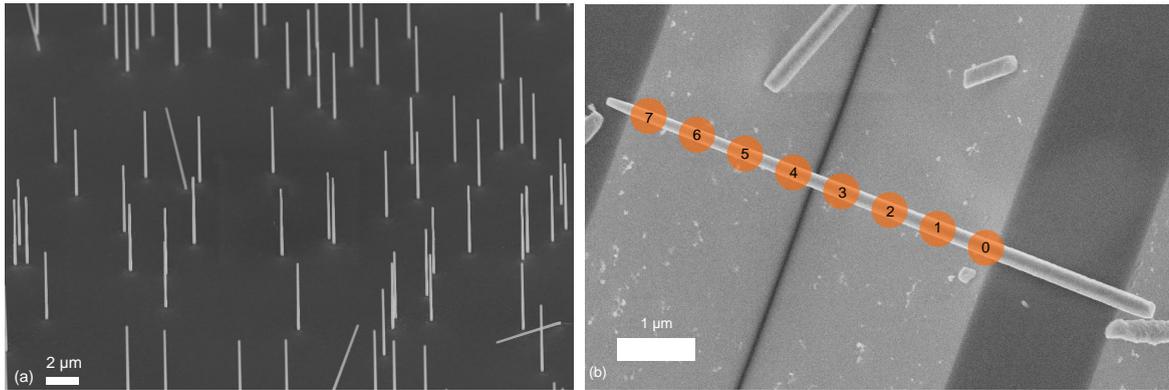


FIGURE 2.17: (a) Image de microscopie à balayage des nanofils de germanium après la croissance par épitaxie sur un substrat de silicium. (b) Image de microscopie à balayage d'un nanofil cœur/coquille légèrement conique déposé sur des tranchées de silicium. Les points oranges représentent les différentes positions sur lesquelles les mesures de la Figure 2.18b ont été réalisées.

### II.6.3 Mesures d'acoustique picoseconde sur des nanofils Ge@Si

Des expériences d'acoustique ultrarapide sont réalisées dans le schéma pompe-sonde classique en réflectivité. Nos nanofils cœur/coquille présentent une longueur variable de l'ordre de 5 μm à 10 μm. L'épaisseur de la coquille de silicium déposée sur le cœur de germanium est de 20 nm d'après les conditions du dépôt en phase vapeur (CVD) du silicium. Sur un signal expérimental typique, nous observons une fréquence caractéristique de 14 GHz sur environ 3 ns (Figure 2.16). En répétant l'analyse sur plusieurs fils, nous avons observé un étalement en fréquence de fil en fil et d'échantillon en échantillon relativement important, de 10 GHz à 15 GHz pour le premier échantillon et de 18 GHz à 31 GHz pour le second, ce qui est un signe d'un échantillon a priori polydisperse en tailles. Nous avons alors observé au microscope électronique à balayage les nanofils que nous avons étudiés par spectroscopie vibrationnelle. Il est possible d'étudier les mêmes fils au MEB et en acoustique picoseconde car nos nanofils sont suspendus sur des tranchées organisées en matrices. Il faut alors identifier la matrice, la tranchée et enregistrer une image au microscope optique sur lequel nous menons les expériences d'acoustique picoseconde pour pouvoir identifier le même fil au MEB ensuite. Nous avons procédé à l'extraction des contours des nanofils au MEB (Figure 2.17b) et à la mesure de leur largeur pour différents points le long de leur grand axe (Figure 2.18a). Comme il s'agit d'une vue de dessus, on considère que la mesure de la largeur est une mesure du diamètre. Lors de ces mesures, nous observons une variation relative du diamètre du nanofil de l'ordre de 25%. Fort de cette caractérisation nous avons réalisé la cartographie acoustique d'un nanofil. Pour cela, nous repérons un nanofil en réalisant une simple cartographie en réflectivité puis nous réalisons un pointé le long du signal de réflectivité correspondant au nanofil pour réaliser des expériences d'acoustique ultrarapide à différents endroits sur le fil (par exemple sur les 8 points signalés sur la Figure 2.18a). Nous avons reporté la FFT du signal de réflectivité obtenu sur les 8 points du nanofil de la Figure 2.18a sur la figure 2.18b.

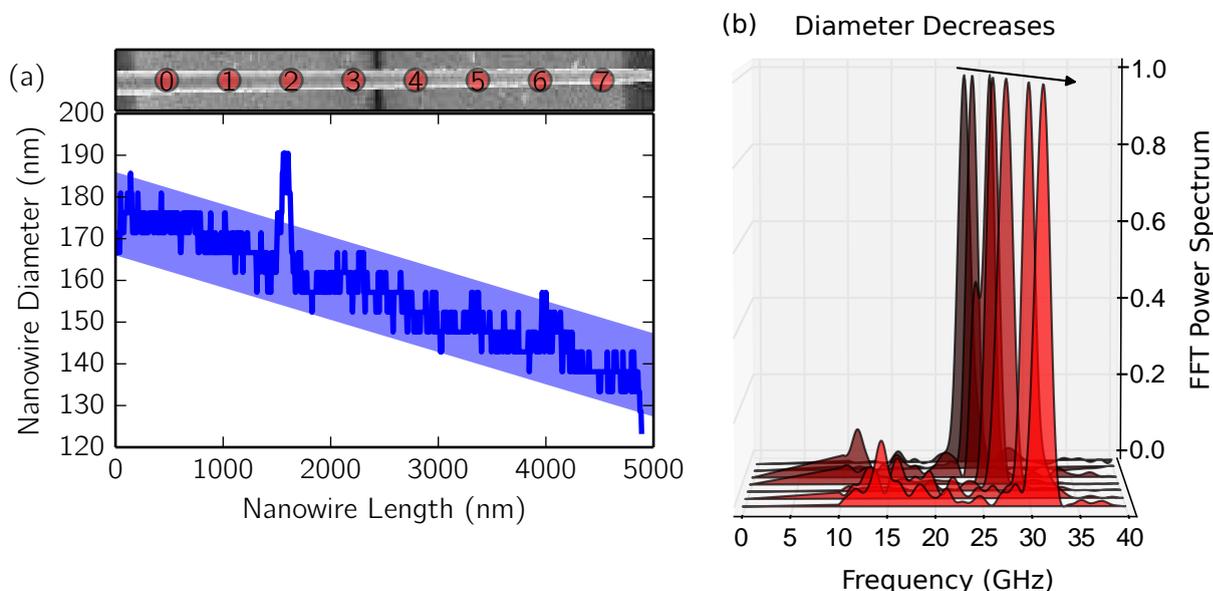


FIGURE 2.18: (a) Variation du diamètre du fil le long du fil obtenu à partir de l'image MEB (en haut). En première approche, nous faisons une approximation linéaire de la variation du diamètre avec la position sur le fil (courbe bleue). (b) FFT du signal en réflectivité obtenu sur le fil de la Figure 2.18a. La fréquence du premier mode de respiration diminue lorsque le diamètre du fil augmente.

À mesure que l'on se déplace sur le fil, du point 0 au point 7, le diamètre évolue progressivement de  $175 \pm 5$  nm à  $140 \pm 5$  nm. De la même façon, la fréquence du premier mode de respiration est modifiée de  $23,0 \pm 0,5$  GHz à  $31,0 \pm 0,5$  GHz. Ce comportement se produit sur l'ensemble des nanofils sur lesquels nous avons réalisé cette « cartographie acoustique ». Nous avons ensuite attribué à chaque point de mesure le diamètre correspondant à l'observation au MEB. Une estimation du facteur de qualité des oscillations est également réalisée à l'aide d'un ajustement par une fonction de la forme  $\sin(2\pi f_{L(0,2)}t) e^{-t/\tau}$ , réalisé sur chaque courbe.  $f_{L(0,2)}$  est la fréquence du mode de respiration et  $Q = \pi f_{L(0,2)}\tau$  est le facteur de qualité des oscillations. Enfin, pour s'affranchir des effets de taille, on renormalise les fréquences par le diamètre mesuré pour obtenir des périodes normalisées  $T_{\text{norm}} = 1/(2f_{L(0,2)}a^{(sh)})$ . L'ensemble de ces résultats sont représentés sur la Figure 2.19. Pour l'ensemble des nanofils, l'augmentation de la fréquence du mode de respiration mesurée le long du fil s'accompagne d'une diminution du diamètre. Cette variation semble hyperbolique ( $f_{L(0,2)}a^{(sh)} = C^{\text{te}}$ ) puisque les périodes normalisées sont globalement constantes le long de chaque fil. Notons par ailleurs que les barres d'erreurs sont parfois très grandes à cause de facteurs de qualité très faibles. La dispersion de ces facteurs de qualité est par ailleurs très importante même au sein d'un même nanofil mais la grande majorité des facteurs de qualité sont estimés entre  $Q = 10$  et  $Q = 40$  ce qui correspond à des facteurs de qualité usuellement rencontrés. La géométrie auto-suspendue permet d'observer plusieurs

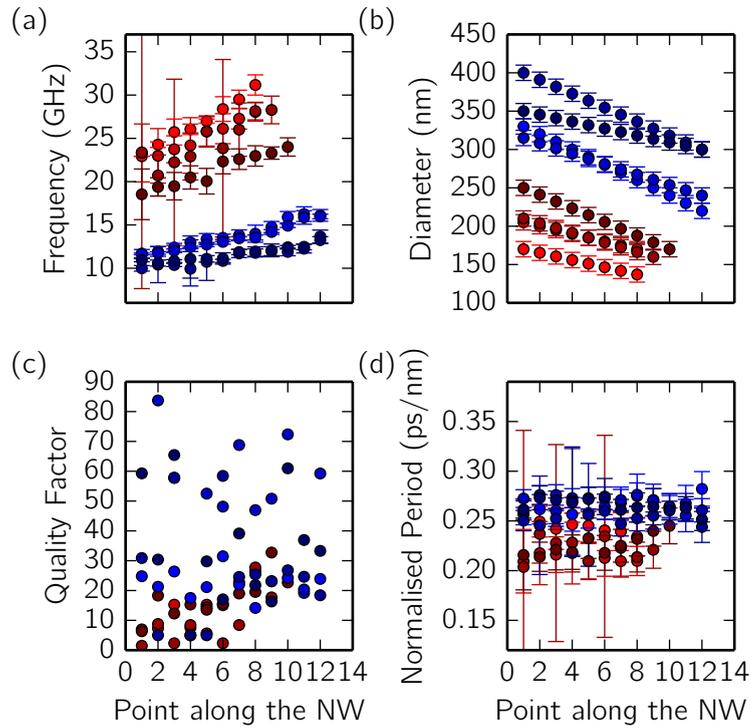


FIGURE 2.19: (a) Fréquence du mode de respiration en fonction du point le long d'un nanofil pour 8 nanofils de deux échantillons différents. Les barres d'erreur  $\Delta f$  sont estimées d'après le facteur de qualité des oscillations :  $\Delta f = f_{L(0,2)}/Q$  (b) Diamètre estimé au MEB en fonction du point le long d'un nanofil pour 8 nanofils de deux échantillons différents. L'erreur sur la mesure liée tant au pointé sur le fil qu'à la mesure au MEB est estimée à  $\pm 5$  nm (c). Facteur de qualité  $Q = \pi f_{L(0,2)}\tau$  des oscillations du mode de respiration fondamental estimé pour chaque point le long d'un nanofil à partir du temps d'atténuation  $\tau$  et de la fréquence  $f_{L(0,2)}$  des oscillations. (d) Période normalisée en fonction du point le long d'un nanofil pour 8 nanofils de deux échantillons différents.

cas pour lesquels les facteurs de qualité dépassent 50 mais ils ne représentent pas la majorité des mesures.

## II.6.4 Estimation de l'épaisseur de la coquille de silicium

Afin d'estimer l'épaisseur de la coquille de silicium, on reporte chaque couple (diamètre, fréquence) sur la Figure 2.20a. De la même façon, on représente aussi les couples (diamètre, période normalisée) sur la Figure 2.20b. Chaque fil est représenté par une couleur différente. Deux échantillons différents sont représentés par deux teintes de couleurs différentes (l'un en rouge, l'autre en bleu). On peut ainsi comparer la variation de fréquence avec le diamètre aux résultats de la résolution des équations de l'élasticité (équation 2.17). On trace en traits pleins la fréquence du premier mode de respiration en fonction du diamètre du nanofil pour différentes épaisseurs de la coquille de silicium. De haut en bas : 0 nm, 10 nm, 20 nm, 30 nm et 40 nm. Les traits pointillés sont tracés tous les 2 nm de coquille. On

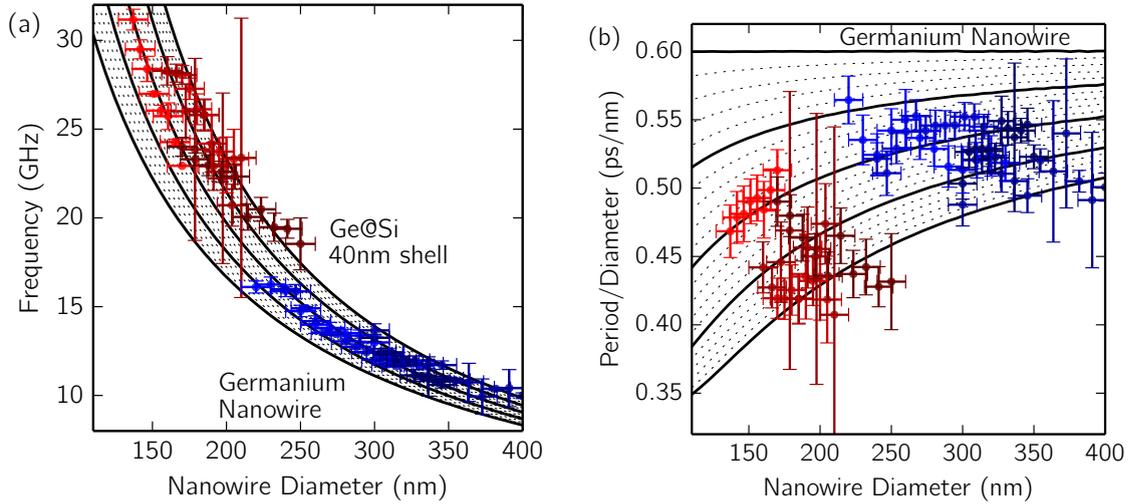


FIGURE 2.20: (a) En traits pleins, fréquence du premier mode de respiration en fonction du diamètre du nanofil pour différentes épaisseurs de la coquille de silicium. De bas en haut : 0 nm, 10 nm, 20 nm, 30 nm et 40 nm. Les traits pointillés sont tracés tous les 2 nm de coquille. Les points sont les mesures expérimentales d’acoustique picoseconde. L’incertitude sur la fréquence est liée au facteur de qualité des oscillations, l’incertitude sur le diamètre est liée au pointé sur le nanofil et à la mesure au MEB. (b) Même figure qu’en (a) mais on représente la période normalisée  $T_{\text{norm}} = 1/(2f_{L(0,2)}a^{(sh)})$ .

note que sur la Figure 2.20b, en accord avec l’équation 1.75, la période normalisée est indépendante du diamètre du fil en l’absence de coquille ce qui n’est pas le cas lorsqu’il existe une coquille de silicium.

À une exception près, en incluant les barres d’erreurs, tous les points étudiés (83) sur la dizaine de nanofils échantillonnés sont cohérents avec une coquille de silicium dont l’épaisseur est inférieure à 40 nm. Pour certains nanofils, en rouge clair par exemple (fréquences comprises entre 23 GHz et 31 GHz, diamètres compris entre 140 nm et 170 nm), la variation de fréquence observé le long du fil est en très bon accord avec les propriétés élastiques d’un fil de cœur de germanium de diamètre variable et de coquille de silicium d’épaisseur constante 20 nm. Pour d’autres fils en revanche, l’évolution de la fréquence du premier mode de respiration avec le diamètre total du fil est plus bruitée, notamment lorsque les facteurs de qualité sont faibles. Afin de poursuivre l’analyse, nous avons extrait l’épaisseur de coquille de silicium pour chaque point de chaque fil grâce à la Figure 2.20. Cette épaisseur a été reportée sur la Figure 2.21a (on a regroupé les points par fil). La Figure 2.21b représente les facteurs de qualité mesurés pour chaque point le long de chaque fil. De cette façon, il est immédiat que l’épaisseur de la coquille de silicium du fil rouge clair (fil 1 sur la Figure 2.21a) semble proche de 20 nm. Au contraire, l’épaisseur de la coquille des fils 3 et 4 semble beaucoup plus fortement dispersée entre 20 nm et 50 nm. Un regard plus attentif sur les Figures 2.21a et 2.21b semble suggérer une anti-corrélation entre l’estimation de l’épaisseur de la coquille et le facteur de qualité des oscillations : plus les facteurs de qualité sont élevés, plus l’estimation de l’épaisseur de la coquille est faible. Cette observation est claire sur la Figure 2.21c et un test de Pearson donne une corrélation de  $-0.75$

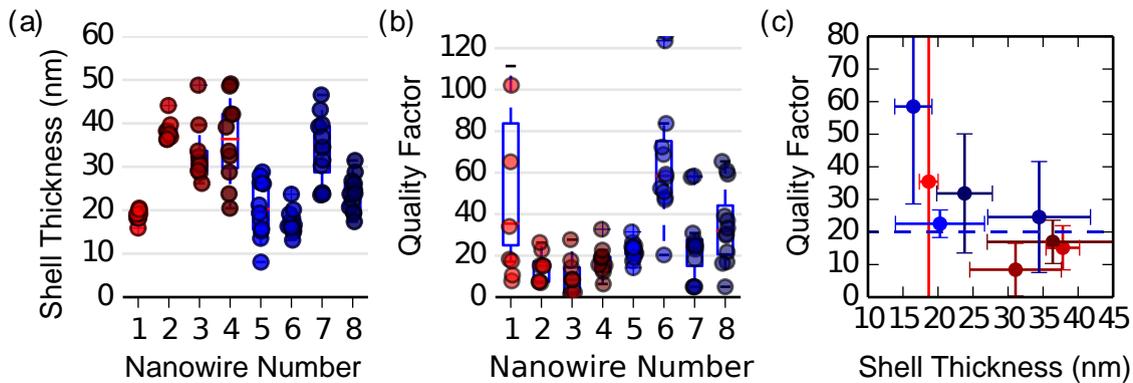


FIGURE 2.21: (a) Épaisseur de la coquille pour les différentes positions le long des 8 nanofils de la Figure 2.20. (b) Facteurs de qualité correspondants aux différentes positions le long de chaque nanofil. (c) La médiane du facteur de qualité de chaque fil est tracée en fonction de la médiane de l'épaisseur estimée du même fil. Les barres d'erreurs correspondent à l'écart standard de déviation.

entre les médianes des facteurs de qualité et les médianes des épaisseurs pour chaque fil. Lorsque le facteur de qualité des oscillations du premier mode de respiration est faible, on a tendance à estimer une grande épaisseur de coquille puisque les fréquences des oscillations sont globalement légèrement plus élevées. Il y a peut-être un biais expérimental ici. L'augmentation de fréquence observée pour les oscillations de faible facteur de qualité, et donc l'augmentation de l'estimation de l'épaisseur de coquille de silicium, pourrait s'expliquer par une rigidification du contact entre le nanofil et le substrat[41]. En effet, même auto-suspendu au-dessus d'une tranchée, le nanofil est toujours rigidement maintenu à ses deux extrémités et il peut exister une grande variabilité dans la qualité de ce contact. Un meilleur contact ayant tendance à rigidifier le système et donc à augmenter la fréquence au détriment du facteur de qualité. Ainsi, on pourrait par exemple suggérer un critère de confiance sur l'estimation de l'épaisseur de la coquille lié au facteur de qualité : plus le facteur de qualité médian est grand, plus le comportement du nanofil est proche du comportement du nanofil en vibrations libres et plus le modèle utilisé pour obtenir l'équation 2.17 est pertinent. Cependant, un tel critère possède une part d'arbitraire importante. Dans une première approche, on préfère donc conserver l'ensemble des fils pour lesquels une caractérisation acoustique le long du fil ainsi qu'une caractérisation de taille au microscope électronique à balayage ont été obtenues.

On obtient finalement la Figure 2.22a qui représente l'histogramme de la distribution des épaisseurs de coquilles estimées d'après l'équation 2.17. Cette distribution est ajustée par une loi normale d'écart type  $\sigma = 9,7$  nm centrée en  $\mu = 27,3$  nm. Si on ne retient que les nanofils pour lesquels le facteur de qualité médian des oscillations est supérieur à 20, on obtient la distribution en Figure 2.22b. Cette distribution possède évidemment une moyenne et un écart-type plus faibles à cause du critère choisi et de la Figure 2.21c. On commence à se heurter à un faible échantillonnage et il faudrait répéter l'expérience sur de nombreux autres fils. L'ensemble de ces mesures d'acoustique et de taille semblent cohérentes avec un dépôt de l'ordre de 20 nm de silicium sur des nanofils de germanium

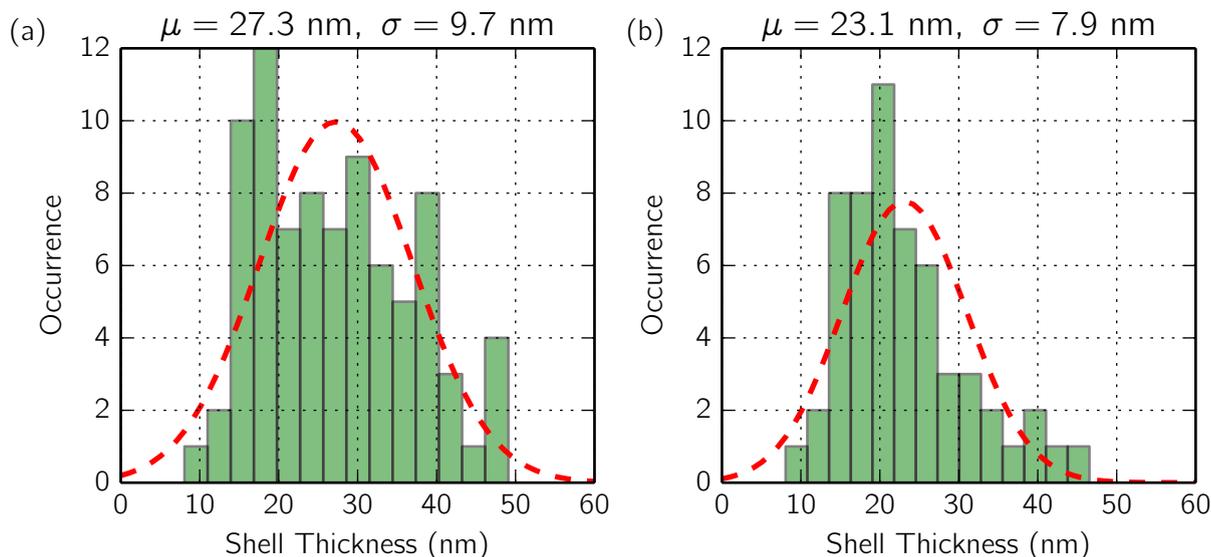


FIGURE 2.22: (a) Histogramme de distribution des épaisseurs de coquilles estimées d’après l’équation 2.17. Cette distribution est ajustée par une loi normale d’écart type  $\sigma = 9,7 \text{ nm}$  centrée en  $\mu = 27,3 \text{ nm}$ . (b) Histogramme similaire lorsqu’on ne considère que les fils dont le facteur de qualité médian est supérieur à 20. Ajusté par une loi normale, on obtient  $\sigma = 7,9 \text{ nm}$  et  $\mu = 23,1 \text{ nm}$ .

légèrement coniques (angle au sommet de l’ordre du degré). Par rapport à une étude sur un ensemble de nano-objets, cette étude permet d’observer la grande variabilité dans la qualité des oscillations d’un objet à un autre, ce qui suggère qu’un critère de qualité des oscillations pourrait être utilisé pour conserver les « meilleures » mesures afin d’améliorer la caractérisation des nano-objets.

Afin de confirmer cette approche, il a été envisagé de mener des caractérisations de l’épaisseur de la coquille (comme ce qui est fait, par exemple, dans le travail de Lauhon *et al.*[127] dont nous reproduisons une figure en Figure 2.23) sur les mêmes nanofils que nous étudions par spectroscopie pompe-sonde ultrarapide. Ceci permettrait d’obtenir un ensemble consistant de mesures et de caractérisations plus précises que les caractéristiques des dépôts en phase vapeur sur lesquels nous nous basons. La microscopie électronique en transmission (TEM) ou l’analyse d’éléments chimiques sur un MEB équipé d’EDS ont été envisagées. Cependant, la microscopie TEM n’est pas adaptée à des nanofils dont le diamètre est supérieur à quelques dizaines de nanomètres. Par ailleurs, afin d’augmenter le confinement acoustique nous utilisons des tranchées en silicium, du même matériau que le matériau de coquille ce qui rendrait une analyse en EDS impossible. De plus, l’analyse EDS au microscope électronique à balayage n’offre pas la résolution suffisante pour caractériser des coquilles de l’ordre de 20 nm.

En conclusion, nous avons caractérisé la fréquence du premier mode de respiration ainsi que la taille de nanofils cœur/coquille de Ge@Si. La connaissance simultanée de ces deux paramètres, avec la meilleure précision possible liée à l’étude de nano-objets uniques auto-suspendus, nous a permis d’obtenir une estimation de l’épaisseur de la coquille de silicium en accord avec les paramètres de

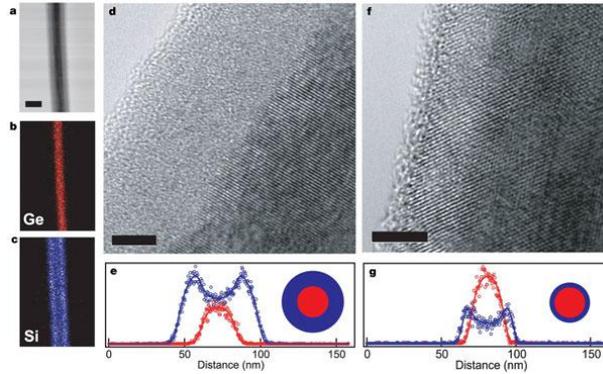


FIGURE 2.23: Figure et légende extraites de l'article de Lauhon *et al.*[127] : « Scale bar is 50 nm. b, c, Scanning TEM elemental maps of Ge (red) and Si (blue) concentrations, respectively, in the nanowire of a. d, High-resolution TEM image of a representative nanowire from the same synthesis as the wire in a and c. Scale bar is 5 nm. e, Elemental mapping cross-section showing the Ge (red circles) and Si (blue circles) concentrations. The solid lines show the theoretical cross-section for a 26-nm-diameter core, 15 nm-thick shell and  $< 1$  nm interface according to the model described in the Methods section. f, High-resolution TEM image of annealed Ge@Si core/shell nanowire exhibiting a crystalline p-Si shell. Scale bar is 5 nm. g, Elemental mapping cross-section gives a 5-nm shell thickness with a sharp interface consistent with the TEM image, suggesting that the Ge and Si do not interdiffuse substantially during the annealing process ».

dépôt CVD de la coquille. Cette estimation est réalisée grâce à une comparaison entre la fréquence du premier mode de respiration observée en acoustique picoseconde et la résolution approchée des équations de l'élasticité pour un cylindre infini. Cependant, de nombreuses incertitudes demeurent et n'ont pas pu être levées par une autre technique de caractérisation à l'échelle du nanofil unique. Par exemple, l'anticorrélation entre le facteur de qualité des oscillations et la fréquence du premier mode de respiration, a priori attribuée à une meilleure adhésion du nanofil avec le substrat sur les bords des tranchées, mériterait d'être approfondie. De plus, malgré des dizaines de mesures, nous étudions finalement un nombre assez réduit d'objets différents car le repérage des nanofils est une étape longue et fastidieuse.

# Chapitre 3

## Propagation des phonons acoustiques dans des guides d'ondes nanométriques

### Sommaire

---

<b>III.1</b> Modification du montage expérimental . . . . .	<b>61</b>
<b>III.2</b> Propagation d'un paquet d'onde gaussien en géométrie axisymétrique . . . . .	<b>62</b>
<b>III.3</b> Nanofils de cuivre . . . . .	<b>65</b>
III.3.1 Modes propres . . . . .	67
III.3.2 Propagation du mode de respiration . . . . .	70
III.3.3 Propagation du premier mode longitudinal . . . . .	72
<b>III.4</b> Ponts d'or nanométriques . . . . .	<b>75</b>
III.4.1 Fabrication des poutres d'or nanométriques . . . . .	76
III.4.2 Étude des modes propres des nanopoutres d'or . . . . .	78
III.4.3 Propagation contrapropageante dans les nanopoutres d'or . . . . .	84
III.4.4 Application à l'identification sans ambiguïté des modes . . . . .	89

---

*Dans ce chapitre, nous étudions la propagation d'ondes acoustiques dans le domaine du gigahertz (de 3 GHz à 15 GHz) dans des nanofils de cuivre uniques, obtenus par croissance électrochimique, suspendus au-dessus de tranchées et dans des nanopoutres d'or, conçues par lithographie électronique. Le guidage de ces ondes est étudié par des expériences pompe-sonde résolues en temps. Les résultats sont analysés à l'aune de la résolution semi-analytique de l'équation de Pochhammer et Chree. L'étalement des paquets d'ondes acoustiques générés dans ces guides d'onde est dérivé analytiquement et comparé aux oscillations observées sur les expériences de réflectométrie résolues en temps. Dans le cas de la propagation de deux modes acoustiques différents dans un nanofil de cuivre, nous montrons que la vitesse de propagation permet d'obtenir une caractéristique géométrique supplémentaire du matériau et indépendante par rapport à l'étude des modes confinés. Lors de l'étude de la propagation dans une nanopoutre d'or, nous montrons que la propagation des ondes acoustiques permet d'identifier sans ambiguïté le type de mode excité et observé grâce aux différentes relations de dispersion et plus seulement grâce à la fréquence de coupure.*

La propagation des ondes acoustiques est largement étudiée en milieu infini. Qu'il s'agisse d'échographie ultrasonore ou de sismologie avancée, l'étude de la façon dont les ondes sonores se propagent dans les milieux nous renseigne sur les propriétés géométriques et physiques des matériaux rencontrés. Cependant, à la différence de l'optique, l'étude de la propagation des ondes acoustiques dans les guides d'ondes est moins étudiée et quasiment inexplorée à l'échelle nanométrique. Or, l'étude de la propagation des ondes acoustiques dans les guides d'onde nanométriques revêt un aspect essentiel. Avec la dissipation intrinsèque du matériau et le couplage avec le substrat, cette propagation est une source de perte d'énergie acoustique qui limite le facteur de qualité du nano-résonateur, la finesse de l'analyse spectrale et rend plus difficile l'observation des modes de hautes fréquences. Par ailleurs, les guides d'onde nanométriques sont des candidats prometteurs pour la génération et la détection d'ondes acoustiques à l'échelle du nanomètre. En effet, pour l'heure, la génération et la détection d'ondes acoustiques sont réalisées grâce à des transducteurs piézoélectriques ou des impulsions lasers, ce qui limite la résolution latérale de l'étude des ondes acoustiques au micromètre (taille des transducteurs ou limite de la diffraction pour la lumière). L'utilisation de nano-objets comme transducteurs et détecteurs d'ondes acoustiques permet d'amener la résolution latérale à la taille du nano-objet. Ainsi, de nombreuses études rapportent le développement de nanofils aux propriétés piézoélectriques pour la transduction, le plus souvent pour la transformation d'énergie mécanique en énergie électrique [233, 38]. Cependant, la réalisation de contacts électriques nanométrique constitue pour l'instant un verrou technologique majeur. C'est pourquoi l'étude de transducteurs acoustiques pompés optiquement semble attirante. Comme ces nano-objets restent excités par un laser, des géométries astucieuses doivent être conçues pour que l'adressage soit bien nanométrique. De plus, la surface d'excitation étant plus grande que le nano-objet, le rendement de l'excitation est faible. On peut alors imaginer des guides d'ondes coniques qui permettent des effets d'amplification et d'augmenter l'efficacité de la génération [170, 188, 28]. Ainsi, le candidat idéal pour étudier ces effets d'amplification est sans aucun doute la pointe d'AFM. Cette géométrie sera explorée au Chapitre 5 mais pour l'heure, nous poursuivons l'étude de guides d'ondes cylindriques.

Nous commençons donc par étudier théoriquement la propagation d'un paquet d'onde gaussien dans une géométrie axisymétrique. Nous montrons ensuite expérimentalement que la spectroscopie pompe-sonde résolue en temps permet d'observer la propagation de phonons acoustiques guidés dans des nanofils de cuivre uniques — constituant un archétype des guides d'ondes cylindriques infinis — synthétisés par croissance électrochimique. Puis nous évoquons la synthèse de nos propres nano-objets, conçus par lithographie électronique. La section rectangulaire de ces nano-ponts d'or nous permet de mettre en évidence un phénomène de phase contrapropageante caractéristique des milieux à réfraction négative.

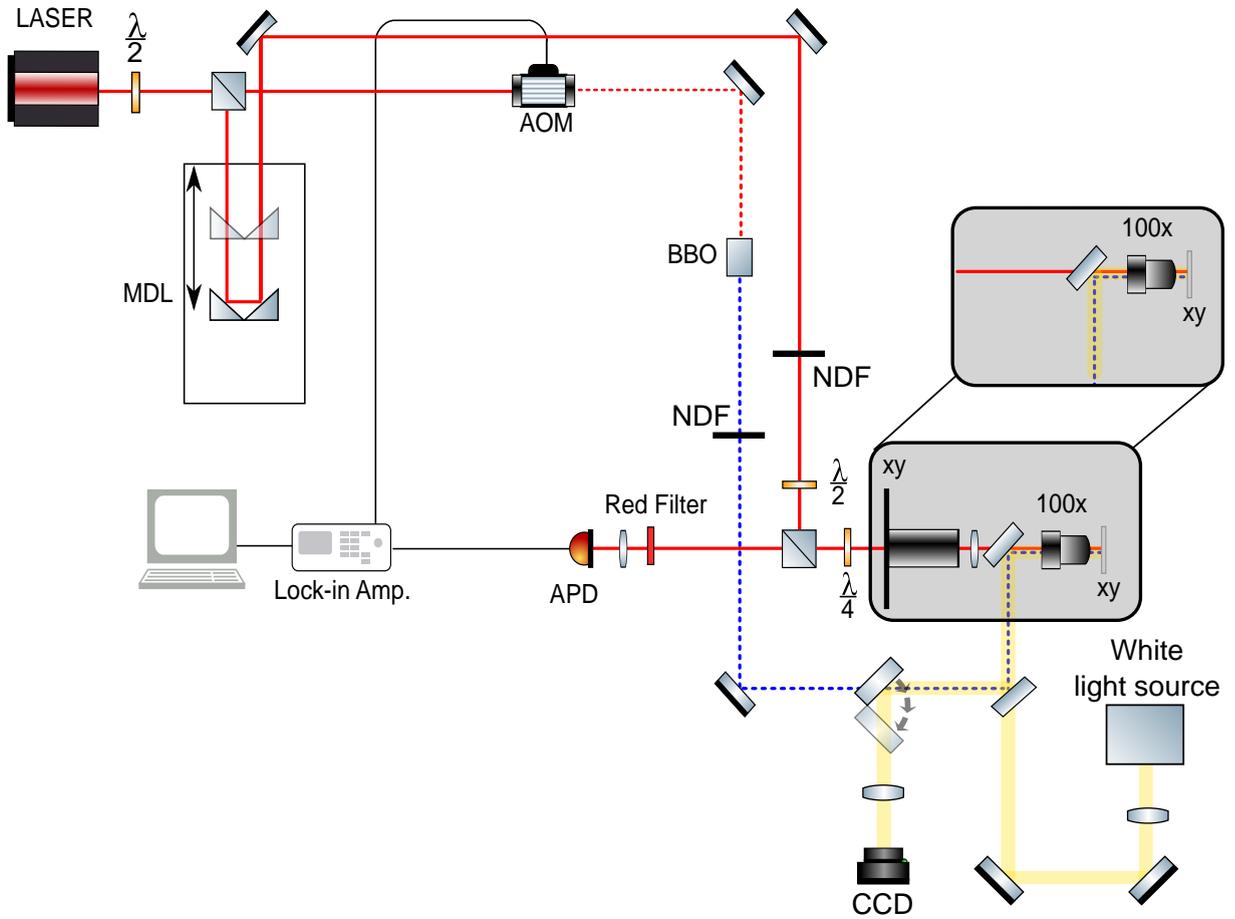


FIGURE 3.1: Montage expérimental pompe-sonde à deux couleurs pour la microscopie et pour la propagation. AOM : modulateur acousto-optique. BBO : Cristal doubleur. APD : photodiode à avalanche. MDL : Ligne à retard motorisée. CCD : caméra. NDF : Filtres à densité neutre. XY : Platines de positionnement piézoélectrique. La zone grisée est la zone modifiée pour permettre la séparation spatiale de la pompe et de la sonde sur l'échantillon.

### III.1 Modification du montage expérimental

Le montage expérimental que nous utilisons pour observer la propagation des phonons acoustiques guidés le long d'un nano-objet unique est une modification marginale du montage à deux couleurs utilisé précédemment. Pour rappel, il consiste principalement en un laser femtoseconde titane-saphir émettant dans le rouge et le proche infrarouge (710 à 920 nm) pompé optiquement par un laser solide Nd : YVO<sub>4</sub> doublé à 532 nm, lui-même pompé optiquement par des diodes lasers autour de 815 nm. Ce laser femtoseconde est séparé en deux voies, l'une d'une distance fixe jusqu'à l'échantillon (voie de la pompe) et l'autre d'une distance variable jusqu'à l'échantillon (voie de la sonde). La voie de pompe est doublée et modulée à 1,8 MHz alors que la voie de sonde est envoyée dans les coins de cube de la ligne à retard. Par la suite, les voies de pompe et de sonde sont superposées à l'entrée d'un objectif de microscope de grande ouverture numérique (NA = 0,95) et de

fort grossissement ( $\times 100$ ). Pour l'étude de la propagation des phonons acoustiques dans un nanofil suspendu unique, c'est la partie grisée sur la Figure 3.1 qui est modifiée par rapport au schéma en réflectivité classique (répété pour référence au-dessus de la zone grisée). La voie de sonde traverse un télescope positionné juste avant l'entrée du dernier objectif. Ce télescope est constitué d'un objectif Mitutuyo à longue distance de travail (LCD Plan Apo NIR 50 $\times$  Objective 1.1) monté sur une platine piézoélectrique trois axes pilotable (PI P-563.3CD) avec une course de 300  $\mu\text{m}$  et une précision de l'ordre du nanomètre et d'une lentille de très petite distance focale. On place ensuite une petite lame dichroïque à la sortie de ce télescope. La pompe et la sonde sont ainsi superposées spatialement avant l'entrée dans l'objectif terminal (Olympus UMPlanFI 100 $\times$ , NA = 0,95). Une cartographie « en face avant » peut donc être réalisée en bougeant la sonde relativement à la pompe qui est fixe. La calibration de la correspondance entre un déplacement de la platine du télescope de sonde et le déplacement de la sonde sur l'échantillon est réalisée grâce à un échantillon structuré connu. Un déplacement de la platine de 730 incréments (correspondant à 6,7  $\mu\text{m}$ ) entraîne un déplacement de 1  $\mu\text{m}$  sur l'échantillon. On peut ainsi obtenir un déplacement relatif de la sonde par rapport à la pompe d'un maximum de 45  $\mu\text{m}$ . Il faut cependant veiller à ce que le faisceau sonde ne soit pas occulté par l'objectif final ou par la petite lame dichroïque pour les plus grands déplacements. Cet échantillon structuré de calibration permet aussi d'estimer la taille du faisceau sonde sur l'échantillon à environ  $d_s = 1 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$ . Le faisceau pompe est estimé à environ  $d_p = 0,5 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$ . D'autres équipes ont développé des techniques de pompe-sonde où le faisceau sonde peut être déplacé relativement au faisceau pompe. On retrouve parfois un système de télescope[2] mais le plus souvent c'est un système de miroirs orientables qui est utilisé pour déplacer la sonde relativement à la pompe [187, 155].

### III.2 Propagation d'un paquet d'onde gaussien en géométrie axisymétrique

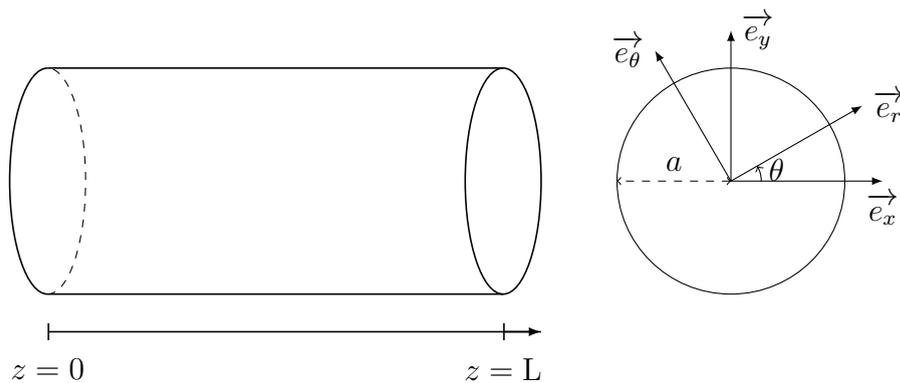


FIGURE 3.2: Guide d'onde cylindrique de rayon  $a$  et de longueur  $L \gg a$ .

Afin d'étudier la propagation d'un paquet d'onde gaussien dans une géométrie axisymétrique, on considère la même géométrie qu'à la Figure 3.2. Le cylindre métallique est éclairé par un faisceau laser bleu ( $\lambda = 400$  nm) gaussien de diamètre  $\sigma$  (de l'ordre de  $0,5 \mu\text{m}$ ) à  $1/e^2$ . À l'instant  $t = 0$ , une première impulsion laser d'une durée de l'ordre de  $100$  fs atteint le cylindre. Le nuage électronique est mis violemment hors équilibre (la température électronique atteint plusieurs milliers de Kelvin[51]) puis transfère l'excès d'énergie au réseau cristallin du nanofil en quelques picosecondes via des interactions électrons-phonons. La température du nanofil augmente (typiquement de quelques Kelvin à quelques dizaines de Kelvin[51]) et il se dilate, ce qui génère une onde acoustique. L'augmentation de température peut être considérée comme homogène pour les nanofils dont le rayon est de l'ordre de  $100$  nm du fait des transferts thermiques rapides induits par les électrons de conduction. La déformation initiale  $\eta_0(r, \theta, z)$  est donc axisymétrique et indépendante de  $r$  en première approximation. On considère que la déformation initiale est

$$\eta_0(z) = \frac{1}{2\pi\sigma} e^{-8z^2/\sigma^2} \quad (3.1)$$

Cette déformation axisymétrique excite les modes propres  $(\omega_n, k)$  du guide d'onde avec une amplitude  $A(\omega_n, k) = A_n(k)$ . Cependant, d'après l'étude de  $A_n(k)$  menée au chapitre 2, l'amplitude  $A_n(k)$  varie peu sur l'étendue des  $k$  effectivement excités par le faisceau pompe. Par suite, on considère  $A_n(k) \sim A_n$ . Pour un mode  $n$ , la distribution des nombres d'ondes  $k$  excités est

$$\hat{\eta}_{0,n}(k) = \int_{-\infty}^{\infty} A_n \eta_0(z) e^{-ikz} dz \quad (3.2)$$

On rencontre une intégrale gaussienne à argument complexe de la forme

$$I(a, b) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-a\zeta(\zeta-2b)} d\zeta \quad (3.3)$$

où  $(a, b) \in \mathbb{C}^2$ , qui peut être évaluée par une intégration sur un contour astucieusement choisi et grâce au théorème des résidus[157, 63]. On considère le cas où  $\text{Re}(a) > 0$ . Dans ce cas

$$I(a, b) = \sqrt{\frac{\pi}{a}} e^{ab^2} \quad (3.4)$$

On a alors

$$\widehat{\eta}_{0,n}(k) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{A_n}{2\pi\sigma} e^{-8z^2/\sigma^2} e^{-ikz} dz \quad (3.5)$$

$$= \frac{A_n}{2\pi\sigma} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-8z/\sigma^2(z+2ik\sigma^2/16)} dz \quad (3.6)$$

$$= \frac{A_n}{4\sqrt{2\pi}} e^{-k^2\sigma^2/32} \quad (3.7)$$

Le domaine des  $k$  excités est limité. En prenant comme critère l'atténuation à  $1/e^2$ , on a  $k\sigma < 8$ . Avec un diamètre de spot laser de pompe et de sonde de l'ordre de  $0,5\ \mu\text{m}$  à  $1\ \mu\text{m}$ , on excite significativement des nombres d'onde de l'ordre de quelques  $\mu\text{m}^{-1}$ . Cette déformation  $\widehat{\eta}_{0,n}(k)$  se propage avec la relation de dispersion  $\omega_n(k) = \alpha_n k^2 + \beta_n k + \omega_{0,n}$  dans la direction  $z$ , on a ainsi

$$\eta_n(z,t) = \int_{-\infty}^{\infty} \widehat{\eta}_{0,n}(k) e^{i(kz - \omega_n(k)t)} dk \quad (3.8)$$

$$= \frac{A_n}{4\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-k^2\sigma^2/32} e^{i(kz - \omega_n(k)t)} dk \quad (3.9)$$

$$= \frac{A_n}{4\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-k^2\sigma^2/32 + ikz - i\alpha_n k^2 t - i\beta_n k t - i\omega_{0,n} t} dk \quad (3.10)$$

En factorisant par  $-(\sigma^2/32 + i\alpha_n t)k$ , on a de nouveau une intégrale de la forme  $I(a,b)$  avec  $a = (\sigma^2/32 + i\alpha_n t)k$  et  $b = 16i(z - \beta_n t) / (\sigma^2 + 32i\alpha_n t)$ . La déformation  $\eta_n(z,t)$  s'écrit finalement

$$\eta_n(z,t) = \frac{A_n}{\sqrt{\sigma^2 + 32i\alpha_n t}} \exp(-i\omega_{0,n}t) \exp\left(-\frac{8(z - \beta_n t)^2}{\sigma^2 + 32i\alpha_n t}\right) \quad (3.11)$$

Cette déformation spatio-temporelle  $\eta_n(z,t)$  est enfin détectée à la position  $z_0$  par le faisceau gaussien de sonde, de diamètre  $\nu$  à  $1/e^2$ ,  $s_{z_0}(z)$  :

$$s_{z_0}(z) = \frac{1}{2\pi\nu} \exp\left(-8(z - z_0)^2/\nu^2\right) \quad (3.12)$$

La variation de réflectivité relative mesurée en  $z = z_0$ ,  $\left(\frac{\Delta r(t)}{r}\right)_{z=z_0}$ , est proportionnelle au produit de convolution des fonctions  $s_{z_0}(z)$  et  $\eta_n(z,t)$  :

$$\left(\frac{\Delta r(t)}{r}\right)_{z=z_0} \propto \int_{-\infty}^{\infty} \eta(z,t) s_{z_0}(z) dz \quad (3.13)$$

$$\propto \frac{1}{\sqrt{\nu^2 + \sigma^2 + 32i\alpha_n t}} \exp(-i\omega_{0,n}t) \exp\left(-\frac{8(z_0 - \beta_n t)^2}{\nu^2 + \sigma^2 + 32i\alpha_n t}\right) \quad (3.14)$$

Cette expression, qui contient des approximations fortes, apparaîtra suffisamment robuste pour bien décrire la propagation des phonons acoustiques dans des nanofils infinis à section cylindrique mais aussi dans des nanopoints d'or à section rectangulaire[107].

### III.3 Nanofils de cuivre

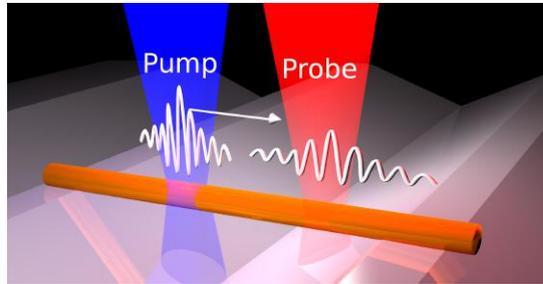


FIGURE 3.3: Résumé graphique de la propagation d'un paquet d'ondes acoustiques gigahertz dans un nanofil de cuivre unique suspendu au-dessus d'une tranchée de silicium. Étude par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps[109].

L'étude des modes confinés de nanofils métalliques par spectroscopie pompe-sonde a été largement décrite au cours des chapitres précédents (notamment le chapitre II.3). En parallèle, l'utilisation des nanofils comme guides d'ondes acoustiques pour générer des ondes acoustiques gigahertz avec une taille d'émission nanométrique a été évoquée[134] et pourrait permettre de concevoir des dispositifs pour l'imagerie ultrasonore tridimensionnelle de résolution nanométrique. Cependant, si les ondes acoustiques guidées dans une microfibre (diamètre  $> 30 \mu\text{m}$ ) ont déjà été étudiées[115, 160], l'étude de la propagation des phonons acoustiques dans des guides d'ondes nanométriques n'a été réalisée expérimentalement que sur un ensemble de nanofils de GaN (diamètre de 75 nm)[142] (Figure 3.4). Ces résultats sont très sensibles à l'étalement inhomogène des propriétés acoustiques à cause du moyennage sur de nombreux nanofils de dimensions légèrement différentes.

Dans cette partie, nous présentons une observation expérimentale directe de la propagation de phonons acoustiques cohérents dans le domaine du gigahertz dans des nanofils uniques suspendus dans l'air au-dessus de tranchées. Au-delà de l'intrinsèque nouveauté de cette observation expérimentale sur un nano-objet unique, nous montrons que la génération et la détection d'ondes acoustiques

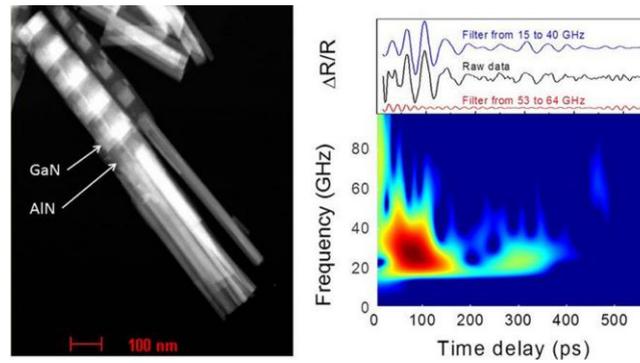


FIGURE 3.4: Résumé graphique de l'article de 2013 de l'équipe de Chi-Kuang Sun[142] qui met en évidence la propagation de phonons acoustiques gigahertz dans des nanofils GaN. Ces travaux utilisent un super-réseau GaN/AlN déposé sur chaque nanofil de GaN pour générer ces phonons acoustiques longitudinaux. Sur la Figure de droite, on distingue plusieurs échos (dans la gamme 15 GHz-40 GHz et 53 GHz-64 GHz correspondants à plusieurs allers-retours dans les nanofils).

propageantes dans un guide d'onde élastique permettent d'obtenir une meilleure caractérisation géométrique et matériau du nano-objet. Pour commencer, nous présentons les limites de la caractérisation utilisant seulement les fréquences des modes confinés à longueur d'onde infinie. En effet, considérons que les inconnues sont les vitesses longitudinales  $c_L$  et transverses  $c_T$  du son (on pourra se reporter au Tableau B.1 pour obtenir le lien entre ces vitesses et les diverses constantes élastiques d'un solide) ainsi que le diamètre  $a$  du nano-objet. En utilisant les fréquences des modes propres du nanofil, on ne peut obtenir que deux de ces paramètres, le rayon  $a$  du nanofil doit alors être déterminé par une autre technique, au microscope électronique à balayage (SEM) par exemple. Par la suite, nous analysons la génération et la propagation des phonons acoustiques cohérents dans des nanofils de cuivre uniques. Nous sommes capables de suivre deux modes acoustiques le long de l'axe principal d'un nanofil. Le premier mode propagatif correspond à la propagation du mode fondamental de respiration dont la fréquence de coupure est de 15,6 GHz et la relation de dispersion purement parabolique lorsqu'on effectue un développement à l'ordre 2. La propagation d'un pulse dont le contenu fréquentiel est plus faible, caractéristique d'un mode longitudinal dont la relation de dispersion est linéaire, est aussi observée. Les variations de réflectivité des nanofils étudiés sont comparées au comportement prédit pour la propagation de paquets d'ondes gaussiens dans un cylindre infini.

Les nanofils polycristallins de cuivre sont toujours préparés par électrodéposition dans les pores d'une membrane comme décrit de façon extensive dans le chapitre II.2. Afin de réduire la dissipation d'énergie à travers le contact entre le nanofil et le substrat de silicium, les nanofils sont dispersés sur un wafer de silicium structuré par des tranchées périodiques (Figure 3.5) fabriquées par lithographie et gravure anisotrope du silicium (dont la description détaillée est faite dans le chapitre II.4). Les expériences de spectroscopie pompe-sonde résolues en temps sont réalisées grâce à une source laser mode-lockée Ti :saphir à 800 nm. Tous les détails du dispositif expérimental sont décrits en détail

dans le chapitre II.1 et dans la partie III.1. La puissance moyenne du laser de pompe ne dépasse pas 300  $\mu\text{W}$  quand celle de la sonde est limitée à 30  $\mu\text{W}$ . La réflectivité de l'échantillon est mesurée à l'aide d'une photodiode à avalanche et d'une détection synchrone. Dans de telles conditions expérimentales, le signal acoustique enregistré ainsi que la réflectivité restent constante durant tout le processus de moyennage qui peut durer plusieurs dizaines de minutes. On reste ainsi dans le régime thermoélastique.

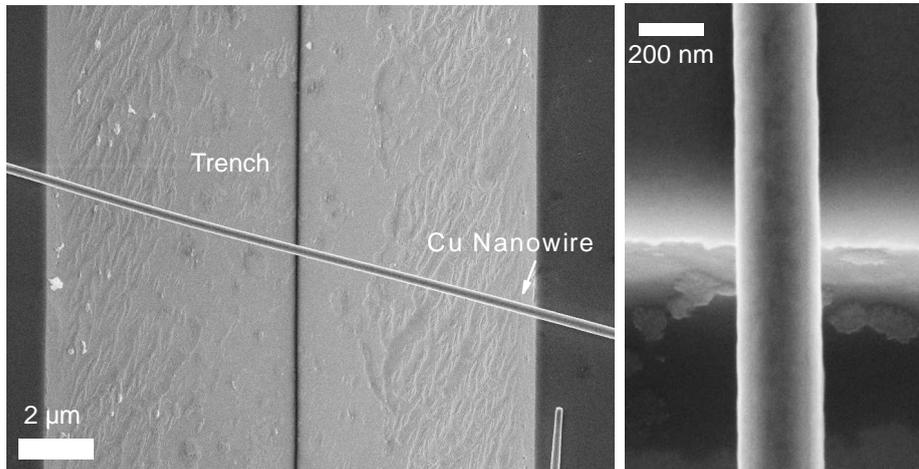


FIGURE 3.5: Images au microscope électronique à balayage d'un nanofil de cuivre polycristallin d'environ 200 nm de diamètre et d'environ 18  $\mu\text{m}$  de long placé sur une tranchée pyramidale fabriquée par lithographie optique et gravure chimique anisotrope du silicium. À l'exception des extrémités du nanofil, le diamètre est très régulier le long de son grand axe contrairement aux nanofils cœur/coquille étudiés dans le chapitre II.6 par exemple.

### III.3.1 Modes propres

Les nanofils étudiés dans ce chapitre possèdent un diamètre  $D$  de l'ordre de 200 nm et une longueur  $L$  qui dépasse les 10  $\mu\text{m}$ . Leur fabrication est détaillée dans le chapitre II.2. Les cylindres que constituent ces nanofils sont considérés comme infinis étant donné leur rapport d'aspect  $L/D > 50$ . On décrit donc leurs vibrations dans le cadre de la théorie de l'élasticité de Pochhammer[185] et Chree[46] développée au chapitre I.4. Par ailleurs, étant donné la limite de diffraction de la lumière, la tâche de focalisation du laser de pompe est plus grande que le diamètre d'un nanofil, de sorte que tout le diamètre du nanofil est chauffé uniformément. On ne considère ainsi que les modes sans dépendance azimutale de leur champ de déplacement. Comme on étudie des cylindres auto-suspendus au-dessus de tranchées, on applique une condition de contrainte nulle à la surface du cylindre. Ces conditions aux limites permettent d'obtenir l'équation 1.65 du chapitre I.4 reproduite ici :

$$2P_n \left( Q_n^2 + K^2 \right) J_1(P_n) J_1(Q_n) - \left( Q_n^2 - K^2 \right)^2 J_0(P_n) J_1(Q_n) - 4K^2 P_n Q_n J_1(P_n) J_0(Q_n) = 0 \quad (3.15)$$

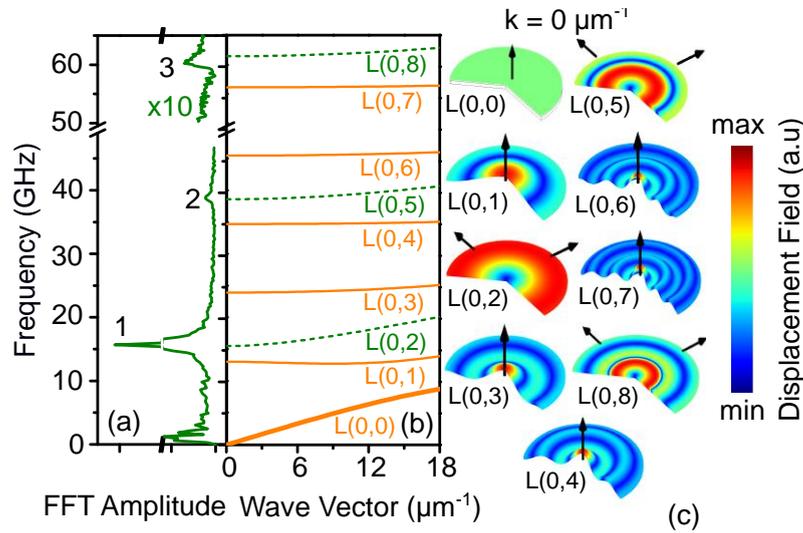


FIGURE 3.6: (a) : Transformée de Fourier rapide (FFT) d'un signal temporel de réflectivité relative expérimental réalisé sur un nanofil de cuivre auto-suspendu de 200 nm de diamètre. Les trois premiers modes de respiration apparaissent sur ce signal fréquentiel à  $15,6 \pm 0,1$  GHz,  $39,6 \pm 0,2$  GHz et  $60 \pm 1$  GHz. (b) Relations de dispersion des neuf premiers modes longitudinaux d'un nanofil de cuivre de 200 nm de diamètre calculées grâce à l'équation 3.15 avec  $\nu = 0,35$ ,  $E = 110$  GPa et  $\rho = 8700 \text{ kg m}^{-3}$  en adéquation avec des valeurs usuellement rencontrées pour du cuivre polycristallin[129]. (c) Champ de déplacement des huit premiers modes longitudinaux calculés à  $K = 0$  par éléments finis axisymétriques. Les modes L(0,2), L(0,5) et L(0,8) exhibent un champ de déplacement purement radial alors que les six autres modes ont un champ de déplacement purement axial. La déformation de l'objet est proportionnelle au déplacement. L'échelle est différente pour chaque mode. Les flèches noires indiquent les directions du champ de déplacement.

où  $J_0$  et  $J_1$  sont respectivement les fonctions de Bessel sphériques de première espèce et d'ordres zéro et un respectivement. On rappelle que  $P_n^2 = (X_n/\beta)^2 - K^2$  et  $Q_n^2 = X_n^2 - K^2$ .  $X_n$  est la pulsation réduite  $X_n = \omega_n a / c_T$ ,  $K = ka$  est le nombre d'onde réduit et  $\beta$  est un paramètre matériau qui ne dépend que du coefficient de Poisson  $\nu$  du matériau :  $\beta^2 = (c_L/c_T)^2 = (2-2\nu)/(1-2\nu)$ . L'entier naturel  $n$  donne l'ordre du mode axisymétrique, L(0,n). Nous avons conservé la nomenclature des tubes[203] et de certains livres de références[197] en commençant la numérotation à zéro. L'équation précédente doit être modifiée lorsque  $Q_n^2 < 0$  ou  $P_n^2 < 0$  (voir équation 1.69). Les relations de dispersion des neuf premiers modes de dilatation/compression d'un nanofil de cuivre isotrope, infiniment long, de 200 nm de diamètre et de section circulaire sont calculées numériquement et reproduites sur la Figure 3.6b. Pour des longueurs d'onde infinies ( $K = 0$ ), on obtient l'équation simplifiée 1.72 reproduite ici :

$$J_1 \left( \frac{\omega_n a}{c_T} \right) \left[ 2 \frac{c_T}{c_L} J_1 \left( \frac{\omega_n a}{c_L} \right) - \frac{\omega_n a}{c_T} J_0 \left( \frac{\omega_n a}{c_L} \right) \right] = 0 \quad (3.16)$$

On peut montrer que les racines de la fonction  $J_1$  sont associées à des modes dont le déplacement est purement axial (chapitre I.4.1). Les racines du deuxième facteur  $g_n(a, c_L, v_T) = 2c_T/c_L J_1(\omega_n a/c_L) - \omega_n a/c_T J_0(\omega_n a/c_L)$  déterminent les modes de respiration dont le champ de déplacement est purement radial (chapitre I.4.1). Les champs de déplacement des neuf premiers de ces modes sont représentés sur la Figure 3.6c. Lors d'une expérience de réflectivité pompe-sonde résolue en temps sur un nanofil de cuivre unique de 200 nm de diamètre suspendu au-dessus de tranchées de silicium, on obtient la signature fréquentielle reproduite en Figure 3.6a. Comme les mécanismes d'excitation et de détection favorisent les modes qui exhibent les plus grands déplacements et déformations radiales[139], on observe préférentiellement des composantes fréquentielles qui correspondent aux modes de respiration. De plus, le confinement acoustique étant largement amélioré grâce à la géométrie auto-suspendue, on observe un paysage vibrationnel riche composé du mode de respiration fondamentale à  $f_{L(0,2)} = 15,6 \pm 0,1$  GHz et de ses deux harmoniques à  $f_{L(0,5)} = 39,6 \pm 0,2$  GHz et  $f_{L(0,8)} = 60 \pm 1$  GHz. En observant ces trois modes acoustiques au lieu d'un seul, voire de deux[7], on pourrait espérer pouvoir déterminer sans ambiguïté trois propriétés indépendantes d'un nanofil en résolvant ce problème inverse. Par exemple  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$ . Cependant, il apparaît que quel que soit le nombre de modes de respiration qu'on peut observer expérimentalement, on ne pourra pas déterminer les trois variables  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$ . En effet, les fonctions  $g_n$  sont des fonctions homogènes d'ordre zéro, c'est à dire qu'elles vérifient  $g_n(\lambda a, \lambda v_L, \lambda v_T) = g_n(a, v_L, v_T)$  pour  $\lambda \neq 0$ .

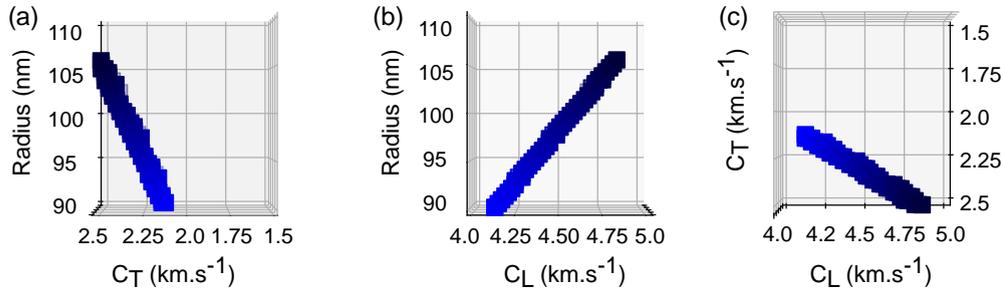


FIGURE 3.7: Détermination des triplets  $(a, c_T, c_L)$  qui minimisent l'erreur entre les mesures expérimentales des fréquences de coupure des trois modes de respiration et les fréquences de coupure des trois modes de respiration calculées selon l'équation 1.75 avec  $\rho = 8700 \text{ kg m}^{-3}$ . Un point bleu signifie que pour ce triplet  $(a, c_T, c_L)$ ,  $|f_{L(0,i)}^{\text{th}} - f_{L(0,i)}^{\text{exp}}| < 10^{-5,5} |f_{L(0,i)}^{\text{exp}}|$  pour  $i = 2,5,8$ . Les Figures 3.7a,b et c représentent ces points respectivement dans les plans  $(a, c_T)$ ,  $(a, c_L)$  et  $(c_L, c_T)$ . Le maillage  $50 \times 50 \times 50$  utilisé possède une taille de maille élémentaire de  $0,4 \text{ nm} \times 20 \text{ m s}^{-1} \times 20 \text{ m s}^{-1}$ . Avec les fréquences de coupure des modes de respiration, la zone qui minimise l'erreur est un cylindroïde, les trois paramètres  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$  ne peuvent donc pas être déterminés sans ambiguïté.

À titre d'exemple, on a calculé les modes de respiration théoriques pour un large ensemble de paramètres  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$  (Figure 3.7) puis on a cherché les points  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$  particuliers qui vérifient les trois conditions suivantes simultanément :  $|f_{L(0,i)}^{\text{th}} - f_{L(0,i)}^{\text{exp}}| < 10^{-5,5} |f_{L(0,i)}^{\text{exp}}|$  pour  $i = 2,5,8$ . Ces points sont représentés en bleu sur la Figure 3.7. On observe que l'ensemble de ces points forme un cylindroïde dans l'espace tridimensionnel  $(a, c_L, c_T)$ . Il n'y a donc pas d'unicité de la solution trouvée.

Une autre mesure indépendante doit être utilisée pour déterminer le facteur  $\lambda$  et ainsi donner une solution unique. Par exemple,  $a$  peut être déterminé par microscopie électronique ou AFM. Dans notre cas, le diamètre du nanofil est de l'ordre de 200 nm, on peut en déduire que les vitesses longitudinale et transverse du matériau qui compose le fil sont respectivement  $c_L = 4,5 \mu\text{s}^{-1}$  et  $2,3 \mu\text{s}^{-1}$ , en bon accord avec les constantes élastiques du cuivre[129]. Cependant, on ne peut utiliser cette technique que si la distribution de taille des nano-objets est connue et très étroite ou si on arrive à retrouver au microscope électronique le même objet étudié par des expériences pompe-sonde. C'est ce que nous avons réalisé dans le chapitre II.6 mais c'est une tâche délicate et très chronophage. Par conséquent il semble attractif d'obtenir une caractérisation à la fois élastique et géométrique par une seule expérience d'acoustique picoseconde.

Par la suite, on montre que la détermination du triplet de paramètres  $(a, c_L, c_T)$  peut être réalisée expérimentalement en acoustique picoseconde en étudiant la propagation d'ondes acoustiques correspondantes aux modes L(0,0) et L(0,2). On utilise pour cela les relations développées dans les chapitres I.4.1 et III.2. On utilise notamment le fait qu'à faibles nombres d'ondes, la relation de dispersion du mode L(0,0) est linéaire (équation 1.69) et celle du mode L(0,2) est parabolique (équation 1.70). L'évolution spatio-temporelle de la propagation d'un paquet d'onde dont la relation de dispersion est linéaire ou parabolique est ensuite calculée grâce à l'équation 3.14. Puis on discute les résultats expérimentaux de mesures de réflectivité relative résolue en temps le long d'un nanofil unique à la lumière de cette équation de propagation simplifiée (équation 3.14). On prendra  $\alpha_0 = 0$ ,  $\beta = \sqrt{E/\rho}$ ,  $\omega_0 = 0$  pour le mode L(0,0) et  $\alpha_2 = \delta c_L a$ ,  $\beta_2 = 0$ ,  $\omega_2$  pour le mode L(0,2).

### III.3.2 Propagation du mode de respiration

Afin d'être sensible aux phénomènes de propagation, les faisceaux de pompe et de sonde doivent pouvoir être positionnés spatialement individuellement avec une grande précision. Le montage expérimental qui permet de déplacer latéralement la sonde individuellement est décrit en détail au chapitre III.1. Les signaux expérimentaux de réflectivité relative obtenus sur un nanofil de cuivre unique de 200 nm de diamètre suspendu au-dessus d'une tranchée de silicium sont présentés sur la Figure 3.8a. La séparation spatiale entre la pompe et la sonde,  $z_0$ , est indiquée au-dessus de chaque courbe. Cette séparation varie de  $z_0 = 0 \mu\text{m}$  à  $z_0 = 1,5 \mu\text{m}$  ce qui reste relativement faible, sachant que les centres des faisceaux de pompe et de sonde doivent être espacés de plus de  $0,75 \mu\text{m}$  pour qu'il n'y ait plus aucun recouvrement entre les deux faisceaux. Pour de faibles séparations spatiales, le signal est principalement composé d'oscillations à 15,6 GHz qui correspondent au mode de respiration fondamental du nanofil, même si les harmoniques d'ordre supérieurs sont également visibles dans le spectre fréquentiel. Au fur et à mesure que la séparation pompe-sonde augmente, ce paquet d'ondes hautes fréquences se déplace progressivement vers des délais temporels plus importants ce qui correspond à ce que qu'on attend pour une onde acoustique se propageant le long de l'axe principal du nanofil. Les longues « queues » observées dans les signaux de réflectivité sont en partie dues à la

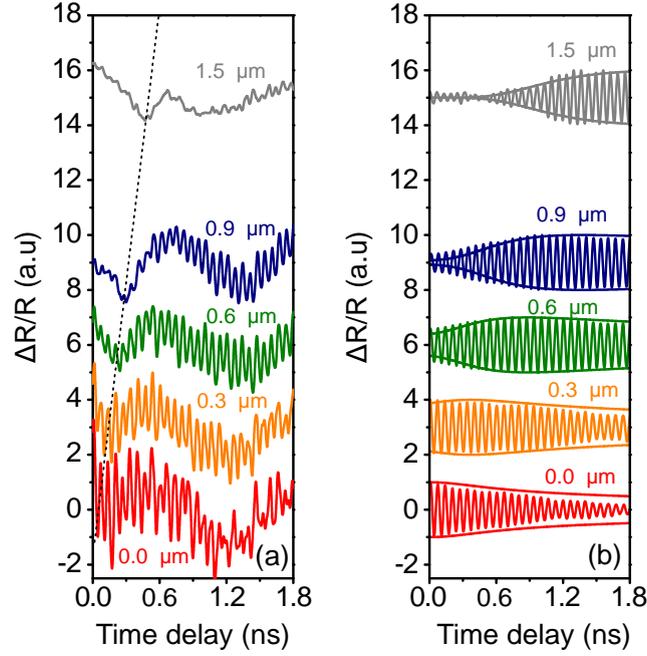


FIGURE 3.8: (a) Signaux expérimentaux de réflectivité relative résolue en temps sur un nanofil de cuivre auto-suspendu de 200 nm de diamètre. La distance indiquée au-dessus de chaque courbe est la séparation spatiale entre la pompe et la sonde  $z_0$ . La composante principale des oscillations observées correspond aux 15,6 GHz du mode de respiration fondamental. Des composantes plus hautes fréquences sont également observées pour les plus petites distances  $z_0$  et correspondent au premier et deuxième harmoniques du mode de respiration. La déformation qui apparaît pour une séparation spatiale de 600 nm à un délai de 170 ps et à 1500 nm à un délai de 400 ps est la signature de la propagation du mode L(0,0) mode étudiée plus en détail dans la Figure 3.9 : la ligne noire pointillée suit le maximum de cette déformation et prouve la propagation linéaire. (b) Il s'agit des mêmes signaux, normalisés sur  $[-1,1]$  et auxquels on a appliqué un filtre numérique du second ordre centre sur la fréquence du mode de respiration fondamental à 15,6 GHz. On met ainsi en évidence la propagation du premier mode de respiration. Les lignes continues sont  $|\Delta r(t)/r|_{z=z_0}$ , calculées analytiquement grâce à l'équation 3.14 avec  $\alpha = 0,17 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$ ,  $\beta = 0$ ,  $\omega_2/2\pi = 15,6 \text{ GHz}$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$  et  $\sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . La comparaison entre les Figure 3.16a (non filtrée) et Figure 3.16b (filtrée) permet de s'assurer que le filtrage n'ajoute pas d'artefact.

convolution entre les faisceaux de pompe et de sonde qui n'ont pas une extension spatiale infiniment nulle. En outre, on observe une forte atténuation qui approche un facteur 10 en amplitude après 1,5  $\mu\text{m}$  de propagation, soit de l'ordre de  $18 \text{ dB } \mu\text{m}^{-1}$ . Malgré des temps d'acquisition importants, ce faible rapport signal sur bruit persiste pour les séparations les plus importantes. Ainsi, on utilise un filtre passe-bande numérique centré sur 15,6 GHz et on normalise à  $[-1,1]$  les signaux de la Figure 3.8a. On obtient alors la Figure 3.8b qui met clairement en évidence la propagation du mode de respiration au cours de sa propagation. La ligne continue qui est également tracée sur cette Figure correspond à l'enveloppe  $|\Delta r(t)/r|_{z=z_0}$  (équation 3.14) calculée analytiquement avec une relation de dispersion purement parabolique :  $\alpha = 0,17 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$ ,  $\beta = 0$ ,  $\omega_2/2\pi = 15,6 \text{ GHz}$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$  et  $\sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . On note que l'accord avec l'ensemble des signaux expérimentaux est excellent. Malgré

les hypothèses fortes utilisées pour obtenir l'équation 3.14, l'accord est d'autant plus remarquable que nous avons utilisé la valeur  $\alpha = \delta c_L a$  pour  $c_L = 4,5 \mu\text{m s}^{-1}$ ,  $2,3 \mu\text{m s}^{-1}$  et  $a = 100 \text{ nm}$ , qui sont les valeurs que nous avons obtenues précédemment grâce aux fréquences des modes de respiration à leur fréquence de coupure (Figure 3.7) et aux mesures au microscope électronique à balayage.

### III.3.3 Propagation du premier mode longitudinal

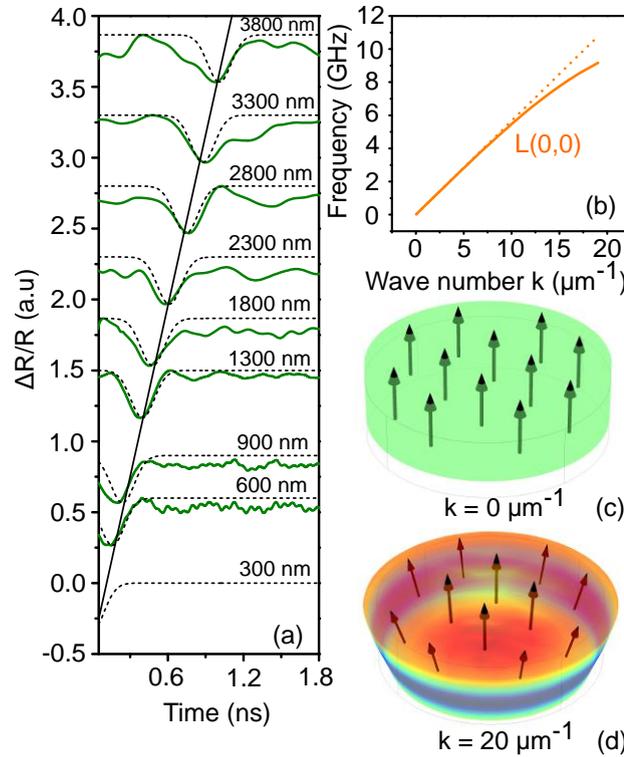


FIGURE 3.9: (a) Signal expérimental de réflectivité relative résolue en temps sur un nanofil de cuivre unique auto-suspendu de 200 nm de diamètre avec une constante d'intégration de 200 ms, ce qui permet de réaliser un filtre passe-bas et de s'affranchir du signal haute fréquence du mode de respiration fondamental. Les signaux sont normalisés sur  $[-0.3, 0]$ . La séparation spatiale,  $z_0$  entre la pompe et la sonde est notée au-dessus de chaque signal. Les lignes pointillées représentent  $|\Delta r(t)/r|_{z=z_0}$  (équation 3.14) calculée analytiquement avec  $\alpha_0 = 0$ ,  $\beta_0 = 3,6 \mu\text{m ns}^{-1}$ ,  $\omega_0 = 0$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$  et  $\sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . La ligne noire continue suit le maximum de déformation et illustre la propagation linéaire. (b) Relation de dispersion du mode L(0,0). La ligne continue correspond à la résolution numérique de l'équation 3.15, la ligne pointillée est l'approximation linéaire  $\omega = \sqrt{E/\rho}k$ . (c) Distribution du champ de déplacement du mode L(0,0) pour  $k = 0$  qui ne présente aucun déplacement radial. Calculs d'éléments finis tridimensionnels. (d) Champ de déplacement du même mode L(0,0) à  $k \approx 20 \mu\text{m}^{-1}$ . Le déplacement radial est ici significatif. Calculs d'éléments finis tridimensionnels.

Revenons sur la déformation qui apparaît pour une séparation spatiale de 600 nm à un délai de 170 ps et à 1500 nm à un délai de 400 ps qui semble se déplacer linéairement au cours de la propagation si on se fie à la ligne pointillée sur la Figure 3.8a. La propagation linéaire de ce mode acoustique

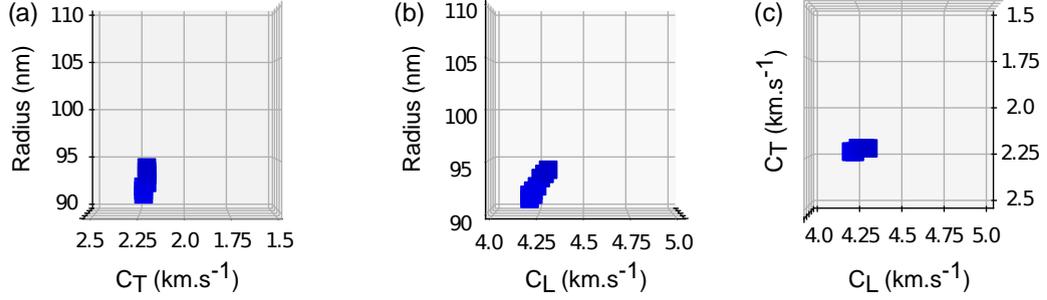


FIGURE 3.10: Détermination des triplets  $(a, c_T, c_L)$  qui minimisent l'erreur entre les mesures expérimentales des fréquences de coupure des deux premiers modes de respiration et les fréquences de coupures des deux premiers modes de respiration calculées selon l'équation 1.75 avec  $\rho = 8700 \text{ kg m}^{-3}$  et qui minimisent l'erreur entre la vitesse de propagation du premier mode longitudinal observé sur la Figure 3.9 et sa valeur théorique  $v_{L(0,0)} = \sqrt{E/\rho}$ . Un point bleu signifie que pour ce triplet  $(a, c_T, c_L)$ ,  $|f_{L(0,i)}^{\text{th}} - f_{L(0,i)}^{\text{exp}}| < 10^{-5,5} |f_{L(0,i)}^{\text{exp}}|$  pour  $i = 2,5$  et  $|v_{L(0,0)}^{\text{th}} - v_{L(0,0)}^{\text{exp}}| < 10^{-5,5} |v_{L(0,0)}^{\text{exp}}|$ . Les Figures 3.7a,b et c représentent ces points respectivement dans les plans  $(a, c_T)$ ,  $(a, c_L)$  et  $(c_L, c_T)$ . Le maillage  $50 \times 50 \times 50$  utilisé possède une taille de maille élémentaire de  $0,4 \text{ nm} \times 20 \text{ m s}^{-1} \times 20 \text{ m s}^{-1}$ . Avec les fréquences de coupure des modes de respiration, la zone qui minimise l'erreur est incluse dans un cube, les trois paramètres  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$  peuvent donc être déterminés sans ambiguïté :  $a = 92 \pm 2 \text{ nm}$ ,  $c_L = 4,2 \pm 0,1 \text{ km s}^{-1}$  et  $c_T = 2,2 \pm 0,1 \text{ km s}^{-1}$ .

qu'on observe sur la Figure 3.8a mais aussi sur toutes les expériences réalisées (contrairement à la déformation qui apparaît autour de 1,2 ns) peut être associée à la propagation du mode  $L(0,0)$  dont la relation de dispersion est linéaire à faible nombre d'onde (Figure 3.9b). En première approche, la déformation se propage de  $1,5 \mu\text{m}$  en environ  $0,45 \text{ ns}$  soit une vitesse de l'ordre de  $3,3 \mu\text{m ns}^{-1}$ , ce qui semble en accord avec la vitesse du mode  $L(0,0)$  puisque  $v_{L(0,0)} = \sqrt{E/\rho} = 3,6 \mu\text{m ns}^{-1}$ . Comme nous l'avons détaillé dans le chapitre II.3.1, le champ de déplacement radial du mode  $L(0,0)$  à  $k = 0$  (ou longueur d'onde infinie) est nul alors qu'il est significatif pour  $k \approx 20 \mu\text{m}^{-1}$ . On montre à nouveau ces champs de déplacement, calculés par éléments finis en Figure 3.9c et d. Afin de détecter ce mode  $L(0,0)$ , il est important d'utiliser des faisceaux pompe et sonde les plus petits possibles afin de générer de grands vecteurs d'onde pour avoir des composantes radiales significatives et donc de mieux détecter les variations de réflectivité. On observe ainsi cette déformation liée au mode  $L(0,0)$  au fur et à mesure que la distance pompe-sonde augmente. On peut également ajouter que pour les faibles distances, le mode de respiration est très important ce qui pourrait masquer tout autre signal plus faible. Cette déformation liée au mode  $L(0,0)$  est explorée plus en détail pour des distances de propagation supérieures sur la Figure 3.9.

Les signaux expérimentaux de la Figure 3.9 sont toujours obtenus sur un nanofil unique de cuivre de  $200 \text{ nm}$  de diamètre. Cette fois-ci, nous utilisons une constante d'intégration de  $200 \text{ ms}$  qui agit comme un filtre passe bas en rejetant les hautes fréquences. En multipliant par 10 la constante d'intégration, nous augmentons par la même le rapport signal sur bruit ce qui nous permet de suivre la

propagation du mode L(0,0) jusqu'à une séparation entre la pompe et la sonde de 3,8  $\mu\text{m}$ . Les signaux de la Figure 3.9a sont normalisés sur  $[-0.3, 0]$  pour éliminer l'atténuation qui n'est pas prise en compte dans le modèle utilisé jusqu'à présent et la distance inscrite au-dessus de chaque courbe donne la distance entre les centres respectifs des faisceaux de pompe et de sonde. La ligne pointillée représente le calcul analytique de  $|\Delta r(t)/r|_{z=z_0}$  avec  $\alpha = 0$ ,  $\beta = 3,6 \mu\text{m ns}^{-1}$ ,  $\gamma = 0$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$  and  $\sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . Le très bon accord avec l'expérience est obtenu pour  $E = 113 \text{ GPa}$  et  $\rho = 8700 \text{ kg m}^{-3}$ . On note ainsi que contrairement à la dépendance parabolique complexe du mode L(0,2) (équation 1.70), la propagation du mode L(0,0) donne de façon simple et directe une estimation du module de Young du nano-objet de façon indépendante du diamètre du nanofil. Grâce à cette nouvelle caractérisation, on se propose alors d'estimer le triplet  $(a, c_T, c_L)$  en minimisant l'erreur entre le calcul numérique (exposants « th ») et la mesure des fréquences des deux premiers modes de respiration et de la vitesse de propagation du mode L(0,0) (exposants « exp »). On procède de la même façon que précédemment (Figure 3.7) et on présente donc l'ensemble des points dans l'espace  $(a, c_T, c_L)$  qui vérifient à la fois  $|f_{L(0,i)}^{\text{th}} - f_{L(0,i)}^{\text{exp}}| < 10^{-5,5} |f_{L(0,i)}^{\text{exp}}|$  pour  $i = 2, 5$  et  $|v_{L(0,0)}^{\text{th}} - v_{L(0,0)}^{\text{exp}}| < 10^{-5,5} |v_{L(0,0)}^{\text{exp}}|$  (Figure 3.10). Avec les fréquences de coupure des deux premiers modes de respiration et la vitesse du premier mode longitudinal L(0,0), la zone qui minimise l'erreur est incluse dans un cube, les trois paramètres  $a$ ,  $c_L$  et  $c_T$  peuvent donc être déterminés sans ambiguïté :  $a = 92 \pm 2 \text{ nm}$ ,  $c_L = 4,2 \pm 0,1 \text{ km s}^{-1}$  et  $c_T = 2,2 \pm 0,1 \text{ km s}^{-1}$ . Cette détermination est donc en accord avec la détermination utilisant les fréquences de coupure uniquement et une mesure au microscope électronique.

Pour conclure, nous avons étudié la propagation de deux modes acoustiques guidés le long d'un nanofil de cuivre auto-suspendu. En réduisant le canal de dissipation de l'énergie acoustique du nano-résonateur vers le substrat, la géométrie suspendue des nanofils constitue une façon unique d'observer la propagation d'ondes acoustiques cohérentes dans le domaine du gigahertz avec une séparation spatiale maximale de 4  $\mu\text{m}$  entre la pompe et la sonde. Par ailleurs, une approche rigoureuse nous a permis d'attribuer les composantes principales des signaux de réflectométrie relatives à deux modes acoustiques précis. De plus, ces observations expérimentales permettent d'obtenir deux caractérisations élastiques indépendantes, qui combinées aux fréquences des deux premiers modes de respiration, permettent à la fois la détermination des propriétés élastiques  $c_L$  et  $c_T$  et de la propriété géométrique  $a$  du nanofil.

### III.4 Ponts d'or nanométriques

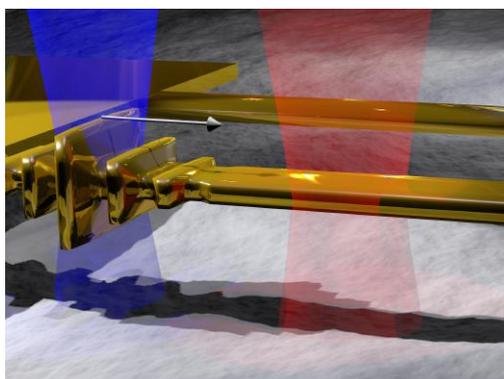


FIGURE 3.11: Résumé graphique de la propagation d'ondes acoustiques guidées le long d'une nanopoutre d'or étudiée par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps.

Les nanofils fabriqués par croissance électrochimique dans les pores d'une membrane sont un système modèle de choix pour étudier les modes acoustiques confinés[15] ou propagatifs[109] dans les nano-objets. En effet, ces nanofils sont presque parfaitement cylindriques, présentent un rapport d'aspect élevé et leur surface est très lisse. Des modèles semi-analytiques sont ainsi utilisables pour décrire les ondes acoustiques dans ces guides d'onde. Cependant, ce procédé de fabrication limite les possibilités d'organisation des nano-objets sur le substrat ainsi que les formes des objets. Par ailleurs, la connaissance précise du comportement acoustique et thermique des nano-objets revêt un caractère technologique important dans le domaine des capteurs nano et micro-électro mécaniques (MEMS et NEMS)[105]. C'est pour cela que nous avons développé une géométrie proche de celle de certains NEMS (Figure 3.12) et que nous avons étudié les modes propres de nano-poutres d'or fabriquées par lithographie électronique[107].

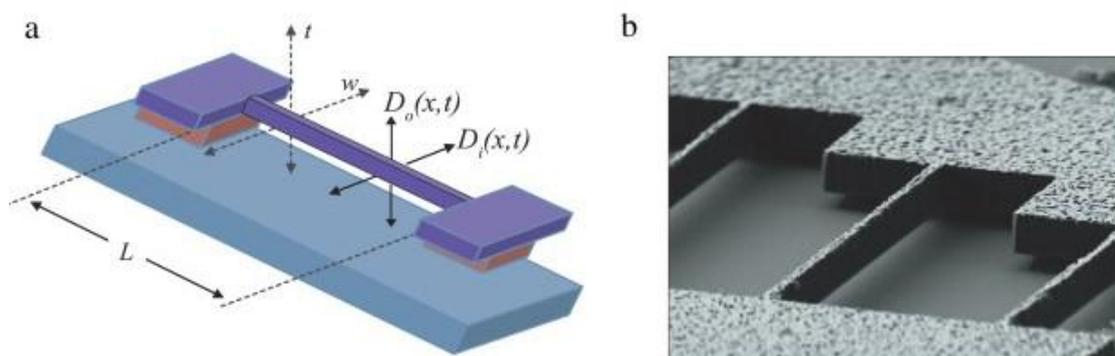


FIGURE 3.12: NEMS résonateur extrait de Imboden *et al.*[105]. (a) Schéma d'une nanopoutre suspendue après sous-gravure et attachée aux deux extrémités. (b) Trois nanopoutres en diamant polycristallin auto-suspendues de longueur variable. Les structures ont une épaisseur de l'ordre du micron.

Par ailleurs, un intérêt récent et croissant se développe à la fois dans des communautés d'acoustique et d'électromagnétisme pour développer des matériaux et des guides d'ondes où se produisent des phénomènes d'ondes contrapropageantes[229]. Par définition, la vitesse de phase qui décrit la propagation des fronts d'ondes individuels dans un paquet d'onde et le flux d'énergie de l'onde décrit par son vecteur de Poynting sont antiparallèles pour des ondes contrapropageantes. Cette propagation antiparallèle est constitutive des matériaux à indice de réfraction négative qui ouvrent la voie à une grande variété de phénomènes physiques intrigants[228]. Ainsi, de nombreuses preuves expérimentales de la réfraction négatives et les premières applications à de nouvelles formes de lentilles existent déjà dans le domaine de l'électromagnétisme[173]. Cependant, si la possibilité d'un tel comportement contrapropageant dans des guides d'ondes élastiques a été évoquée par Lamb dès le début du 20<sup>e</sup> siècle[122] et a été observée dans des guides d'ondes cylindriques[153] ou pour des ondes de surface[150, 23], l'étude de ces phénomènes acoustiques reste limitée aux fréquences de l'ordre du mégahertz. On note les exemples récents de réfraction négative dans des matériaux poreux[27] et de focalisation acoustique avec des ondes de Lamb[184, 26]. Dans cette partie, nous apportons une preuve expérimentale de la propagation d'ondes contrapropageantes dans des guides d'ondes nanométriques dans le domaine du gigahertz. De la même façon que précédemment avec les nanofils de cuivre, nous utilisons un montage pompe-sonde résolu en temps pour lequel la pompe et la sonde peuvent être séparées spatialement pour détecter la propagation d'ondes acoustiques. Nous montrons que la façon dont se propagent les modes acoustiques permet d'identifier sans ambiguïté la nature des modes acoustiques générés.

### III.4.1 Fabrication des poutres d'or nanométriques

Afin d'étudier les modes guidés dans des guides élastiques unidimensionnels nanométriques, nous avons conçu des nanostructures en or de section rectangulaire (Figure 3.14). Leur épaisseur,  $h$ , est fixée à  $h = 110$  nm et leur largeur,  $w$  varie de 200 à 800 nm. Comme le montre la Figure 3.14a, les bandes d'or sont connectées à de larges mesas à chaque extrémité. Pour réduire l'influence du substrat de silicium sur le confinement élastique, les structures nanométriques d'or sont suspendues plusieurs microns au-dessus du substrat (Figure 3.14b). Cette géométrie constitue ce que nous appelons des « nanopoutres d'or ». Toutes les conditions aux limites sont donc libres à l'exception des conditions fixes aux extrémités attachées aux mesas. Cependant, comme la longueur de ces nanopoutres est grande (de l'ordre de 15  $\mu$ m) devant les dimensions transverses (de l'ordre de 1  $\mu$ m), on les considère comme infiniment longues et les conditions aux limites fixes aux extrémités peuvent ainsi être négligées. Ces échantillons sont fabriqués par lithographie électronique suivie d'une gravure chimique anisotrope du substrat de silicium. Nous utilisons des substrats de silicium Si(001) polis sur une face (Figure 3.13a). La première étape consiste à l'enduction d'une résine électronique à la tournette (PMMA-950K-A6, 30 s à 5000 rpm) sur la surface polie du wafer de silicium (Figure 3.13b). La résine est ensuite exposée aux électrons à 20 kV dans un microscope électronique à balayage Zeiss

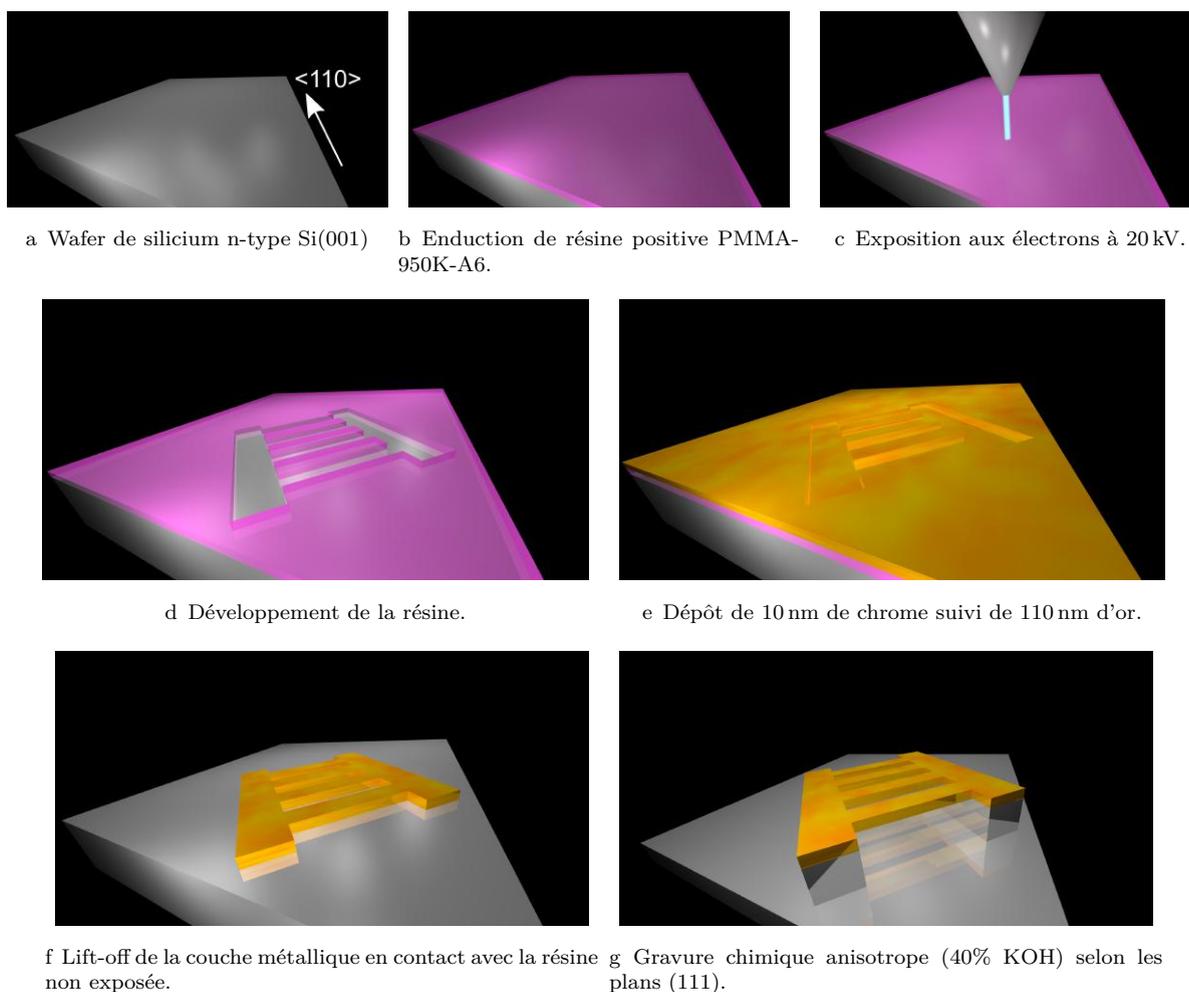


FIGURE 3.13: Sept étapes de fabrication des ponts d'or nanométrique par lithographie électronique, lift-off et gravure chimique.

Supra 40 équipé d'un module Raith Elphy Quantum (Figure 3.13c). Après avoir été développé (Figure 3.13d), rincé à l'eau et séché, 10 nm de chrome sont évaporés sur l'échantillon pour améliorer l'adhésion suivis de 110 nm d'or (Figure 3.13e). Un lift-off est ensuite réalisé dans de l'acétone pour délimiter les futures nanopoutres (Figure 3.13f). Lors de cette étape, les ultrasons doivent être utilisés avec une grande précaution afin de ne pas endommager les structures. Enfin, l'échantillon est plongé une vingtaine de minute dans un bain chaud (environ 60 °C) de KOH à 40% afin de sous-graver le silicium pour libérer les nanopoutres d'or (Figure 3.13g). Un des points clés de ce procédé de fabrication est de veiller à ce que le grand axe des poutres soit orienté à 45° par rapport à la direction [110] du substrat de silicium pour permettre la sous-gravure.

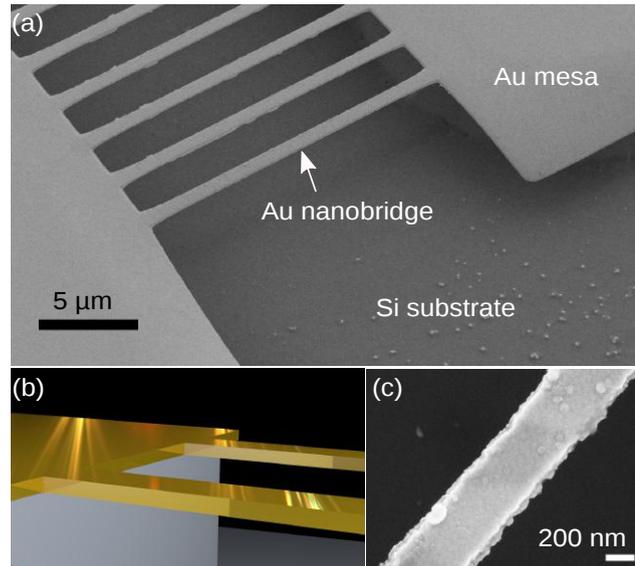


FIGURE 3.14: (a) Image en microscopie à balayage vue de dessus de plusieurs nanopoutres d'or suspendues plusieurs microns au-dessus du substrat de silicium. (b) Vue d'artiste des nanopoutres à section rectangulaire. (c) Vue rapprochée d'une nanopoutre de 400 nm de large. La rugosité est de l'ordre de 20 nm.

### III.4.2 Étude des modes propres des nanopoutres d'or

Le même montage expérimental que pour l'étude de la propagation des ondes acoustiques dans les nanofils de cuivre est utilisé. La puissance de la pompe est limitée à 700 μW et celle de la sonde ne dépasse pas 70 μW. Les lasers sont focalisés sur une tâche de l'ordre de 0,5 à 1 μm de diamètre à  $1/e^2$ . Avec le laser Ti:saphir utilisé, l'énergie par impulsion est de l'ordre de 1 pJ μm<sup>-2</sup> à 45 pJ μm<sup>-2</sup>. De telles conditions expérimentales nous placent dans le régime thermoélastique : le signal de réflectivité optique et le signal acoustique restent stables durant tout le processus de moyennage de l'ordre de la minute à plusieurs dizaines de minutes en fonction notamment de la distance entre l'excitation et la détection et du retard temporel maximal entre l'impulsion de pompe et de sonde.

Considérons tout d'abord la situation où le laser de pompe et le laser de sonde sont spatialement superposés et focalisés au milieu d'une nanopoutre. La Figure 3.15 représente les changements relatifs de réflectivité  $\Delta R/R$  d'une nanopoutre d'or de  $400 \pm 20$  nm de large (déterminée au microscope électronique à balayage) et 110 nm d'épaisseur. Après une augmentation abrupte du signal, une lente décroissance non-oscillante de  $\Delta R/R$  est observée. C'est la signature de l'élévation soudaine de la température du nuage électronique mis hors équilibre par l'absorption de l'impulsion de pompe, suivi par le lent processus de refroidissement via les transferts électrons-phonons puis de diffusion thermique. Cette élévation de température provoque la dilatation initiale du nano-objet et lance les vibrations acoustiques de la nanopoutre[221]. Le temps caractéristique de refroidissement est d'autant plus lent ici que les nanopoutres sont découplées mécaniquement du substrat de silicium,

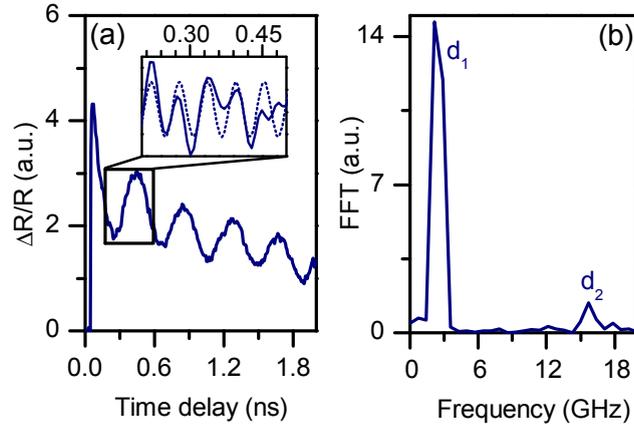


FIGURE 3.15: (a) Signal typique de modulation de la réflectivité du faisceau sonde  $\Delta R/R$  d'une nanopoutre d'or de  $400 \pm 20$  nm de large et 110 nm d'épaisseur. Une modulation basse fréquence à 2,8 GHz est superposée à un signal haute fréquence autour de 16 GHz (l'insert est un zoom où la modulation basse fréquence est éliminée, la ligne pointillée est un sinus à 16 GHz). (b) Spectre de Fourier en puissance du signal temporel (a) où deux pics à 2,8 GHz et 16 GHz correspondent aux premiers modes de dilatation  $d_1$  et  $d_2$ .

le canal de dissipation thermique est donc limité aux extrémités attachées aux mesas. Le signal de réflectivité résolu en temps montre une oscillation haute fréquence (insert Figure 3.15a) superposée à une basse fréquence. En réalisant une transformée de Fourier rapide (Figure 3.15b) ou en ajustant les signaux temporels par un sinus amorti, deux signatures sont extraites à  $2,8 \pm 0,5$  GHz et à  $16,0 \pm 0,5$  GHz (l'incertitude, liée à l'amortissement rapide du signal est mieux estimée grâce au sinus amorti dont l'ajustement dépend peu de la fenêtre temporelle utilisée, contrairement à la largeur à mi-hauteur du pic FFT). Par la suite, le module d'Young, le coefficient de Poisson et la densité de l'or sont respectivement de 79 GPa, 0,44 and  $19\,300 \text{ kg m}^{-3}$ [154]. Les vitesses longitudinale,  $c_L$ , et transverse,  $c_T$  du son dans l'or sont donc respectivement  $3,6 \mu\text{m ns}^{-1}$  et  $1,2 \mu\text{m ns}^{-1}$ .

### III.4.2.1 Mode haute fréquence

La haute fréquence détectée semble correspondre à l'établissement d'une onde stationnaire selon l'épaisseur de la nanopoutre. En effet, cette vibration, de période  $T$ , a pour longueur d'onde  $\lambda = c_L T = 2h$ , ce qui correspond à une fréquence  $f = c_L / (2h) = 16,5 \text{ GHz}$ . Le champ de déplacement de ce mode  $d_2$ , calculé par éléments finis, est représenté sur la Figure 3.16b. L'incertitude de mesure réalisée sur ce mode haute fréquence ne permet pas avec certitude d'affirmer qu'il s'agit effectivement du mode de dilatation d'épaisseur. Afin de lever le doute, nous avons réalisé deux expériences complémentaires. La première consiste en une expérience pompe-sonde résolue en temps de réflectométrie identique à l'expérience de la Figure 3.15 mais réalisée sur la méso et pas sur la nanopoutre. Le signal temporel de cette expérience est présenté sur la Figure 3.16a en vert. La

composante oscillante à  $2,8 \pm 0,5$  GHz est évidemment absente étant donné qu'il n'y a plus de confinement latéral sur la mesa infinie. De plus, la composante oscillante  $16,0 \pm 0,5$  GHz, qui correspond à un mode de vibration de l'épaisseur de la couche d'or est également absente et le signal est largement dominé par le fond thermique. Deux phénomènes peuvent être à l'origine de cette absence. D'abord, par opposition à la nanopoutre, la couche d'or est ici en contact direct avec le silicium, le mode de vibration est peut-être présent mais très fortement amorti ce qui empêche sa détection. Par ailleurs, l'effet photoélastique de l'or est très faible[182]. Or, en réflectométrie, l'effet photoélastique est le principal facteur de détection des ondes acoustiques. En effet, les changements relatifs d'amplitude ( $\rho$ ) et de phase ( $\phi$ ) d'une onde lumineuse plane monochromatique polarisée rectilignement réfléchi en incidence normale par une couche semi-infinie selon la profondeur  $z$  sont décrits par l'équation 3.17[149, 220]

$$\frac{\Delta r(t)}{r_0} = \rho(t) + i\phi(t) = -2ik_0 u_z(0,t) + ik_0 \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta} \frac{4\tilde{n}}{1 - \tilde{n}^2} \int_0^\infty e^{2ik_0 \tilde{n} z} \eta(z,t) dz \quad (3.17)$$

où  $u_z(0,t)$  est le déplacement hors plan à la surface du matériau,  $k_0$  est le vecteur d'onde dans le vide du champ électrique incident,  $\tilde{n}$  est l'indice optique du matériau,  $\eta(z,t) = \frac{\partial u_z}{\partial z}$  un champ de déformation longitudinale et  $\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta}$  le coefficient photoélastique. Lorsque ce coefficient photoélastique est petit, la contribution du second terme de l'équation 3.17 à la variation relative de la réflectivité est faible et les déformations acoustiques peuvent devenir difficiles à détecter en réflectométrie qui n'est sensible qu'à l'amplitude  $\rho$  (partie réelle de la variation de réflectivité). Le signal acoustique observé sur les nanopoutres d'or est donc détecté via un autre phénomène physique que la réflectométrie pure. Le moyen expérimental d'être sensible à la phase et donc au déplacement de surface est de mettre en place un système de détection interférométrique. Un interféromètre de Michelson est donc placé sur le chemin du faisceau de sonde réfléchi par l'échantillon (voir la description du montage expérimental dans la partie II.1). Le signal de réflectivité obtenu dans cette configuration est tracé en bleu sur la Figure 3.16a. Ce signal a été enregistré avec les mêmes intensités lumineuses de pompe et de sonde et avec les mêmes paramètres d'enregistrement que le signal de réflectométrie en vert sur la Figure 3.8a. Dans ce cas, la composante haute fréquence à  $16,0 \pm 0,5$  GHz est nettement distinguable bien qu'elle soit fortement atténuée.

On peut en conclure que la détection des modes acoustiques des nanopoutres d'or est partiellement une détection interférométrique où la lumière réfléchi par le silicium sous la nanopoutre agit comme bras de référence. Ce type de détection des vibrations de nano-objets en or par un interféromètre à chemin commun intrinsèque a déjà été décrit dans le cas de nanosphères déposées sur de la silice[85]. Cette détection interférométrique est d'autant plus efficace que le déplacement de surface du mode acoustique est dans l'axe de l'interféromètre comme c'est le cas pour le mode de dilatation de l'épaisseur de la couche d'or  $d_2$  (dont le champ de déplacement est représenté sur la Figure 3.16b). Finalement, à la fois l'analyse de la fréquence et du mode de détection du signal

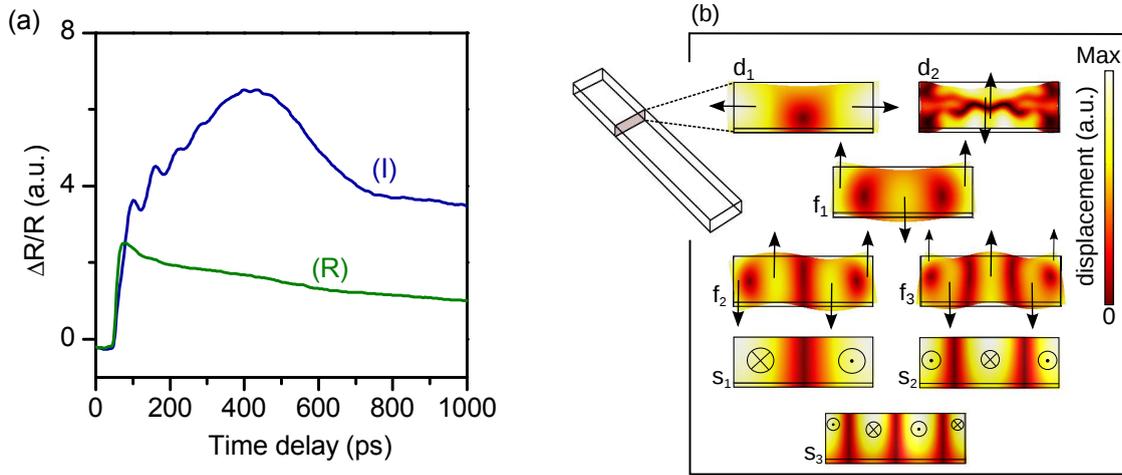


FIGURE 3.16: (a) Signal temporel de modulation de la réflectivité du faisceau sonde sur la mesa en réflectométrie (en vert - R) et en interférométrie (en bleu - I). Les deux signaux ont été enregistrés avec les mêmes intensités lumineuses de pompe et de sonde et avec les mêmes paramètres d'enregistrement. (b) Représentation en coupe du déplacement de trois modes acoustique de flexion ( $f_1$ ,  $f_2$  et  $f_3$ ), deux modes de dilatation ( $d_1$  et  $d_2$ ) et trois de cisaillement ( $s_1$ ,  $s_2$  et  $s_3$ ). Les flèches noires indiquent la direction du déplacement.

acoustique haute fréquence observé sur les nanopoutres d'or et sur la mesa confirment qu'il s'agit du mode de dilatation de la couche d'or  $d_2$ .

### III.4.2.2 Mode basse fréquence

Afin d'identifier quel est le mode acoustique détecté autour de  $\sim 3$  GHz, nous réalisons numériquement l'étude des modes propres de la nanopoutre par des simulations d'éléments finis. De façon similaire au cas du cylindre infiniment long traité précédemment, il est possible d'envisager une résolution semi-analytique de l'équation de Navier pour déterminer les relations de dispersion des différents modes acoustiques des nanopoutres d'or. Cependant, comme la symétrie de révolution est brisée, il n'est plus possible de trouver des solutions à variables séparées utilisant des fonctions de Bessel pour base comme dans la partie I.4. Il a parfois été proposé de recourir à une base de fonctions puissance ou des produits de polynômes de Legendre dans les deux directions de la section transversale de la poutre[171]. Ici, nous avons utilisé une simulation par éléments finis décrite en annexe A pour obtenir les courbes de dispersion d'une nanopoutre de 370 nm de large. Le nombre de solutions n'est pas limité mais nous décidons de nous concentrer sur les modes de plus haute symétrie qui sont les modes qui ont le plus de chance à la fois d'être excités et détectés (voir discussion chapitre 1). Les courbes de dispersion de ces différents modes sont reproduites en Figure 3.17a, les champs de déplacement correspondants sont représentés sur la Figure 3.16. Les trois courbes de dispersion de plus basse fréquence sont soit des modes de déplacement de la poutre en bloc selon les trois axes (modes représentés en gris foncé), soit un mode de torsion (en gris clair). Ces quatre modes possèdent une fréquence de coupure nulle. Notons que le mode dont la courbe de dispersion

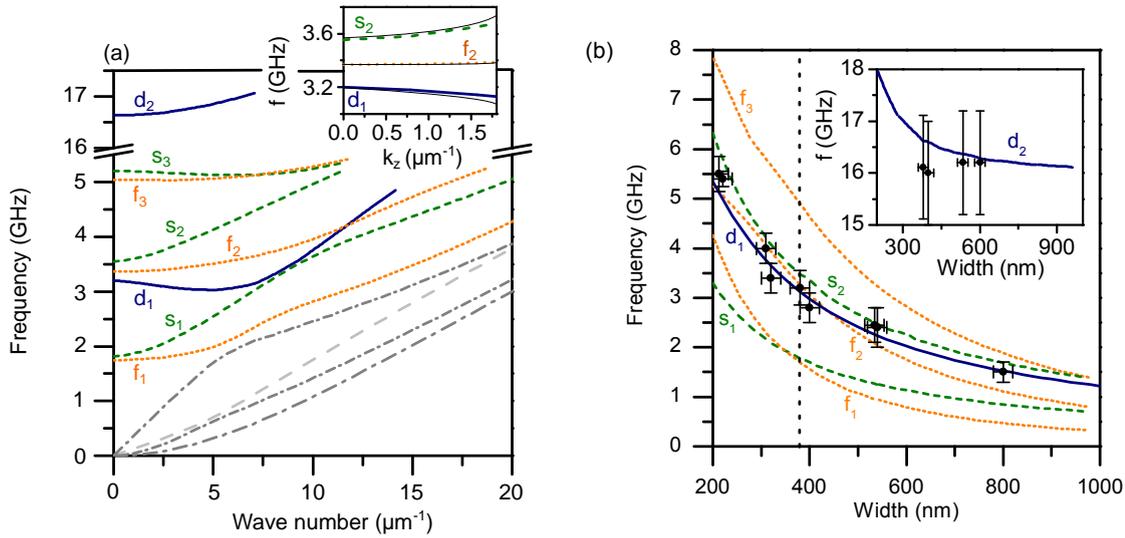


FIGURE 3.17: (a) Relations de dispersion des modes acoustiques d'une nanopoutre d'or de 370 nm de large et de 110 nm d'épaisseur (à laquelle s'ajoute une couche de 10 nm de chrome).  $f_i$ ,  $s_i$  et  $d_i$  font respectivement référence aux modes de flexion, de cisaillement et de dilatation. L'insert montre l'ajustement parabolique réalisé sur trois modes spécifiques à faibles nombres d'ondes pour évaluer la propagation du paquet d'onde correspondant. Cet ajustement vaut respectivement  $f_{d_1}(k) = -2,3 \times 10^{-2} k^2 + 3,2$  GHz,  $f_{s_2}(k) = 5,7 \times 10^{-3} k^2 + 3,5$  GHz et  $f_{f_2}(k) = 3,9 \times 10^{-2} k^2 + 3,3$  GHz pour les modes  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$ . Le nombre d'onde  $k$  est en  $\mu\text{m}^{-1}$ . (b) Simulations par éléments finis de la fréquence des modes acoustiques à nombre d'onde  $k = 0$  en fonction de l'épaisseur des nanopoutres. Les modes flexuraux, de cisaillement et de dilatation sont tracés respectivement en lignes orange pointillées, vertes pointillées et en bleu. Les cercles noirs sont les points expérimentaux. Les barres d'erreur en fréquence  $\Delta f$  sont estimées d'après le facteur de qualité des oscillations :  $\Delta f = f/Q$  (voir par exemple la Figure 3.15). Les barres d'erreur sur la taille correspondent à une estimation au MEB. La ligne verticale noire pointillée à 370 nm correspond à la largeur spécifique utilisée pour calculer les relations de dispersion Figure 3.17a et pour laquelle la propagation a été observée (Figure 3.25).

est linéaire en dessous de  $5 \mu\text{m}^{-1}$  est un mode similaire au mode L(0,0) dont nous avons pu observer la propagation dans le nanofil de cuivre précédemment. Les modes restants, dont la fréquence de coupure est inférieure à 6 GHz à l'exception du mode  $d_2$  étudié dans la sous-partie III.4.2.1, sont classés en trois catégories en fonction de la symétrie du champ de déplacement. Pour les modes  $f_1$ ,  $f_2$  et  $f_3$ , le champ de déplacement est purement orthogonal au grand axe de la nanopoutre et dirigé principalement selon l'épaisseur du nano-objet. Ces modes  $f_1$ ,  $f_2$  et  $f_3$  possèdent respectivement deux, trois et quatre nœuds de vibration. Ce sont des modes de flexion. En ce qui concerne les modes  $s_1$ ,  $s_2$  et  $s_3$ , le champ de déplacement est colinéaire au grand axe de la nanopoutre. Ces modes  $s_1$ ,  $s_2$  et  $s_3$  possèdent respectivement un, deux et trois nœuds de vibration. Ce sont des modes de cisaillement. La dernière famille de mode regroupe les modes  $d_1$  et  $d_2$ . Le premier de ces deux modes est une dilatation de la poutre selon sa largeur quand le second est une dilatation de la poutre selon son épaisseur. Étant donnée l'atténuation rapide du mode de vibration observé sur la Figure 3.15a, l'incertitude sur le mode détecté à  $\sim 3$  GHz est de l'ordre de 0,5 GHz. Ainsi, il n'est pas possible

d'attribuer sans ambiguïté cette vibration au mode  $d_1$ ,  $f_2$  ou  $s_3$ .

Afin de lever cette ambiguïté, plusieurs solutions existent. On peut d'abord avancer qu'il s'agit probablement d'un mode de dilatation puisqu'un autre mode de dilatation a été identifié et qu'à technique de génération et de détection identique, il est probable que des modes possédant des symétries similaires soient excités en même temps. Par ailleurs, en utilisant des hypothèses raisonnables sur la perturbation initiale produite par le laser de pompe puis en projetant cette condition initiale sur les différents modes acoustique, il est possible d'estimer l'excitation relative des différents modes [49, 99] ce qui donne un indice supplémentaire pour conclure sur le mode effectivement observé expérimentalement (voir le Chapitre II.3.1). Ensuite on peut supposer qu'à épaisseur constante, la variation de la fréquence de vibration avec la largeur de la nanopoutre va dépendre du mode acoustique. Des simulations par éléments finis similaires à celles conduisant à la Figure 3.17a permettent d'obtenir les fréquences de coupure des différents modes de la Figure 3.17a en fonction de la largeur de la nanopoutre à épaisseur d'or et de chrome constante (toujours 10 nm de chrome et 110 nm d'or). Les résultats de ces simulations sont présentés dans la Figure 3.17b. La fréquence de l'ensemble de ces modes décroît avec la largeur de la poutre avec des lois de puissance qui dépendent de la famille de mode. La fréquence des modes de flexion décroît plus vite que celle des modes de cisaillement qui décroît elle-même légèrement plus vite que celle des modes de dilatation. Les fréquences de coupure des modes de flexion suivent une loi de puissance comprise entre  $w^{-1.6}$  et  $w^{-1.3}$ , celles des modes de cisaillement une loi de puissance quasiment hyperbolique  $w^{-0.95}$  à  $w^{-0.98}$ . Le mode de dilatation  $d_1$  décroît plus lentement en  $w^{-0.90}$ . Contrairement à ces cinq modes, la fréquence du mode de dilatation  $d_2$  suit plutôt une loi exponentielle décroissante avec une asymptote horizontale qui vaut 16,1 GHz. Ce mode de vibration de l'épaisseur est très dépendant de la largeur de la poutre aux petites largeurs (lorsque la largeur et l'épaisseur sont du même ordre de grandeur) mais tend vers un mode de plaque qui ne dépend plus de la largeur pour les grandes dimensions.

Rappelons qu'on cherche à identifier quel mode est observé expérimentalement autour de 3 GHz dans les expériences pompe-sonde superposées spatialement en réflectométrie (Figure 3.15) pour des poutres d'une largeur de 400 nm et de 120 nm d'épaisseur (10 nm de chrome et 110 nm d'or). On décide donc de réaliser une étude expérimentale de cette fréquence en fonction de la largeur du nano-objet. Plusieurs échantillons de 200 nm à 800 nm de largeur sont réalisés et les fréquences observées ainsi que les largeurs mesurées au microscope électronique sont placées sur la Figure 3.17b avec des ronds noirs et les barres d'erreurs correspondantes. Comme les fréquences de coupure des modes  $f_2$ ,  $d_1$  et  $s_2$  ne suivent pas la même loi de puissance en fonction de la largeur de la poutre, l'écart fréquentiel entre ces différents modes varie en fonction de la largeur. Pour des largeurs autour de 400 nm, les simulations par éléments finis montrent que l'écart en fréquence entre ces différents modes est minimal et bien inférieur à l'incertitude de mesure de la fréquence de l'ordre de 0,5 à 1 GHz en fonction du facteur de qualité des oscillations du nano-résonateur. Mais pour de grandes largeurs cet écart en fréquence augmente et la fréquence simulée du deuxième mode de flexion se retrouve exclus de la zone d'incertitude. De la même façon, pour de plus petites nanopoutres, de 200 à 250 nm

de largeur, la fréquence simulée du deuxième mode de cisaillement se retrouve en dehors de la zone d'incertitude. Seul le premier mode de dilatation se trouve dans la zone d'incertitude pour tous les points expérimentaux. Cette méthode semble donc permettre une identification sans ambiguïté du mode de vibration excité dans le nano-objet. Néanmoins, elle est hasardeuse et fortement dépendante de l'estimation des incertitudes. De plus, cette méthode est très longue à mettre en place puisqu'elle nécessite la réalisation de nombreux échantillons de tailles différentes ce qui peut parfois s'avérer rédhibitoire. On cherche donc une technique d'identification du mode acoustique observé qui nécessite l'étude d'un seul objet. Bien que les fréquences de coupure des modes acoustiques des nanopoutres d'or soient proches, leurs relations de dispersion sont très différentes les unes des autres, ce qui doit avoir une répercussion importante sur leur propagation.

### III.4.3 Propagation contrapropageante dans les nanopoutres d'or

C'est l'étude de la propagation qui va mettre en évidence les différences observées entre les relations de dispersion. En première approximation, le même cadre théorique que la propagation des ondes acoustiques dans des cylindres infiniment long est utilisé. Ce modèle quasi-unidimensionnel s'affranchit de la section de l'objet considéré et permet des calculs approchés rapides et riches de sens. Au point de vue expérimental, les faisceaux de pompe et de sonde doivent être séparés spatialement afin de rendre l'observation de phénomènes de propagation possibles. Dans le cadre du modèle unidimensionnel simple, la réflectivité relative de la sonde mesurée au cours du temps  $t$  à une distance  $z = z_0$  de la pompe est

$$\left(\frac{\Delta r(t)}{r}\right)_{z=z_0} \propto \int_{-\infty}^{\infty} \eta(z,t) s_{z_0}(z) dz \quad (3.18)$$

$$\propto \frac{1}{\sqrt{\nu^2 + \sigma^2 + 32i\alpha t}} \exp(-i\omega_0 t) \exp\left(-\frac{8(z_0 - \beta t)^2}{\nu^2 + \sigma^2 + 32i\alpha t}\right) \quad (3.19)$$

où  $\nu$  et  $\sigma$  sont respectivement les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde,  $\alpha$  la courbure de la relation de dispersion,  $\beta$  la pente initiale de la relation de dispersion,  $\omega_0$  la fréquence de coupure de la relation de dispersion. Notre technique de génération des ondes acoustiques impose que le paquet d'onde est centré sur un vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$ . Afin de générer des paquets d'ondes centrés sur des vecteurs d'ondes non nuls, il faut recourir à des techniques de synthèse de fronts d'ondes optiques comme l'ISTS (*Impulsive Stimulated Thermal Scattering*)[193, 68, 194, 151], utiliser des super-réseaux[181, 43, 158, 12, 164] ou des techniques de structuration de surfaces[84, 201, 131]. Dans ce cas, l'équation 3.19 devient

$$\left(\frac{\Delta r(t)}{r}\right)_{z=z_0} \propto \int_{-\infty}^{\infty} \eta(z,t) s_{z_0}(z) dz \quad (3.20)$$

$$\propto \frac{1}{\sqrt{\nu^2 + \sigma^2 + 32i\alpha t}} \exp(i(k_0 z_0 - \omega_0 t)) \exp\left(-\frac{8(z_0 - \beta t)^2}{\nu^2 + \sigma^2 + 32i\alpha t}\right) \quad (3.21)$$

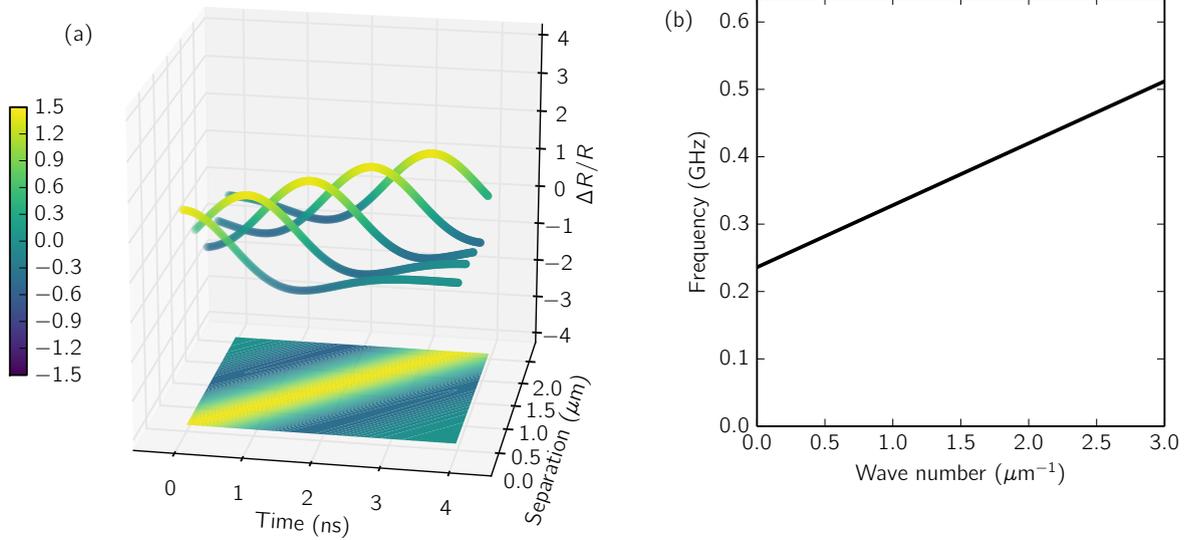


FIGURE 3.18: (a) Propagation d'une onde acoustique dont la relation de dispersion est linéaire  $\omega(k) = 0,58k + 1,48 \text{ rad ns}^{-1}$  (avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ ) avec une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 2,7 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . Cinq courbes de réflectivité pour différentes séparations entre la pompe et la sonde sont représentées. On peut également représenter cette propagation pour toutes les séparations spatiales possibles à l'aide d'une « carte de chaleur ». Cette « carte de chaleur » est ici représentée sous les cinq courbes. Dans la suite, le choix a été fait de ne conserver que les « cartes de chaleur ». (b) Relation de dispersion linéaire correspondante :  $f(k) = 0,092k + 0,236 \text{ GHz}$  (avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ )

où  $k_0$  est le vecteur d'onde non nul imposé par le réseau d'interférences optiques ou le super-réseau. Les vecteurs d'ondes accessibles par les techniques d'interférences optiques sont limités par la limite de diffraction de la lumière et ne peuvent excéder quelques  $\mu\text{m}^{-1}$ [193]. Seuls les super-réseaux[104] ou des techniques de structuration de surfaces[84] permettent d'explorer des longueurs d'onde nanométriques et donc des vecteurs d'ondes de plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}^{-1}$ . Afin de mieux appréhender la propagation des paquets d'ondes acoustiques, nous décrivons la propagation d'ondes acoustiques pour des relations de dispersion hypothétiques (Figure 3.18) pour lesquelles nous modifions un à un les paramètres principaux de l'équation 3.19 :  $k_0$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $f_0 = \omega_0/2\pi$ . Afin d'introduire la représentation spatio-temporelle de cette propagation, nous choisissons un exemple simple d'une relation de dispersion linéaire (Figure 3.18). La relation de dispersion est  $\omega(k) = 0,58k + 1,48 \text{ rad ns}^{-1}$  (avec  $k$

en  $\mu\text{m}^{-1}$ ) avec une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 2,7 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$  et conservent ces valeurs pour la suite. Cinq courbes de réflectivité pour différentes séparations entre la pompe et la sonde sont représentées. La déformation maximale qui correspond au paquet d'onde du mode acoustique arrive de plus en plus tard lorsque la séparation spatiale entre la pompe et la sonde augmente. Ce paquet se déplace environ à la vitesse de  $0,58 \mu\text{m ns}^{-1}$  en adéquation avec la vitesse de groupe  $\frac{d\omega}{dk}$ . On peut également représenter cette propagation pour toutes les séparations spatiales possibles à l'aide d'une « carte de chaleur ». Cette « carte de chaleur » est ici représentée sous les cinq courbes. Dans la suite, le choix a été fait de ne conserver que les « cartes de chaleur ».

### III.4.3.1 Effet du vecteur d'onde central

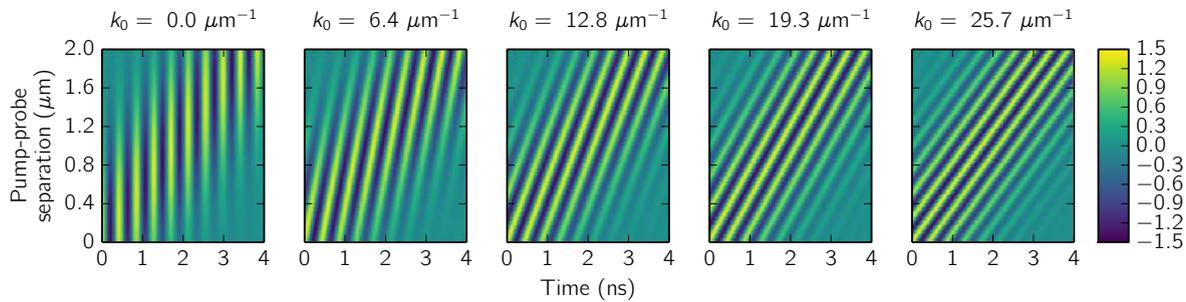


FIGURE 3.19: Cartes de chaleur représentant la propagation d'un paquet d'onde gaussien avec la relation de dispersion linéaire  $\omega(k) = 0.578k + \omega_0$  (avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$  et  $\omega_0 = 14,84 \text{ rad ns}^{-1}$ ) avec une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0$  qui varie entre  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$  et  $k_0 = 25,7 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$ .

Considérons la relation de dispersion linéaire  $\omega(k) = \beta k + \omega_0 = 0.578k + 14,8 \text{ rad ns}^{-1}$  (avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ ) avec une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0$  qui varie entre  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$  et  $k_0 = 25,7 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . Les cartes de chaleur sont représentées sur la figure 3.19. La modulation temporelle à séparation constante correspond à la période temporelle  $T = 2\pi/\omega(k=0) = 0,42 \text{ ns}$ . On observe donc un peu plus de 9 périodes complètes sur la durée d'observation de 4 ns. De la même façon, la modulation spatiale à temps constant correspond à la longueur d'onde  $\lambda = 2\pi/k = 0$  et varie donc de  $\lambda = +\infty$  pour  $k_0 = 0$  à  $\lambda = 0,24 \mu\text{m}$  pour  $k_0 = 25,7 \mu\text{m}^{-1}$ . On observe ainsi entre 0 et un peu plus de 8 périodes spatiales complètes pour des séparations spatiales entre la pompe et la sonde qui atteignent jusqu'à  $2 \mu\text{m}$ . La vitesse de groupe est indépendante de  $k_0$  et vaut  $\frac{d\omega}{dk} = \beta = 0,578 \mu\text{m ns}^{-1}$ . En effet, pour les 5 valeurs de  $k_0$ , le maximum d'amplitude du paquet d'onde parcourt de l'ordre de  $2 \mu\text{m}$  en 4 ns. Au contraire, la vitesse de phase du paquet d'onde généré dépend fortement de  $k_0$ . La vitesse de phase et de groupe du paquet d'onde sont égales pour  $\frac{\omega_0}{k_0} = \frac{d\omega}{dk} = \beta = 0,578 \mu\text{m ns}^{-1}$ , soit pour  $k_0 = 25,7 \mu\text{m}^{-1}$ .

### III.4.3.2 Effet de la courbure de la relation de dispersion

À présent, on étudie la relation de dispersion quadratique  $\omega(k) = \alpha k^2 + \omega_0$  pour une courbure variant entre  $\alpha = -0,43 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$  et  $\alpha = 0,43 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$  avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ . L'excitation est centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$  et les cartes de chaleur sont représentées sur la figure 3.20. Pour la courbure nulle, l'équation 3.21 se réduit à  $\Delta r(t)/r \propto \exp(-i\omega_0 t) \exp(-8z_0^2/(\nu^2 + \sigma^2))$  : il n'y a pas de propagation, l'amplitude du paquet d'onde diminue simplement avec un profil gaussien lorsque la séparation entre l'excitation et la détection  $z_0$  augmente. Pour les valeurs positives de la courbure, le maximum d'amplitude du paquet d'onde se déplace progressivement et très lentement vers des temps plus longs au fur et à mesure que la séparation entre la pompe et la sonde augmentent. C'est le signe d'une vitesse de groupe positive. De la même façon le déphasage entre les oscillations temporelles à séparation nulle et à séparation  $z_0 = 2 \mu\text{m}$  est positif ce qui signifie que la vitesse de phase est positive. À contrario, pour des valeurs négatives de la courbure de la relation de dispersion le déphasage entre les oscillations temporelles à séparation nulle et à séparation  $z_0 = 2 \mu\text{m}$  est négatif ce qui signifie que la vitesse de phase est négative. Le maximum d'amplitude du paquet d'onde se déplace toujours vers les temps longs lorsque la séparation augmente donc la vitesse de groupe reste positive. Les deux vitesses de l'onde ont donc des sens opposés, ce qui est caractéristique de propagation contrapropageante. Notons que la vitesse de groupe observée semble toujours positive quelle que soit la situation. Pour le comprendre, il faut se rappeler que le système physique est unidimensionnel et symétrique par rapport au point d'excitation. Lorsqu'un paquet d'onde est généré vers la droite, un second paquet d'onde est généré vers la gauche et vice-versa. On observe toujours l'éloignement du paquet d'onde du point d'excitation. C'est donc seulement le sens relatif de propagation du paquet d'onde et de la phase que nous observons.

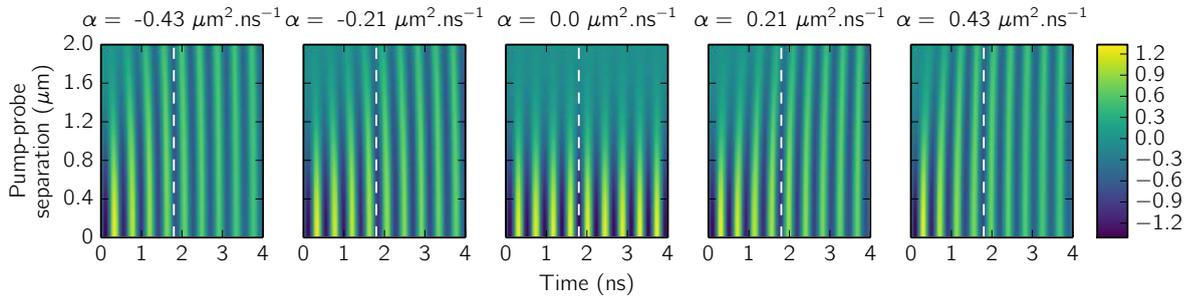


FIGURE 3.20: Cartes de chaleur représentant la propagation d'un paquet d'onde gaussien avec la relation de dispersion quadratique  $\omega(k) = \alpha k^2 + \omega_0$ , avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ ,  $\omega_0 = 14,84 \text{rad ns}^{-1}$  et une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . La courbure  $\alpha$  varie entre  $\alpha = -0,43 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$  et  $\alpha = 0,43 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$ . La ligne blanche pointillée est un guide pour les yeux comme l'effet de la propagation est faible.

### III.4.3.3 Effet de la pente de la relation de dispersion

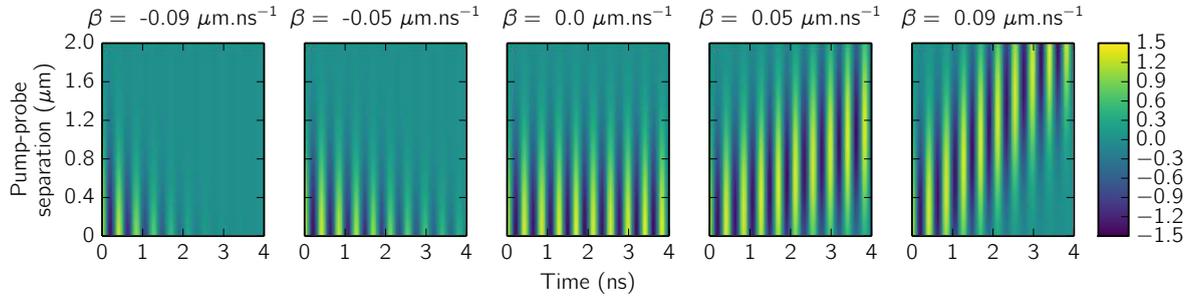


FIGURE 3.21: Cartes de chaleur représentant la propagation d'un paquet d'onde gaussien avec la relation de dispersion linéaire  $\omega(k) = \beta k + \omega_0$ , avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ ,  $\omega_0 = 14,84 \text{ rad ns}^{-1}$  et une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . La pente  $\beta$  varie entre  $\beta = -0,58 \mu\text{m ns}^{-1}$  et  $\beta = 0,58 \mu\text{m ns}^{-1}$ .

Par la suite, on étudie à nouveau une relation de dispersion linéaire  $\omega(k) = \beta k + \omega_0$ , avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$  et  $\omega_0 = 14,84 \text{ rad ns}^{-1}$ . Contrairement à la figure 3.19, l'excitation est centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$  sur toutes les cartes de chaleur de la figure 3.21. C'est le paramètre linéaire  $\beta$  qui varie de  $\beta = -0,58 \mu\text{m ns}^{-1}$  et  $\beta = 0,58 \mu\text{m ns}^{-1}$  avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ . Pour la pente nulle, l'équation 3.21 se réduit à  $\Delta r(t)/r \propto \exp(-i\omega_0 t) \exp(-8z_0^2 / (\nu^2 + \sigma^2))$  de la même façon que le cas de la courbure nulle sur la figure 3.20 et il n'y a donc pas de propagation. Pour les valeurs positives de la pente, le maximum d'amplitude du paquet d'onde se déplace progressivement et linéairement vers des temps plus longs au fur et à mesure que la séparation entre la pompe et la sonde augmentent. C'est le signe d'une vitesse de groupe positive qui vaut  $\beta$ . Ici, il n'y a pas de déphasage entre les oscillations temporelles à séparation nulle et à séparation  $z_0 = 2 \mu\text{m}$  ce qui signifie que la vitesse de phase est nulle. À contrario, pour des valeurs négatives de la pente de la maximum d'amplitude du paquet d'onde se déplace vers les temps négatifs lorsque la séparation augmente donc la vitesse de groupe est négative.

### III.4.3.4 Effet de la fréquence de coupure de la relation de dispersion

Enfin, le dernier paramètre qui peut varier lors de l'étude de la propagation des ondes acoustiques dans un guide d'onde unidimensionnel est la fréquence  $f_0 = \omega_0/2\pi$  qui est le paramètre le plus simple à appréhender. La Figure 3.22 représente simplement des cartes de chaleur de la propagation d'un paquet d'onde gaussien dont la relation de dispersion est quadratique :  $\omega(k) = \alpha k^2 + \omega_0$ , avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ ,  $\alpha = -0,21 \mu\text{m}^2 \text{ ns}^{-1}$  et une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$ . Dans ce cas, c'est la modulation temporelle à séparation constante qui varie de  $f_0 = 0 \text{ GHz}$  et  $f_0 = 4,0 \text{ GHz}$ . Les autres caractéristiques de la propagation de l'onde ne sont pas modifiées : la vitesse de groupe est toujours positive et la vitesse de phase négative.

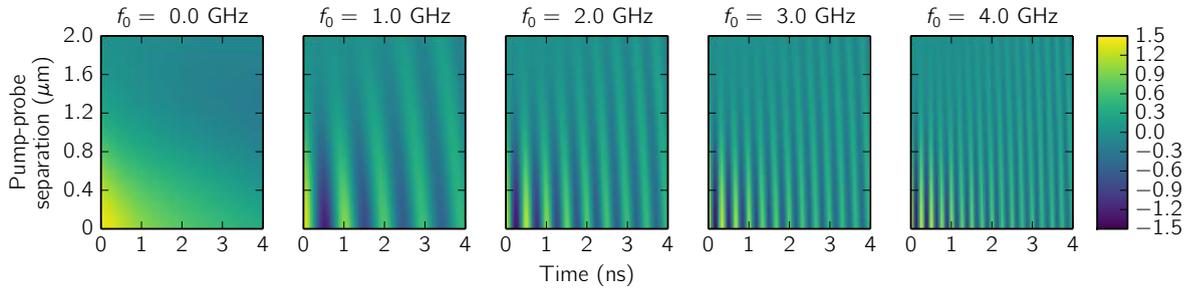


FIGURE 3.22: Cartes de chaleur représentant la propagation d'un paquet d'onde gaussien avec la relation de dispersion quadratique  $\omega(k) = \alpha k^2 + \omega_0$ , avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ ,  $\alpha = -0,21 \mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$  et une excitation centrée sur le vecteur d'onde  $k_0 = 0 \mu\text{m}^{-1}$ . Les diamètres à  $1/e^2$  de la pompe et de la sonde sont  $\nu = \sigma = 0,5 \mu\text{m}$ . La fréquence  $f_0 = \omega_0/2\pi$  varie entre  $f_0 = 0 \text{ GHz}$  et  $f_0 = 4,0 \text{ GHz}$ .

Toutes les relations de dispersion hypothétiques discutées ici utilisent des paramètres dont les ordres de grandeur sont les mêmes que les relations de dispersion calculées pour nos nanopoutres d'or (Figure 3.17). La discussion menée ici a permis de mettre en évidence que la propagation des paquets d'onde acoustiques dépend fortement, entre autres, des signes des pentes et des courbures des relations de dispersion. Si de faibles variations relatives des paramètres d'une relation de dispersion induisent de faibles variations dans la façon de se propager du paquet d'onde, on espère que des relations de dispersion qui ont des fréquences de coupure similaires mais des pentes ou des courbures de signes différents exhibent des comportements de propagation suffisamment différents pour être mis en évidence. L'identification des modes acoustiques excités et détectés ne dépend alors plus de la finesse spectrale sur la détermination de la fréquence propre du mode mais sur la façon dont le mode se propage. À titre d'illustration on étudie les modes  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$  de notre nanopoutre d'or.

### III.4.4 Application à l'identification sans ambiguïté des modes

Commençons par réaliser un ajustement des relations de dispersion des modes  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$  par une parabole (Figure 3.24a). On obtient à petit nombre d'onde  $f_{d_1}(k) = -2,3 \times 10^{-2} k^2 + 3,2 \text{ GHz}$ ,  $f_{s_2}(k) = 5,7 \times 10^{-3} k^2 + 3,55 \text{ GHz}$  et  $f_{f_2}(k) = 3,9 \times 10^{-2} k^2 + 3,3 \text{ GHz}$ . Le nombre d'onde  $k$  est en  $\mu\text{m}^{-1}$  (Tableau 3.23). De la même façon que précédemment pour les relations de dispersion hypothétiques, on peut simuler la propagation des modes caractérisés par ces relations de dispersion (Figure 3.24). Le mode  $d_1$  présente essentiellement une courbure négative donc la propagation de ce mode est similaire à la propagation représentée en figure 3.20(gauche) : le maximum d'intensité du paquet d'onde arrive de plus en plus tard au fur et à mesure que l'écart entre l'excitation et la détection augmente, par ailleurs les fronts d'ondes arrivent de plus en plus tôt au fur et à mesure que l'écart entre l'excitation et la détection augmente. Il s'agit ici d'une propagation contrapropageante entre le maximum d'intensité du paquet d'onde et les fronts d'onde. En ce qui concerne le mode  $s_2$ , la

mode	$\frac{\alpha}{2\pi}$ ( $\mu\text{m}^2 \text{ns}^{-1}$ )	$\alpha$ ( $\mu\text{m}^2 \text{rad ns}^{-1}$ )	$f_0$ (GHz)
$d_1$	$-2,3 \times 10^{-2}$	-0.14	3.2
$f_2$	$5,7 \times 10^{-3}$	$-3,6 \times 10^{-2}$	3.3
$s_2$	$3,9 \times 10^{-2}$	-0,25	3.55

FIGURE 3.23: Ajustement par une parabole des relations de dispersion des modes acoustiques  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$  dans une nanopoutre d'or de 370 nm de large. Les relations de dispersion sont de la forme  $f(k) = \frac{\alpha}{2\pi} k^2 + f_0$  GHz avec  $k$  en  $\mu\text{m}^{-1}$ .

situation en ce qui concerne la courbure est inversée. Les fronts d'onde et le maximum du paquet d'onde se propagent dans le même sens. Enfin, le mode  $f_2$  possède une relation de dispersion très plate, il se propage peu pour les séparations pompe-sonde envisagées. La courbure est légèrement positive donc la propagation ressemble plutôt à celle du mode  $s_2$ .

À présent, observons les signaux de réflectivité expérimentaux pour huit séparations pompe-sonde différentes entre 0 et 2,1  $\mu\text{m}$  en Figure 3.25a. Le fond thermique a été retiré en ajustant une exponentielle décroissante aux courbes expérimentales. De plus, afin de s'affranchir au mieux de l'atténuation, chaque courbe de réflectivité a été renormalisée par son maximum. L'amplitude maximale des oscillations est divisée par 15 entre la courbe de réflectivité obtenue lorsque la pompe et la sonde sont superposées spatialement et la courbe de réflectivité obtenue lorsque la pompe et la sonde sont séparées de 2,1  $\mu\text{m}$ . On observe des variations de réflectivité relative de l'ordre de  $\Delta R/R \simeq 4 \times 10^{-4}$  pour la courbe de réflectivité obtenue à séparation nulle. Ces variations relatives sont de l'ordre de  $\Delta R/R \simeq 3 \times 10^{-5}$  pour la courbe obtenue à 2,1  $\mu\text{m}$ . Aucun filtrage fréquentiel n'a été réalisé sur ces signaux. La fenêtre temporelle est de seulement 3 ns afin de permettre un temps d'acquisition raisonnable. C'est également un ordre de grandeur de la durée de vie des oscillations cohérentes observées. Augmenter largement la fenêtre temporelle n'améliorerait donc pas la résolution spectrale. Notre résolution spectrale est donc limitée à 300 MHz. Les huit courbes présentées ici ont nécessité 4h30 d'acquisition à raison d'une trentaine de minutes par courbe en moyenne (seulement une dizaine de minutes pour la première courbe, près d'une heure pour les dernières). Afin de minimiser le bruit mécanique, la ligne à retard est déplacée à 1 mm s<sup>-1</sup>. On rappelle ici qu'un déplacement d'1 mm de la ligne à retard correspond à un retard entre la pompe et la sonde de 20 ps. On prend un point toutes les 7 ps avec une constante d'intégration de 350 ms ce qui donne une bande passante théorique d'environ 25 GHz. En une trentaine de minutes on peut réaliser 6 allers-retours. Chaque point temporel est donc une moyenne sur 4,2 s ce qui, compte tenu d'un taux de répétition du laser de 79,3 MHz, correspond à plus de  $3 \times 10^8$  expériences individuelles. La puissance moyenne du laser

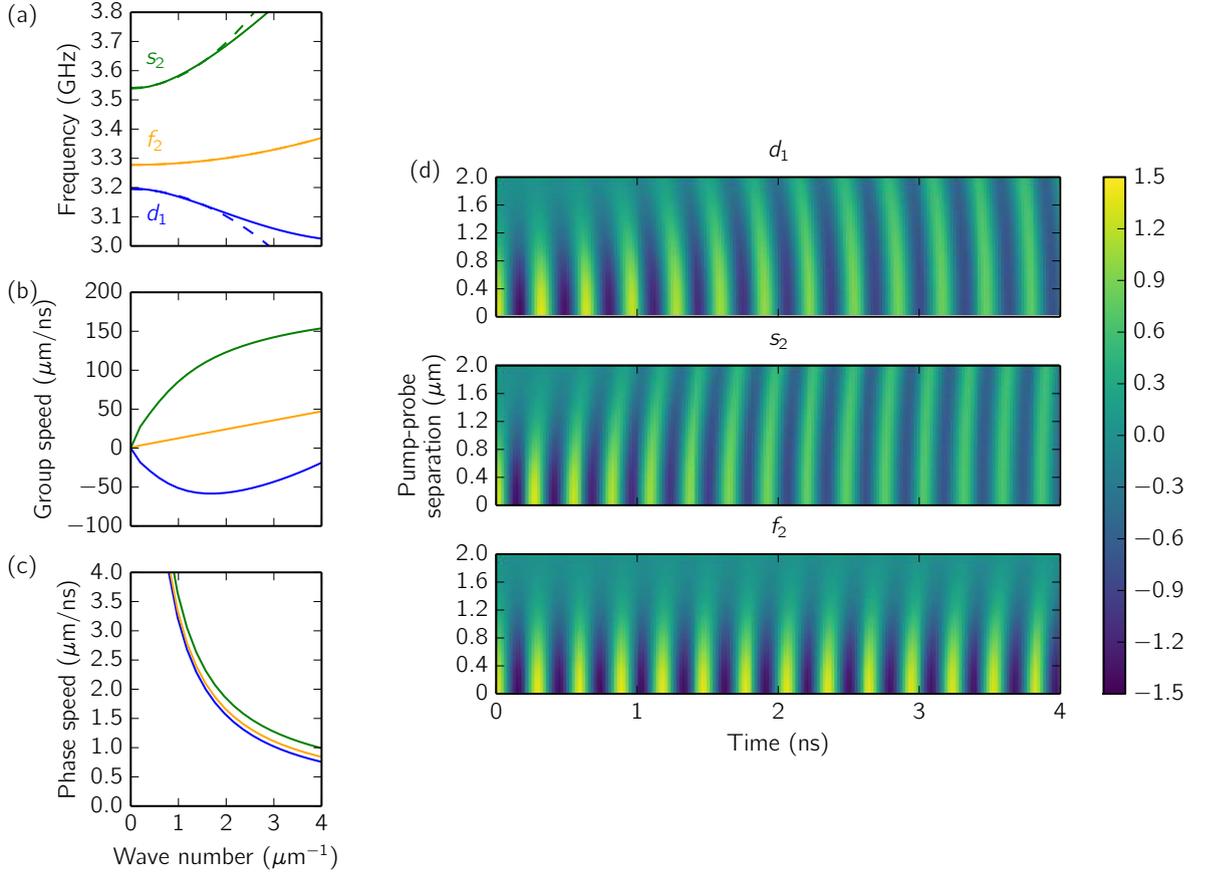


FIGURE 3.24: (a) Reproduction de l'insert de la figure 3.17. Relations de dispersion des modes  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$  à petits nombres d'onde et ajustement par une parabole. Les paramètres des ajustements sont donnés dans le Tableau 3.23. (b) Vitesses de groupe  $\frac{d\omega}{dk}$  et (c) vitesses de phase  $\omega(k)/k$  pour les trois modes  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$ . (d) Cartes de chaleur de la propagation des modes  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$  en utilisant les ajustements du Tableau 3.23 et l'équation 3.17.

de pompe est de  $700 \mu\text{W}$ , celle du laser de sonde de  $70 \mu\text{W}$ . Avec une durée du pulse inférieure à  $100 \text{ fs}$  et une fréquence de répétition de  $79,3 \text{ MHz}$ , l'énergie par pulse est de  $0,9 \text{ pJ}$  pour la sonde est  $9 \text{ pJ}$  pour la pompe. Par ailleurs la réflectance de l'or à  $400 \text{ nm}$  et  $800 \text{ nm}$  sont respectivement  $R_{400} = 37,5\%$  et  $R_{800} = 97\%$ <sup>1</sup>. Avec un faisceau gaussien dont le diamètre est de l'ordre de  $0,5 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$  pour la pompe et de  $1 \mu\text{m}$  pour la sonde, l'énergie absorbée par unité de surface est de l'ordre de  $W_s = 0,03 \text{ pJ } \mu\text{m}^{-2}$  pour la sonde et de  $W_p = 28 \text{ pJ } \mu\text{m}^{-2}$  pour la pompe. Elles sont inférieures au seuil d'ablation de l'or qui est de l'ordre de  $\sim 1000 \text{ pJ } \mu\text{m}^{-2}$ [213]. La puissance surfacique est donc de l'ordre de  $P_s = 0,03 \text{ GW cm}^{-2}$  pour la sonde et de  $P_p = 28 \text{ GW cm}^{-2}$  pour la pompe. Ces densités de puissance sont similaires à celles préalablement utilisées par l'équipe en 2011 sur des nanodisques d'or[6]. La stabilité des mesures de réflectivité au cours de l'expérience de plusieurs heures reste le critère principal pour affirmer qu'on ne dégrade pas les nanopoutres d'or avec les lasers.

1. Les indices optiques de l'or à  $400 \text{ nm}$  et  $800 \text{ nm}$  sont respectivement  $n_{400} = 1.5275 - 1.8397i$  et  $n_{800} = 0.18862 - 4.7054i$  [189].

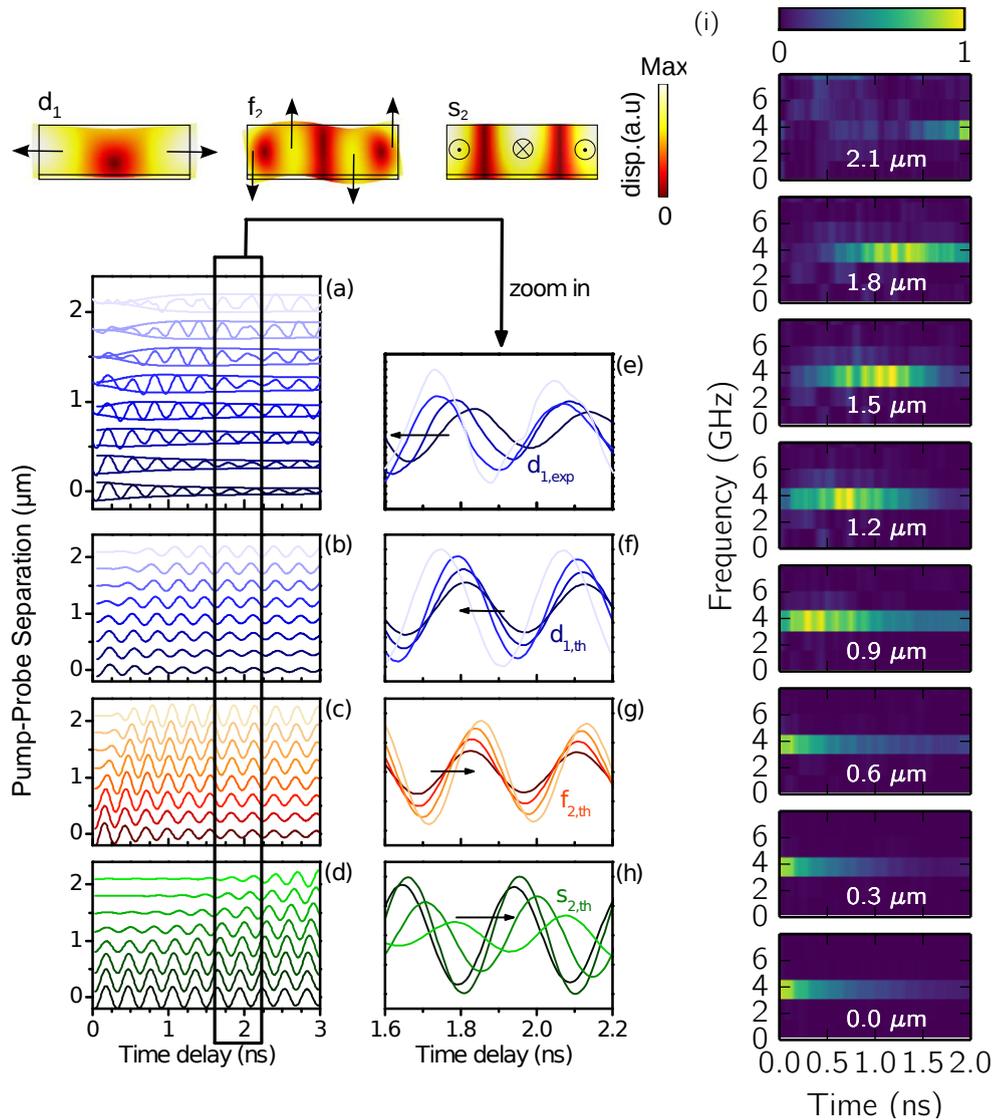


FIGURE 3.25: (a) Signal de réflectivité expérimental obtenu pour différentes séparations spatiales entre la pompe et la sonde. Le fond thermique exponentiellement décroissant a été retiré. Le décalage vertical entre les différentes courbes correspond à la séparation spatiale entre la pompe et la sonde. Chaque signal de réflectivité a été normalisé à son maximum. Les enveloppes des 8 courbes expérimentales en (a) sont simulées grâce à l'équation 3.17 en utilisant l'ajustement par une parabole de la relation de dispersion  $d_1$  (Tableau 3.23). (b), (c) et (d) sont des signaux de réflectivité relative simulés pour les modes  $d_1$ ,  $f_2$  et  $s_2$  en utilisant l'équation 3.17 et l'ajustement par une parabole de la relation de dispersion  $d_1$  (Tableau 3.23). (e), (f), (g), (h) sont respectivement les mêmes signaux qu'en (a), (b), (c), (d) zoomés sur une fenêtre temporelle réduite et sans décalage vertical pour observer la direction de propagation de la phase du paquet d'onde. Seulement la moitié des courbes sont représentées pour la lisibilité. Les flèches noires indiquent la direction de propagation de la phase. (i) Amplitude normalisée de la FFT glissante avec une fenêtre de 670 ns réalisée sur les 8 courbes expérimentales de la figure (a). La distance entre la pompe et la sonde est inscrite en surimpression blanche.

La largeur du pont étudié pour la propagation est de 370 nm. Observons d'abord que les oscillations enregistrées sont monochromatiques avec une fréquence de  $3,4 \pm 0,3$  GHz (Figure 3.25a).

La composante haute fréquence observée sur la figure 3.15 est présente très faiblement dans les premières centaines de picoseconde mais nous ne nous y intéressons pas ici. Nous représentons la transformée de Fourier rapide glissante normalisée entre 0 et 1 sur la figure 3.25i avec une fenêtre temporelle de 670 ns. La résolution fréquentielle est de l'ordre du gigahertz. Cette représentation ne permet pas de préciser la fréquence du mode propre de la nanopoutre mais elle permet de caractériser que l'amplitude de ces oscillations n'est pas constante en fonction de la position temporelle où est réalisée la FFT. En effet, au fur et à mesure que la distance entre l'excitation et la détection augmente (distance inscrite en blanc sur la figure 3.25i), le maximum d'amplitude de la composante à  $3,4 \pm 0,3$  GHz est observé de plus en plus tard. D'abord maximale à la coïncidence temporelle pour la coïncidence spatiale, ce maximum atteint un retard de l'ordre de 1,5 ns pour une séparation de  $2,1 \mu\text{m}$ . Le paquet d'onde gaussien s'éloigne de la zone d'excitation. Cependant, en observant attentivement les fronts d'onde individuels sur une petite fenêtre temporelle (figure 3.25e), il apparaît qu'au fur et à mesure de la propagation (des courbes sombres aux courbes claires), les fronts d'onde reculent vers des temps de retard plus courts (d'environ 150 ps sur  $2,1 \mu\text{m}$ ). Afin d'offrir une comparaison directe entre la propagation théorique d'un paquet d'onde gaussien et les courbes de réflectivité expérimentales, les propagations théoriques des modes  $d_1$  (figure 3.25b),  $f_2$  (figure 3.25c)  $s_2$  (figure 3.25d) sont reproduites sous la figure expérimentale. De plus, l'enveloppe théorique du mode  $d_1$  est superposée aux courbes expérimentales (figure 3.25a). L'enveloppe théorique est en bon accord avec la propagation du paquet d'onde et le déplacement en sens inverse des fronts d'onde est très similaire entre les figures 3.25e (expérimentale) et 3.25f (théorique). Au contraire, les comportements des paquets d'onde simulés en figures 3.25c et 3.25d et des fronts d'onde en figures 3.25g et 3.25h sont très éloignés du comportement expérimental. D'après notre approche analytique simplifiée, le comportement parallèle ou antiparallèle de la propagation du paquet d'onde et des fronts d'onde est fortement dépendant du signe du paramètre de courbure  $\alpha$ . Par ailleurs, malgré sa simplicité, ce modèle semble suffisamment robuste pour décrire la propagation des ondes acoustiques dans des guides d'ondes dont la section s'écarte largement du disque. Dans le cadre de ce modèle du paquet d'onde gaussien unidimensionnel, le premier mode de dilatation  $d_1$  est le seul mode dont la relation de dispersion présente cette courbure négative à faible nombre d'onde (qui sont les seuls nombres d'onde excités étant donnés les diamètres des taches des lasers de pompe et de sonde) dans la gamme de fréquence considérée (fréquences de coupure inférieures à 5 GHz). On affirme donc que le mode dont on observe la propagation est le premier mode de dilatation de la largeur des nanopoutres d'or.

On peut tenter de quantifier l'adéquation entre les courbes de réflectivité expérimentales et simulées. Appelons  $d_{1,exp}(j,i)$  le  $i$ -ième point de la courbe de réflectivité expérimentale obtenue pour une séparation pompe-sonde de  $j \times 0,3 \mu\text{m}$ . On calcule l'erreur commise par rapport à la simulation du mode  $m_{n,th}$ ,  $err$ , par

$$err = \sqrt{\frac{1}{6} \sum_{j=0}^5 w(j) \frac{1}{428} \sum_{i=1}^{428} (d_{1,exp}(j,i) - m_{n,th}(j,i))^2} \quad (3.22)$$

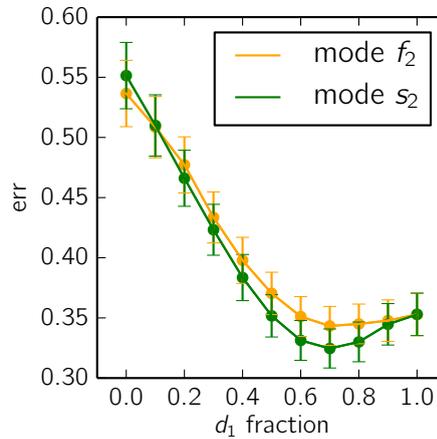


FIGURE 3.26: Erreur calculée selon l'équation 3.22 entre les courbes expérimentales et des courbes simulées contenant une fraction  $p$  du mode  $d_{1,th}$  et une fraction  $1 - p$  du mode  $s_{2,th}$  (en vert) ou  $f_{2,th}$  (en orange). Les barres d'erreur de  $\pm 5\%$  représentent une estimation de l'incertitude liée au bruit des mesures expérimentales.

avec  $w(j) = 1 - j/10$ , un terme de poids qui permet de considérer plus significativement les courbes de réflectivité à faible séparation pompe-sonde qui sont moins bruitées. Notons que cet estimateur ne prend pas en compte les différents mécanismes de détection qui sont défavorables pour le mode  $s_2$  notamment. Cet écart quadratique moyen vaut respectivement 0,35 ; 0,55 et 0,53 pour  $d_1$ ,  $s_2$  et  $f_2$ . On peut encore aller au-delà en calculant cette erreur entre les courbes expérimentales et des courbes simulées qui contiennent une certaine fraction de deux modes différents. On considère ainsi une courbe expérimentale  $m_{n,th}(p) = (1 - p)m_{n,th} + p d_{1,th}$  avec  $p \in [0; 1]$  et  $m_{n,th}$  qui peut être  $s_{2,th}$  ou  $f_{2,th}$  et on trace cette estimation de l'erreur commise en figure 3.26. On modère ainsi le résultat précédent en observant que la présence d'une fraction non négligeable du mode  $s_{2,th}$  ou  $f_{2,th}$  (jusqu'à 30%) n'augmente pas l'erreur commise. Notons que cet estimateur d'erreur varie fortement en fonction de la fonction poids  $w(j)$  choisie et des courbes expérimentales prises en compte (l'expérience présentée en figure 3.25 représente un cas typique qui a été reproduit sur une dizaine de nanopoutres différentes). La tendance générale est cependant la même : l'erreur décroît fortement lorsque la proportion du mode  $d_1$  augmente jusqu'à  $p = 0,6$  puis fluctue autour du minimum jusqu'à  $p = 1$ . Le comportement contrapropageant observé dans le guide d'onde unidimensionnel que représentent les nanopoutres d'or est donc bien caractéristique du mode de dilatation  $d_1$ .

En conclusion, deux modes de dilatation acoustiques – relatifs à l'épaisseur et à la largeur – ont été observés et étudiés par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps sur des nanopoutres d'or fabriquées par lithographie électronique. Une propagation en sens opposé du paquet d'onde et des plans de phase a été observée dans le domaine du gigahertz sur des objets uniques. Une première application de cette observation est la caractérisation sans ambiguïté de mode acoustique grâce à leur relation de dispersion et pas uniquement grâce à leur fréquence de coupure. À l'avenir, on peut envisager de concevoir des nanopoutres dont l'épaisseur et la largeur varient le long de l'axe de

---

propagation afin de contrôler la transmission et la réflexion des modes acoustiques pour concevoir par exemple des lentilles acoustiques dans la gamme du gigahertz. Pour atteindre cet objectif, il semble essentiel de concevoir des nano-objets de grande qualité afin d'observer la propagation sur de plus grandes distances.



# Chapitre 4

## Émission d'ondes acoustiques par des nanofils de cuivre : vers des nano-sources acoustiques

### Sommaire

---

<b>IV.1</b>	<b>Système étudié : nanofils de cuivre sur membranes de silicium .</b>	<b>100</b>
<b>IV.2</b>	<b>Expériences de spectroscopie pompe-sonde . . . . .</b>	<b>102</b>
IV.2.1	Dispositif expérimental . . . . .	102
IV.2.2	Étude en réflectivité : modes de respiration confinés . . . . .	104
IV.2.3	Étude en transmission : génération d'ondes longitudinales par le nanofil . . . . .	106
<b>IV.3</b>	<b>Différences finies dans le domaine temporel . . . . .</b>	<b>111</b>
<b>IV.4</b>	<b>Un transducteur de fréquence « accordable » . . . . .</b>	<b>112</b>
<b>IV.5</b>	<b>Caractéristiques du champ acoustique rayonné . . . . .</b>	<b>116</b>
<b>IV.6</b>	<b>Approche inverse : excitation d'un nanofil par une onde acoustique</b>	<b>118</b>

---

*Nous mettons en évidence la génération d'ondes acoustiques monochromatiques avec des fronts d'onde anisotropes par des nanofils de cuivre de 400 nm et 120 nm de diamètre déposés sur une membrane de silicium de 10  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Le champ acoustique produit par ces transducteurs acoustiques nanométriques pompés optiquement est étudié par des expériences pompe-sonde femtosecondes résolues en temps et en espace. Deux expériences pompe-sonde sont menées en même temps des deux côtés de la membrane de silicium. La première, en réflexion, permet de vérifier que le premier mode de respiration du nanofil est excité et détecté. La seconde, en transmission, permet de détecter les ondes longitudinales et transverses habituellement générées par le laser de pompe dans cette géométrie. En outre, le signal de l'onde longitudinale est suivi par une oscillation monochromatique associée à la relaxation du premier mode de respiration du nanofil. Des simulations de différences finies (FDTD) sont menées et reproduisent fidèlement le champ diffracté émis par le nanofil. Enfin, une anisotropie de forme du champ acoustique, résultant du fort rapport d'aspect de la source (le nanofil), est détectée. L'orientation du nanofil de cuivre peut ainsi être déduite à travers la membrane de façon purement acoustique.*

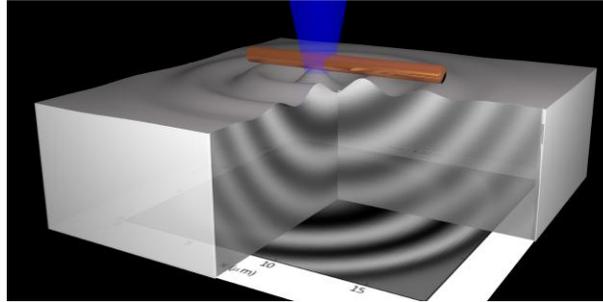


FIGURE 4.1: Résumé graphique de la génération d'ondes acoustiques dans une membrane de silicium par un nanofil de cuivre pompé optiquement par un laser bleu[108].

Des phonons acoustiques cohérents peuvent être générés avec une très grande résolution spatiale en profondeur par l'absorption d'un pulse laser femtoseconde dans une nanostructure telle que des couches minces métalliques[220] ou des multipuits quantiques[102]. De telles ondes acoustiques possèdent des longueurs d'onde de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, ce qui a notamment permis d'améliorer l'imagerie ultrasonore non-invasive dans les tissus biologiques[60, 176, 177] ou de développer l'optomécanique au-delà du gigahertz[73]. Cette résolution spatiale en profondeur peut même être améliorée grâce à des phénomènes non linéaires[179, 224]. Cependant, la résolution spatiale latérale des expériences d'ultrasons laser reste encore limitée par la diffraction de la lumière à des tailles de l'ordre du micromètre. Afin d'améliorer la résolution latérale et d'atteindre une résolution submicronique, de nombreuses approches ont été proposées. Il a ainsi été suggéré d'utiliser des lentilles à immersion solide (SIL) pour diminuer la taille de focalisation des faisceaux lasers de pompe et de sonde[67], mais ces résultats préliminaires encourageants n'ont pas encore fait l'objet de publication complète. Par ailleurs, l'équipe de Maris affirme atteindre une résolution latérale de l'ordre de 100 nm[143, 144] dans son microscope acoustique de très haute résolution en utilisant une lentille acoustique pour focaliser les ondes acoustiques générées par un laser (Figure 4.2b). D'autres approches, combinant notamment des dispositifs expérimentaux d'acoustique picoseconde et des techniques de microscopie de champs proche optique (NSOM), ont été envisagées [227, 205, 19, 17] afin de diminuer la résolution latérale des expériences d'ultrasons laser (Figure 4.2c). Des tentatives inspirées de la microscopie de déplétion par émission stimulée (STED) ont aussi permis d'atteindre une résolution latérale de l'ordre de 140 nm[133]. L'utilisation de nano-objets, utilisés comme transducteurs acoustiques intégrés dans un microscope acoustique à sonde locale, est aussi envisagée. L'équipe taïwanaise de Chi-Kuang Sun propose ainsi d'utiliser un nanofil semi-conducteur monté sur un cantilever d'AFM[236] (Figure 4.2a). Couplé avec une expérience d'acoustique picoseconde, ce nanofil peut alors être utilisé pour générer, guider[142] puis détecter des ondes acoustiques et donner une information mécanique et élastique locale sur la surface sous-jacente avec une résolution latérale limitée par le diamètre du nanofil. Cependant, alors que les modes acoustiques confinés dans des nano-objets individuels sont largement documentés par de nombreuses équipes depuis une dizaine d'années[225, 51, 146, 245], les études sur la propagation de phonons acoustiques cohérents dans des guides d'ondes nanométriques n'émergent que depuis deux à trois années dans l'équipe de

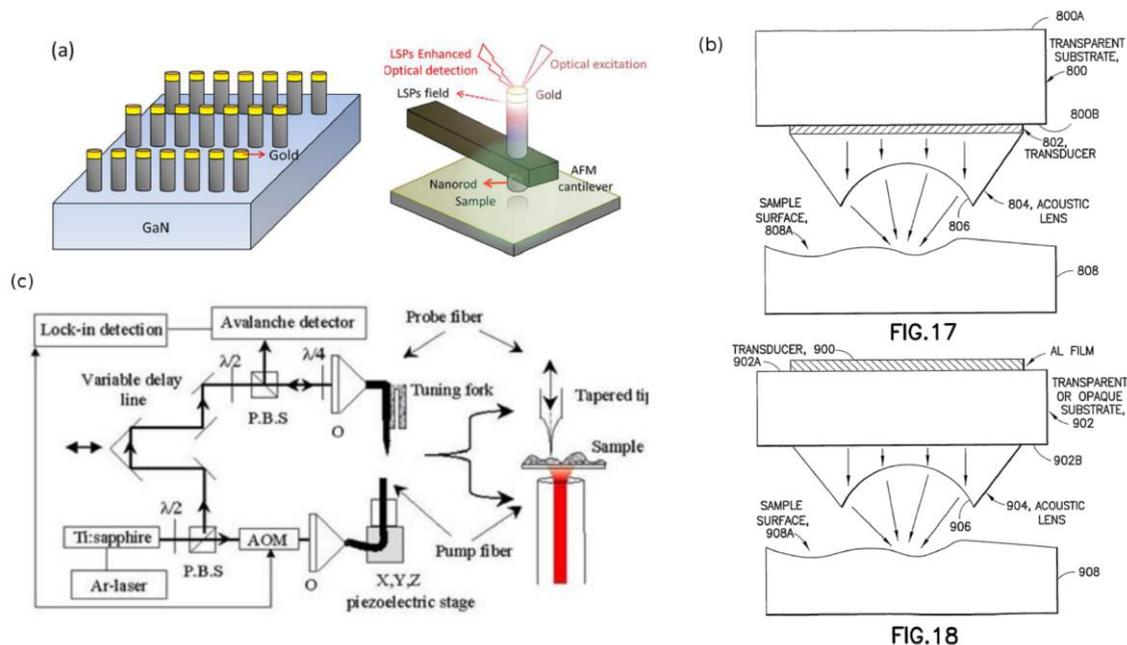


FIGURE 4.2: (a) Figure extraite des travaux de Yang *et al.*[236]. Proposition d'une sonde nanométrique conçue grâce à un nanofil pour la microscopie acoustique (b) Lentille acoustique brevetée par Maris *et al.*[144] pour augmenter la résolution latérale de la technique d'ultrasons laser. (c) Montage expérimental proposé par Bienville *et al.*[19] pour réaliser des mesures d'acoustique picoseconde en champs proche.

Chi-Kuan Sun[237, 142] et de l'INSP[109, 107]. De plus, à notre connaissance, l'unique expérience de génération d'ondes acoustiques gigahertz dans un substrat grâce à un nano-objet a été réalisée en 2011 avec des disques d'or nanométriques lithographiés sur un wafer de silicium[6].

Dans ce chapitre, nous proposons et démontrons que des nanofils de cuivre simplement déposés sur un substrat de silicium peuvent être utilisés comme des transducteurs nanométriques d'ondes acoustiques monochromatiques et anisotropes dont la fréquence est contrôlée par le diamètre du nanofil. Après avoir décrit les échantillons et les dispositifs expérimentaux, les premiers modes de respiration de nanofils de 400 nm de diamètre sont excités et détectés en réflectivité de la même façon qu'au chapitre 2. Ensuite, un dispositif expérimental en transmission est utilisé pour détecter tout signal acoustique potentiellement généré par le nanofil et transmis de l'autre côté de la membrane de silicium. Nous arrivons ainsi à obtenir une cartographie spatio-temporelle du champ acoustique émis par un nanofil de cuivre unique. Puis nous comparons ces cartographies à des simulations de différences finies dans le domaine temporel (FDTD) menées en collaboration avec l'IEMN de Lille. Ces expériences sont alors reproduites avec des nanofils dont le diamètre est de 120 nm afin de montrer que la fréquence de l'onde générée par le nanofil est bien contrôlée par la taille du nanofil. Ces approches basées sur l'imagerie spatio-temporelle nous permettent alors de mettre en évidence l'anisotropie spatiale du champ acoustique rayonné. Comparée aux simulations par différences finies, cette anisotropie spatiale pourrait permettre une estimation grossière de la taille du contact entre le

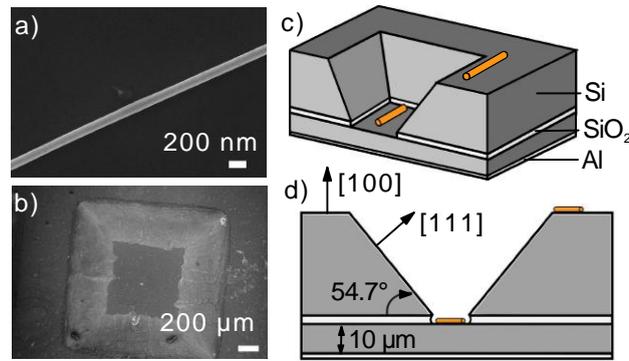


FIGURE 4.3: (a) Vue au microscope électronique à balayage d'un nanofil de cuivre de 120 nm de diamètre déposé sur la membrane de silicium. (b) Vue de dessus au microscope électronique à balayage du wafer de SOI gravé, laissant apparaître la structure en pyramide inversée. (c) Schéma en trois dimensions du wafer de SOI gravé. On obtient alors une membrane de silicium de forme carrée de 10  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Cette membrane est recouverte d'une couche d'aluminium de 100 nm d'épaisseur pour garantir une bonne détection optique. (d) Vue schématique de côté de la membrane de silicium sur laquelle est déposée un nanofil de cuivre.

nanofil et le substrat. Enfin, le dispositif est inversé afin d'exciter des modes acoustiques du nanofil grâce à une onde acoustique transmise à travers la membrane.

## IV.1 Système étudié : nanofils de cuivre sur membranes de silicium

Les nanofils de cuivre fabriqués par croissance électrochimique dans les pores d'une membrane de polycarbonate irradiée par des ions lourds[222] présentent une cylindricité quasi-parfaite, de grands rapports d'aspect et une surface extrêmement lisse (Figure 4.3a). C'est pourquoi nous les avons choisis comme système modèle pour étudier le comportement des phonons acoustiques confinés[15] (chapitre 2) et propagatifs[109] (chapitre 3) dans des nano-objets individuels. Pour le détail de leur fabrication, on se reportera au chapitre II.2. Dans le chapitre présent, les nanofils de cuivre sont simplement déposés sur un substrat de silicium afin d'être utilisés comme des transducteurs acoustiques monochromatiques. En effet, au cours des dernières années, il a été montré[239, 139, 15] que le facteur de qualité du premier mode de respiration radiale de nanofils augmentait fortement lorsque le contact entre le nanofil et le substrat sous-jacent diminuait. Les stratégies pour observer de nouveaux phénomènes physiques consistent alors souvent à diminuer l'interaction nanofil-substrat afin de supprimer le canal de dissipation que constitue ce contact. Plusieurs équipes, notamment aux États-Unis à l'université de Notre Dame et en France à l'INSP, ont donc proposé de suspendre les nanofils au-dessus de tranchées micrométriques pour se rapprocher d'un système libre. Les stratégies

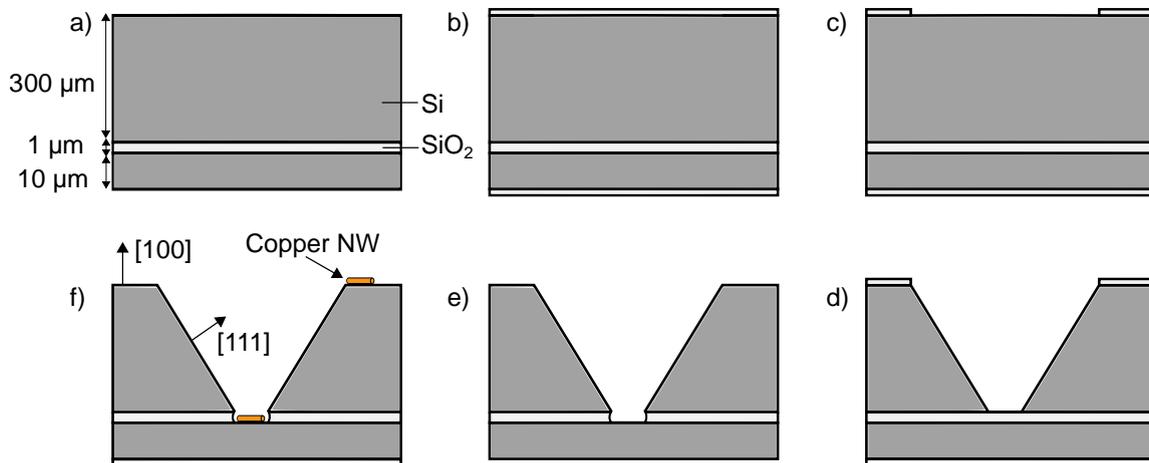


FIGURE 4.4: Schémas vus de côté. (a) Wafer de SOI de 2 pouces de diamètre : couches Si(100) – SiO<sub>2</sub> – Si(100) de respectivement 300 µm – 1 µm – 10 µm d'épaisseur. (b) Croissance thermique d'une couche de SiO<sub>2</sub> d'une épaisseur de 400 nm. (c) Gravure sélective de la silice à l'aide de lithographie optique et de gravure chimique à l'acide fluorhydrique. (d) Gravure chimique anisotrope du silicium dans une solution basique de KOH chaud à 40%. (e) Élimination de la couche de silice restante dans le HF. (f) Des gouttes de solution de dichlorométhane dans laquelle les nanofils de cuivre en suspension sont présents sont déposées sur le wafer. Certains nanofils se retrouvent au fond des pyramides inversées sur les membranes.

pour augmenter les facteurs de qualité des nano-résonateurs se développent aussi en optomécanique pour d'autres modes mécaniques comme les modes de galerie. Dans ce cas, le canal de dissipation que constitue le contact entre le nano-résonateur et le substrat est nommé « pertes d'ancrage » et des « boucliers » de phonons sont parfois conçus pour limiter leur transmission vers le substrat[168].

Dans ce chapitre, nous souhaitons détecter l'énergie dissipée par le nano-résonateur en transmission après sa propagation à travers un substrat de silicium. Cependant, d'après les modèles de mécanique des milieux continus, les fréquences attendues des modes de respirations des nanofils de  $d = 120$  et  $d = 400$  nm de diamètre sont de l'ordre de  $f \sim c_L/d \sim 10$  GHz à 30 GHz. Or, les phonons acoustiques à ces fréquences sont fortement atténués dans le silicium à température ambiante[69, 89]. C'est pourquoi, après des tentatives infructueuses à travers des wafers de silicium d'une centaine de micromètres d'épaisseur, nous avons décidé de conduire les expériences sur des membranes de silicium de 10 µm d'épaisseur conçues par gravure humide de wafer de silicium sur isolant (SOI) (Figure 4.3b,c et d). Ces wafer sont constitués d'une couche Si(100) de 300 µm d'épaisseur sur laquelle on trouve une couche de SiO<sub>2</sub> de 1 µm. Une reprise d'épitaxie permet ensuite de rajouter une couche de Si(100) de 10 µm d'épaisseur (Figure 4.4a). Sur ce substrat commercial initial, on fait croître thermiquement une couche d'oxyde SiO<sub>2</sub> de 400 nm d'épaisseur dans un four à tube sous oxygène sur les deux côtés

du wafer (Figure 4.4b). Cette couche d'oxyde joue le rôle de couche protectrice lors de la gravure chimique dans le KOH. On réalise alors une étape de lithographie UV. Les surfaces de silice sont enduites à la tournette par une résine positive (Shipley S1813) puis la surface de silice recouvrant la couche de silicium 300  $\mu\text{m}$  d'épaisseur est insolée sélectivement. Après développement, rinçage et recuit, l'échantillon est gravé dans une solution de HF. Puis, la résine est retirée à l'acétone. Le masque solide de silice (Figure 4.4c) protège une partie du silicium lors de la gravure anisotrope dans une solution de KOH à 40% à  $\sim 60^\circ\text{C}$ . La gravure chimique s'arrête lorsque la couche de silice du SOI est atteinte (Figure 4.4d). Lors de cette gravure, les plans (100) ou (110) sont gravés plus rapidement que les plans (111) à cause d'un plus grand nombre de liaisons pendantes[202]. Cette gravure anisotrope du silicium entraîne la formation de structures en formes de pyramides inversées. Les couches de silice protectrices sont ensuite retirées dans le HF (Figure 4.4e). Finalement, on obtient des membranes de silicium de 10  $\mu\text{m}$  d'épaisseur au fond de structures en pyramides inversées. Pour améliorer la détection par le laser de sonde, une fine couche de 100 nm d'épaisseur d'aluminium ou de titane est évaporée ou pulvérisée sur la face opposée aux structures pyramidales inversées. Lors d'une dernière étape, les nanofils en suspension dans une solution de dichlorométhane sont déposés sur le substrat de silicium. Après évaporation du solvant, certains nanofils se retrouvent au fond des membranes (Figure 4.4f).

## IV.2 Expériences de spectroscopie pompe-sonde

### IV.2.1 Dispositif expérimental

Comme dans les autres chapitres, le dispositif expérimental est un montage pompe-sonde basé sur une source laser ultrarapide Ti :saphir (MAI-TAI Spectra) accordable dans le rouge et le proche infrarouge (720 nm à 910 nm) avec un taux de répétition de 79,3 MHz (Figure 4.5). La largeur temporelle du pulse laser à la sortie de la cavité est inférieure à 100 fs. Le faisceau laser est divisé en deux parties à l'aide d'un cube séparateur en polarisation (PBS1). La lame demi-onde en amont permet de gérer la quantité d'énergie envoyée sur le bras de sonde et le bras de pompe. Afin d'augmenter le rapport signal sur bruit, on réalise une détection synchrone. La pompe est ainsi modulée à 1,8 MHz à l'aide d'un modulateur acousto-optique. Le choix de cette fréquence est lié à la bande passante des diodes silicium qu'on utilise en détection interférométrique. Le faisceau de pompe est focalisé sur la membrane de silicium par un objectif de grossissement 100 $\times$  et d'ouverture numérique 0,95 pour la majorité des expériences. Un objectif de grossissement 50 $\times$  et d'ouverture numérique 0,50 est utilisé dans la dernière partie du chapitre pour augmenter l'anisotropie du champ acoustique rayonné. Une difficulté expérimentale réside dans le fait que notre objectif 100 $\times$  possède une distance de travail de l'ordre de 300  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond également à la profondeur des structures en pyramides inversées (Figure 4.3 et Figure 4.4). Il faut donc procéder avec précaution lors de la mise au point sur les

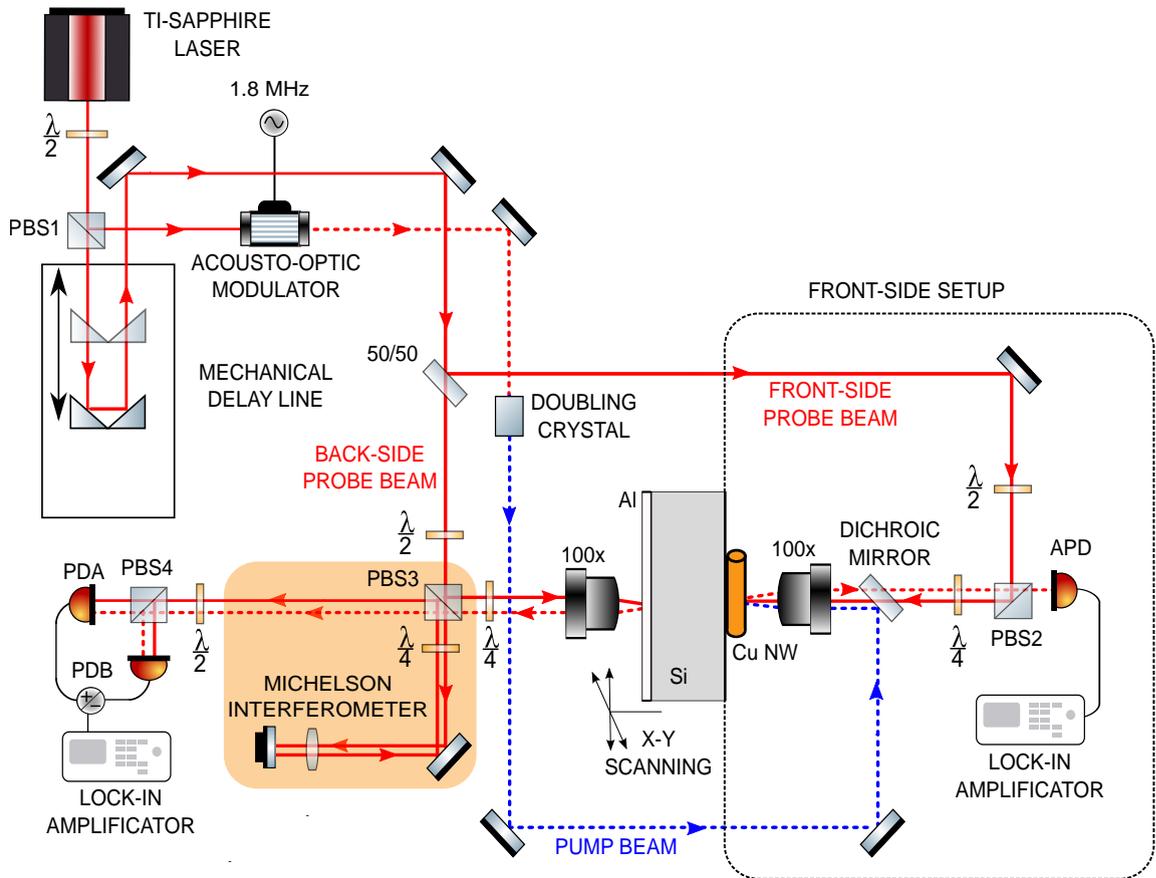


FIGURE 4.5: Schéma simplifié du dispositif expérimental. Les deux faisceaux de sonde peuvent être focalisés de façon simultanée des deux côtés de la membrane de silicium. Du côté du nanofil, déposé au fond des structures en pyramide inversée, l'acquisition du signal de réflectivité est réalisée grâce à un photodétecteur à avalanche (APD). De l'autre côté, sur la couche mince d'aluminium ou de titane, le signal de réflectivité passe au travers d'un interféromètre de Michelson.

nanofils déposés au fond des structures pyramidales. Pour repérer les nanofils sur les membranes, le montage expérimental est également doté d'un dispositif rudimentaire d'imagerie en lumière blanche similaire à celui décrit dans le chapitre 3. Ce dispositif d'imagerie n'est pas reproduit sur le schéma de la Figure 4.5 pour des questions de lisibilité. Par ailleurs, afin d'éviter que de la lumière diffusée par le laser de pompe n'affecte la détection synchrone, nous réalisons une expérience à deux couleurs : un cristal doubleur (BBO) est inséré sur le chemin de la pompe. Les expériences sont donc réalisées avec une pompe à  $\lambda_{\text{pompe}} = 400 \text{ nm}$  et une sonde à  $\lambda_{\text{sonde}} = 800 \text{ nm}$ . Le diamètre,  $d$ , du faisceau laser de pompe dans le plan focal à  $1/e^2$  est estimé à  $d \lesssim 1 \mu\text{m}$  et  $d \lesssim 2 \mu\text{m}$ , respectivement pour les objectifs  $100\times$  et  $50\times$ .

Le faisceau de sonde passe à travers la ligne à retard motorisée. Deux coins de cube sont montés sur une platine de translation d'une longueur de 60 cm en face d'un coin de cube statique. Les trois allers-retours parcourus par la lumière nous permettent d'obtenir une différence de chemin

optique maximale de 3,6 m ce qui correspond à un délai maximum de 12 ns entre les pulses de la pompe et de la sonde (on approche ainsi le taux de répétition du laser de 12,6 ns ce qui permet de limiter les délais pour lesquels nous serions « aveugle » à la présence d'un signal). L'originalité du montage expérimental présenté ici réside dans la lame séparatrice 50R/50T placée sur le faisceau sonde à la sortie de la ligne à retard. Le faisceau réfléchi sur cette lame de verre séparatrice est focalisée par le même objectif que celui utilisé pour focaliser le faisceau de pompe sur un nanofil. Le faisceau transmis, lui, est focalisé à l'aide d'un objectif à longue distance de travail  $100\times$  dont l'ouverture numérique est de 0,55 (Objectif corrigé à l'infini  $100\times$  Mitutoyo Plan Apo SL) sur la face de l'échantillon recouverte d'une couche mince métallique. Les faisceaux de pompe et de la première partie de la sonde constituent un dispositif « en face avant » classique de réflectométrie très similaire au dispositif présenté au chapitre 2. Une lame demi-onde et un cube à séparation de polarisation (PBS2) sont positionnés à l'entrée de l'objectif afin de collecter le faisceau de sonde réfléchi par l'échantillon. La lame quart d'onde positionnée après le cube séparateur permet de polariser la lumière de façon circulaire à l'aller et de récupérer au retour une polarisation linéaire à  $90^\circ$  de la polarisation incidente pour traverser le cube séparateur en transmission. Ce faisceau réfléchi est récupéré sur une photodiode à avalanche positionnée après un filtre coloré rouge pour s'affranchir de la présence de toute lumière bleue diffusée. En ce qui concerne le dispositif « en face arrière », le cube séparateur de polarisation (PBS3) est utilisé pour envoyer la moitié de l'intensité lumineuse sur l'échantillon et l'autre moitié sur un bras de référence. Ce bras de référence possède un miroir monté sur une cale piézoélectrique afin de maintenir l'interféromètre de Michelson au point de fonctionnement optimal. Dans cette configuration, les faisceaux lasers des bras de référence et d'échantillon présentent des polarisations orthogonales. Une dernière lame quart d'onde est donc positionnée devant le cube polarisant (PBS4) pour obtenir des interférences sur deux photodiodes (PDA and PDB). Il a précédemment été démontré[182] qu'en contrôlant la position du miroir de référence à l'aide d'une boucle de réaction, la différence des voies A et B sur la détection synchrone représente la partie imaginaire du signal de réflectivité  $(\Delta R/R)(t)$  (explicité dans l'équation 3.17) alors que les mesures de réflectivité donnent accès à la partie réelle de ce même signal. Notons qu'il est possible de réaliser des mesures de réflectométrie en face arrière en occultant simplement le bras de référence.

## IV.2.2 Étude en réflectivité : modes de respiration confinés

La qualité de la réponse élastique d'un nanofil de cuivre de 400 nm de diamètre est d'abord vérifiée à l'aide du dispositif en face avant de spectroscopie pompe-sonde résolue en temps (Figure 4.6a et Figure 4.5). Une observation préliminaire au microscope électronique à balayage (Figure 4.3b) permet d'identifier et de contrôler la taille et la forme des nanofils. Puis, à l'aide d'un dispositif d'imagerie similaire à celui décrit en Figure 3.1 une expérience pompe-sonde est réalisée sur un nanofil unique. Dans ces expériences, l'ensemble de l'épaisseur du nanofil est le siège de contractions et d'expansions

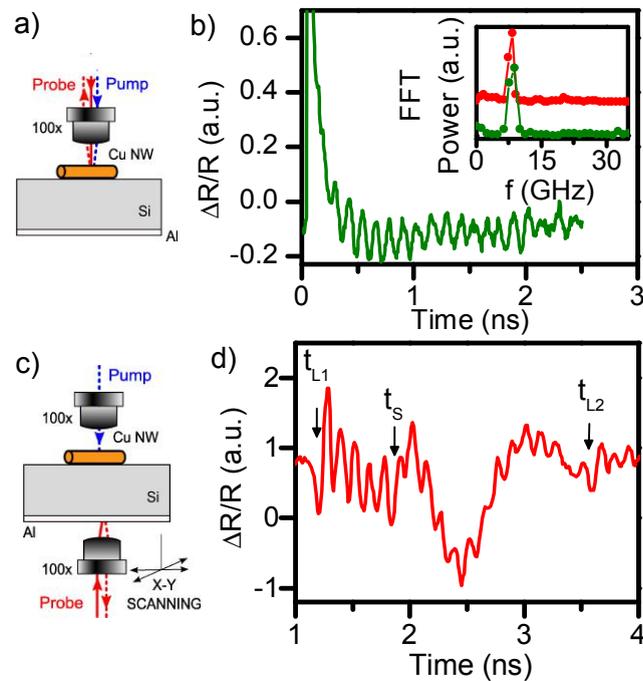


FIGURE 4.6: (a) Schéma de la configuration expérimentale face avant. Le laser bleu de pompe ainsi que le laser rouge de sonde sont focalisés sur un nanofil de cuivre unique de 400 nm de diamètre à l'aide d'un même objectif de grossissement 100× et d'ouverture numérique  $NA = 0.95$ . (b) Signal de réflectivité relative  $\Delta R/R$  obtenu dans la configuration en face avant de la Figure 4.3a. Après la coïncidence électronique, ce signal présente une composante oscillante avec une période  $T = 125$  ps. En insert : spectre de puissance de la FFT du signal dérivé de la Figure 4.6d (en rouge) et de la Figure 4.6b (en vert). (c) En configuration en face arrière, les lasers de pompe et de sonde sont focalisés sur les deux faces différentes de la membrane de silicium. De plus, la pompe est montée sur une platine piézoélectrique PI afin de réaliser des cartographies de champs de déplacement sur une surface maximale de  $150 \mu\text{m} \times 150 \mu\text{m}$ . (d) Variation relative de réflectivité  $\Delta R/R$  obtenue dans la configuration en face arrière décrite en Figure 4.3c. Ce signal contient notamment une composante oscillante dont la période est  $T_0 = 125$  ps.

radiales périodiques. Ces oscillations isotropes qui s'accompagnent d'une variation du volume du nano-objet ont été identifiées comme le mode de respiration fondamental du nanofil [139, 15] (ces aspects sont détaillés dans la partie II.1). Ces oscillations périodiques entraînent une modulation de l'indice de réfraction optique du métal, ce qui se répercute sur la variation de la réflectivité relative  $\Delta R/R$  (Figure 4.6b) de la sonde. Ce signal oscillant est superposé à une décroissance non-oscillante dont le temps caractéristique est de l'ordre de quelques centaines de picoseconde. Comme le nanofil est posé sur le substrat de silicium, cette signature du transfert d'énergie thermique du nanofil au substrat est beaucoup plus rapide que dans les cas des objets suspendus au-dessus de tranchés (chapitre III.4.2 avec la Figure 3.15 par exemple). La fréquence des oscillations de la Figure 4.6b est extraite du signal temporel par transformée de Fourier (insert figure 4.6b) ou par ajustement numérique du signal par une fonction sinusoïdale superposée à une exponentielle décroissante. Les deux méthodes donnent une fréquence  $f_0 = 8,0 \pm 0,2$  GHz et un facteur de qualité  $Q$  de l'ordre de

20 ce qui se situe dans la fourchette basse des facteurs de qualité obtenus avec des nano-objets suspendus (dans le chapitre II.6 avec la Figure 2.21 par exemple) mais dans la fourchette haute des facteurs de qualité obtenus avec des nano-objets en contact avec leur substrat sur toute leur longueur. Cette fréquence est comparée à la fréquence théorique du mode de respiration radiale fondamental d'un cylindre de cuivre libre, infiniment long et élastiquement isotrope,  $f_0 = \phi_0 c_L / (2\pi a)$ , où  $a = 200 \pm 15$  nm est le rayon du nanofil et  $\phi_0$  est la première racine de l'équation 4.1

$$2 \left( \frac{c_T}{c_L} \right)^2 J_1(\phi_n) = \phi_n J_0(\phi_n) \quad (4.1)$$

où  $c_L = 4,5 \mu\text{m ns}^{-1}$  et  $c_T = 2,2 \mu\text{m ns}^{-1}$  sont respectivement les vitesses longitudinale et transverse du son dans du cuivre polycristallin[129].  $J_0$  et  $J_1$  sont respectivement les fonctions de Bessel de première espèce d'ordre 0 et 1. Cette fréquence théorique du mode de respiration fondamental est  $f_0 = 8,0 \pm 0,5$  GHz, où l'incertitude réside à la fois dans les fluctuations de diamètre le long du nanofil et dans l'incertitude sur les propriétés élastiques du cuivre qui varient fortement dans la littérature en fonction de type de caractérisation notamment. Ainsi, étant donné le champ de déplacement de ce mode de respiration radiale et la géométrie selon laquelle le nanofil est déposé sur la membrane de silicium, on s'attend à ce que l'énergie acoustique du nanofil soit principalement transmise au substrat sous la forme d'ondes acoustiques longitudinales. Notons enfin qu'une modélisation libre du nano-résonateur pourrait être remise en cause ici puisqu'on cherche justement à quantifier ce contact en observant l'énergie transmise à travers ce canal de dissipation. Une rigidification et donc une augmentation de la fréquence est attendue[41] mais ces variations semblent marginales dans notre cas.

### IV.2.3 Étude en transmission : génération d'ondes longitudinales par le nanofil

« En même temps » que l'expérience pompe-sonde résolue en temps précédente, il nous est possible d'utiliser la configuration en face arrière (Figure 4.6c et Figure 4.5). La seule limitation est que nous ne disposons que d'une seule détection synchrone et d'une carte d'acquisition deux voies. Ces expériences sont donc séquentielles à quelques minutes d'intervalles mais sans aucune modification du montage et du positionnement de l'échantillon. Nous nous focalisons dans cette partie sur les signaux obtenus en face arrière. Le nanofil demeure excité par le laser de pompe bleu, la seconde partie de la sonde est focalisée de l'autre côté de la membrane de silicium. La variation de réflectivité différentielle (différence entre les signaux des diodes PDA et PDB de la Figure 4.5) est enregistrée à l'aide d'un interféromètre de Michelson et tracée en Figure 4.6d. L'origine  $t = 0$  du graphique

correspond à la coïncidence électronique en face avant. Pour des questions de lisibilité, afin de pouvoir comparer directement la période des oscillations entre les Figures 4.6b et d, nous avons préféré utiliser une fenêtre temporelle de la même durée (3 ns). La Figure 4.6d commence donc à  $t = 1$  ns. La première déformation observable est attribuée à une onde longitudinale à  $t_{L1} = 1,18 \pm 0,02$  ns est suivie d'oscillations monochromatiques à la même fréquence  $f_0 = 8,0 \pm 0,4$  GHz que la fréquence des oscillations observées en face avant (insert Figure 4.6b). Le facteur de qualité de ces oscillations en face arrière est comparable au facteur de qualité observé dans la configuration en face avant, même si une comparaison précise n'est pas possible puisque le temps d'atténuation des oscillations est de l'ordre de grandeur de l'intervalle temporel entre deux échos longitudinaux consécutifs : un nouveau train d'oscillation arrive alors que le précédent n'est pas encore totalement atténué. Le second écho apparaît après  $t_{L2} = 3,56 \pm 0,02$  ns après un aller-retour supplémentaire dans la membrane. De la même façon que précédemment, cet écho est suivi par des oscillations. Par ailleurs, la vitesse des ondes acoustiques longitudinales le long de la direction cristalline [100] du silicium est bien connue[88] :  $c_L^{\text{SI}} = 8,43 \mu\text{m ns}^{-1}$ . On peut ainsi estimer l'épaisseur  $h$  de la membrane de silicium :  $h = (t_{L2} - t_{L1}) c_L^{\text{SI}}/2 = 10,0 \pm 0,2 \mu\text{m}$ , en parfaite adéquation avec les caractéristiques du wafer de SOI. Les déformations observées sont donc bien des ondes longitudinales. Par conséquent, l'onde acoustique transverse correspondant à un aller dans la membrane est attendue pour un retard de  $t_S = h/c_T^{\text{SI}} = 1,84 \pm 0,02$  ns, où  $c_T^{\text{SI}} = 5,84 \mu\text{m ns}^{-1}$  est la vitesse des ondes sonores transverses dans la direction [100] du silicium. Comme l'onde acoustique transverse atteint la surface opposée de la membrane alors que les oscillations monochromatiques à  $8,0 \pm 0,4$  GHz sont encore présentes, il est difficile d'estimer précisément son temps d'arrivée. Cependant, une variation de réflectivité importante se produit entre 1,8 ns et 2,8 ns après la coïncidence, ce qui pourrait être la signature de l'onde acoustique transverse. Ce signal attribué à une onde acoustique transverse sera discuté dans une prochaine partie. Finalement, l'excellent accord entre la fréquence du mode de respiration radial fondamental des nanofils et la fréquence des ondes longitudinales détectées à travers la membrane est une preuve solide que les nanofils agissent comme des transducteurs acoustiques de dimensions nanométriques. Ce comportement a été observé sur de nombreux nanofils : à chaque fois que nous arrivons à exciter et détecter des oscillations en face avant, le phénomène d'émission d'ondes longitudinales monochromatiques est observé.

Afin d'isoler l'effet du nanofil de cuivre, une expérience de référence est réalisée. Alors que le système est dans la configuration interférométrique en face arrière (Figure 4.6d) qui mène à la mesure en Figure 4.6d (reproduite sur la Figure 4.7f), l'échantillon est délicatement déplacé latéralement de sorte que le laser de pompe bleu n'excite plus le nanofil (Figure 4.7c). Dans cette configuration, les oscillations monochromatiques disparaissent et on observe trois pics dipolaires en  $t_{L1}$ ,  $t_{L2}$  et  $t_S$  qui correspondent respectivement aux échos longitudinaux (après un aller et après un aller-retour plus un aller) et à l'écho transverse. Étant données les petites dimensions des faisceaux de pompe et de sonde (diamètres à  $1/e^2$  inférieurs au micromètre), les ondes longitudinales mais aussi transverses sont excitées dans la membrane de silicium[242, 57]. Remarquons que l'amplitude des signaux est

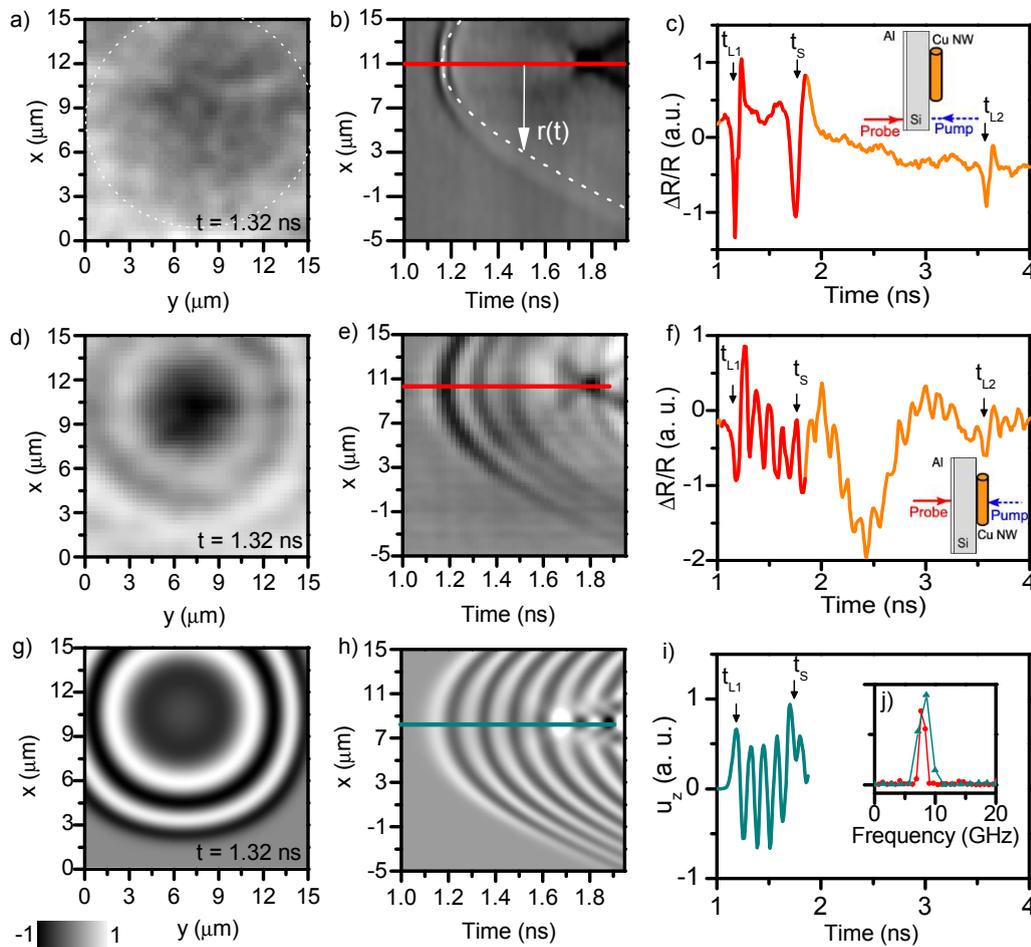


FIGURE 4.7: (a), (b), (c) Cartographies de référence : la pompe excite directement la membrane de silicium ce qui génère des ondes longitudinale et transverse de façon peu efficace (schéma de la configuration en insert Figure 4.7c). (d), (e), (f) La pompe excite le mode de respiration fondamental d'un nanofil de cuivre de 400 nm de diamètre (schéma en insert Figure 4.7f) ce qui génère une onde acoustique longitudinale monochromatique à la fréquence du mode de respiration dans la membrane de silicium. Cette onde monochromatique produit des anneaux concentriques sur la cartographie du champ acoustique. (g), (h), (i) Simulation de différences finies dans le domaine temporel (FDTD) : la source acoustique est un déplacement longitudinal imposé à la fréquence de 8 GHz sur la surface de silicium. (j) Spectre de puissance FFT de la partie rouge de la Figure 4.7f et du signal en turquoise sur la Figure 4.7i. (a), (d), (g) Cartographie bidimensionnelle  $x - y$  du déplacement hors plan  $u_z$  réalisée pour un délai  $t_{\text{map}} = 1,32$  ns entre la pompe et la sonde. Notons que ce n'est pas le déplacement hors plan  $u_z$  « pur » pour les cartographies expérimentales interférométriques en raison de l'équation 3.17. (b), (e), (h) Cartographie de déplacement de surface en deux dimensions  $x - t$  à une position  $y_0 = 7 \mu\text{m}$  fixée. (c), (f), (i) Signal dans le domaine temporel du déplacement de surface hors plan (soit directement pour la simulation en (i) soit au travers de la réflectivité en interférométrie pour (c) et (f)) dans la position  $x_0 = 10 \mu\text{m}$  et  $y_0 = 7 \mu\text{m}$ . La partie rouge (ou turquoise) des signaux correspond aux lignes rouges (ou turquoise) sur les Figures 4.7(e) et (h).

similaire entre les deux expériences mais la puissance moyenne de la pompe est de 5 mW pour la Figure 4.7c alors qu'elle n'est que de 0,5 mW dans la Figure 4.7f. La génération d'ondes acoustiques par le nanofil est donc un facteur 10 plus efficace que la génération d'ondes acoustiques directement dans le silicium. Cette expérience de référence est une preuve supplémentaire que le nanofil métallique est bien la source d'émission des ondes longitudinales monochromatiques observées sur la Figure 4.7f.

Par ailleurs, le déplacement de surface produit par les ondes acoustiques est enregistré à la fois temporellement et spatialement grâce au déplacement de la sonde montée sur une platine piézo-électrique qui permet un déplacement allant jusqu'à 150  $\mu\text{m}$  avec une précision de 5 nm. Ainsi, de façon complémentaire aux expériences décrites précédemment (Figures 4.7c et f), deux expériences supplémentaires sont réalisées en face arrière pour chacun des deux types de génération (génération d'ondes acoustiques par le nanofil pompé optiquement comme en Figure 4.7f ou génération par le laser directement dans le silicium comme en Figure 4.7c). La première expérience est une cartographie spatiale en deux dimensions  $x - y$  du déplacement de surface à un délai fixé à  $t_{\text{map}} = 1,32$  ns après la coïncidence électronique en face avant. Sachant que la longueur de pénétration de la lumière bleue dans le silicium est de l'ordre de la centaine de nanomètres[83] à 300 K<sup>1</sup>, et qu'il y a ensuite diffusion rapide des électrons chauds, le dépôt d'énergie thermique directement dans la membrane de silicium se produit sur une épaisseur micrométrique ce qui génère des ondes acoustiques basses fréquences (larges temporellement) et peu intenses. Cette génération peu efficace explique le très faible contraste de la cartographie spatiale en Figure 4.7a (Le cercle pointillé est un guide pour les yeux). Au contraire, lorsque les ondes acoustiques sont générées par un nanofil de cuivre excité optiquement, la génération efficace d'ondes acoustiques concentriques est observée (Figure 4.7d). Par ailleurs, ces cartographies de champs acoustiques peuvent être réalisées à plusieurs délais temporels afin d'obtenir des films[108]. Comme les ondes acoustiques émises possèdent une symétrie quasi-circulaire, une expérience complémentaire est entreprise afin d'obtenir une information sur l'évolution temporelle du champ acoustique sans avoir recours à un film obtenu par superposition d'images à différents délais. Cette deuxième expérience est une cartographie spatio-temporelle  $x - t$  du déplacement de surface à une position  $y_0 = 7 \mu\text{m}$  fixée. L'alternance des bandes noires et blanches dans la Figure 4.7e, qui est absente sur la Figure de référence 4.7c, est caractéristique des ondes acoustiques monochromatiques longitudinales émises par le nanofil de cuivre.

### IV.2.3.1 Modèle du silicium isotrope

Avant d'entreprendre des simulations en différences finies (FDTD), les cartographies de déplacement de surface sont analysées à la lumière d'une approximation de propagation isotrope des ondes acoustiques dans le silicium : toutes les directions sont équivalentes à la direction [100]. Cette approximation est réalisée afin de dégager des tendances et un accord qualitatif. Dans ce modèle,

1. Cette longueur de pénétration est de l'ordre de la dizaine de nanomètres dans les métaux comme le cuivre ou l'aluminium[189].

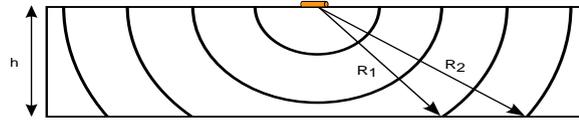


FIGURE 4.8: Vue schématique de côté de la membrane de silicium d'épaisseur  $h$  au délai temporel  $t_d$  après la coïncidence électronique en face avant. Le nanofil génère des ondes acoustiques longitudinales sphériques avec une périodicité temporelle  $T_0 = 125$  ps.

le nanofil génère des ondes acoustiques longitudinales sphériques avec une périodicité temporelle  $T_0 = 125$  ps (Figure 4.8). Dans le cadre de cette approximation isotrope, on s'attend donc à observer des cercles concentriques sur les cartographies de déplacement de surface.

Considérons qu'une cartographie de déplacement de surface est réalisée au temps  $t_d > t_{L1}$ , où  $t_{L1}$  est la durée mise par une onde acoustique longitudinale pour traverser la membrane d'épaisseur  $h$  :  $h = c_L^{\text{SI}} t_{L1}$ .  $N$  anneaux concentriques sont observables. L'anneau le plus intérieur possède un rayon  $R_1(t_d) = \sqrt{(c_L^{\text{SI}}(t_d - (N-1)T_0))^2 - h^2}$ . Le rayon de l'anneau extérieur suivant est  $R_2(t_d) = \sqrt{(c_L^{\text{SI}}(t_d - (N-2)T_0))^2 - h^2}$ , et le dernier anneau visible a un rayon  $R_N(t_d) = \sqrt{(c_L^{\text{SI}}t_d)^2 - h^2}$ . En utilisant cette approximation sur la branche longitudinale extérieure de la Figure 4.7b on obtient la ligne pointillée qui sous-estime le rayon réel. De façon générale, le  $n^{\text{ième}}$  anneau a pour rayon

$$R_n(t_d) = \sqrt{(c_L^{\text{SI}}(t_d - (N-n)T_0))^2 - h^2} \quad (4.2)$$

Considérons 5 anneaux concentriques au délai temporel  $t_d = 1,8$  ns. La Figure 4.9a représente les rayons  $R_n$  et la Figure 4.9b représente la séparation  $d$  entre deux anneaux successifs :  $d = R_{n+1} - R_n$ . Dans ce cas, la fonction  $d$  est décroissante de 2,4 à 1,5  $\mu\text{m}$  au fur et à mesure que l'on s'éloigne de l'anneau central. On constate également la décroissance de cet écart sur la Figure expérimentale 4.7e. Les rayons expérimentaux sont pointés et reportés sur la Figure 4.9a. Cependant, les rayons estimés à partir du modèle isotrope sont sous-estimés par rapport aux rayons expérimentaux reportés. Ainsi, si l'approximation isotrope donne la bonne tendance et les bons ordres de grandeur, il est nécessaire de recourir à une modélisation complète des propriétés élastiques.

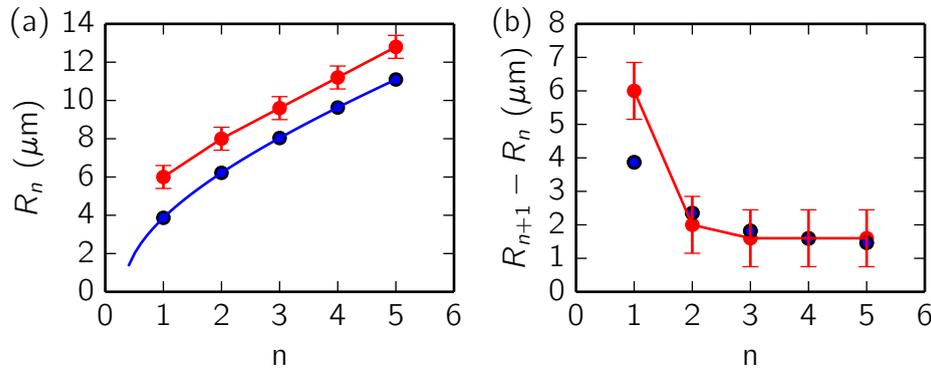


FIGURE 4.9: a) Rayons  $R_n$  des cercles concentriques dans le cadre du modèle isotrope (en bleu) et lus sur la Figure 4.7e (en rouge) pour  $t_d = 1,8$  ns. b) Séparation  $d$  entre deux anneaux successifs  $d = R_{n+1} - R_n$  correspondante dans le cadre du modèle isotrope (en bleu) et lus sur la Figure 4.7e (en rouge).

### IV.3 Différences finies dans le domaine temporel

Afin d'étudier la génération d'ondes acoustiques par des nanofils au-delà du modèle isotrope grossier, des simulations de différences finies (FDTD) dans du silicium présentant une anisotrope cristalline sont entreprises. Ces simulations numériques utilisent un code de calcul en Fortran développé à l'IEMN de Lille. Pour modéliser la géométrie de la source acoustique pour la simulation, il est nécessaire d'estimer les dimensions spatiales de la source acoustique que représente le nanofil déposé sur le dessus de la membrane de silicium. Jusqu'à présent, Les nanofils sont excités grâce à un pulse de laser bleu ( $\lambda = 400$  nm) focalisé à l'aide d'un objectif de fort grossissement ( $100\times$ ) et dont l'ouverture numérique est  $NA = 0.95$ . En réalisant l'image de structures micrométriques de calibration dont les dimensions sont connues, on estime le diamètre à  $1/e^2$  de la tâche de focalisation à moins de  $1 \mu\text{m}$ . Pour un faisceau gaussien, la diffraction donne une borne inférieure pour le diamètre de  $d_{\min} = 4\lambda NA/\pi = 0,5 \mu\text{m}$ . On considère par ailleurs que la surface de silicium excitée peut être estimée grâce à la surface de contact entre la zone du nanofil de  $400$  nm de diamètre illuminée par le laser et le silicium. Ici, la source acoustique le long de l'axe principal du nanofil est confinée à la partie éclairée. L'élargissement possible associé aux phonons acoustiques guidés le long de nanofil[109] peut être négligé puisque ce type de propagation est déjà très vite atténué dans le cas d'une géométrie suspendue (un ordre de grandeur en amplitude après  $2 \mu\text{m}$ ). Le fort couplage élastique avec le substrat rendent ce phénomène encore plus marginal ici. Dans une première approximation, on impose donc une condition à la limite entre la membrane de silicium et l'air dans la simulation FDTD sous la forme d'une vitesse verticale

$$v_{zz}(x,y,z,t) = \sin(2\pi f_0 t) \exp\left(8\left((y-y_0)^2/\sigma_y^2 + (z-z_0)^2/\sigma_z^2 + x^2/\sigma_x^2\right)\right) \quad (4.3)$$

où  $\sigma_x = 1 \mu\text{m}$  est lié au diamètre du faisceau de la pompe,  $\sigma_y = 0,2 \mu\text{m}$  est donné par la moitié du diamètre du nanofil<sup>2</sup> et  $\sigma_z = 0,1 \mu\text{m}$  est choisi pour être petit mais non nul pour éviter les discontinuités abruptes dans les simulations<sup>3</sup>. Le déplacement de surface hors plan  $u_z$  est enregistré sur deux dimensions spatiales  $x - y$  et une dimension temporelle puis est tracé sur les Figures 4.7g-i. On note ainsi que le temps d'arrivée des échos longitudinaux et transverses (Figure 4.7i), de même que la présence des anneaux concentriques (Figure 4.7g) où l'alternance des bandes noires et blanches (Figure 4.7h) sont en bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux des Figures 4.7d-f. De plus, de la même façon que pour le modèle isotrope, nous représentons le rayon des différents anneaux à un temps fixe  $t_d = 1,8 \text{ ns}$  (Figure 4.10) et cette fois-ci l'accord quantitatif est excellent.

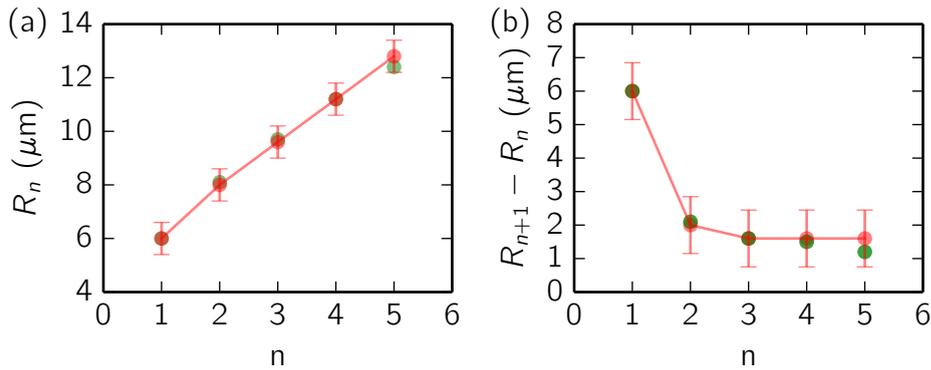


FIGURE 4.10: a) Rayons  $R_n$  des cercles concentriques dans le cadre des simulations anisotropes FDTD (en vert) et lus sur la Figure 4.7b (en rouge) pour  $t_d = 1,8 \text{ ns}$ . b) Séparation  $d$  entre deux anneaux successifs  $d = R_{n+1} - R_n$  correspondante dans le cadre des simulations anisotropes FDTD (en vert) et lus sur la Figure 4.7b (en rouge).

La modélisation des nanofils de cuivre pompés optiquement comme des transducteurs submicroscopiques d'ondes acoustiques longitudinales monochromatiques à la fréquence de leur mode de respiration fondamental semble donc bien reproduire les observations expérimentales quand la structure cristalline anisotrope du substrat de silicium est bien prise en compte. Cependant, on note que la signature des ondes acoustiques transverses n'est pas parfaitement reproduite par ces simulations.

## IV.4 Un transducteur de fréquence « accordable »

D'après les expériences menées simultanément en face avant et en face arrière (Figure 4.6), les ondes acoustiques générées à travers la membrane de silicium sont le fait du mode de respiration du nanofil de cuivre excité par le laser de pompe. Comme la fréquence  $f_0$  du mode de respiration fondamental est inversement proportionnelle au rayon  $a$  du nanofil, on s'attend à ce que l'utilisation de nanofils de diamètre plus petit permette de créer un transducteur acoustique à plus haute

2. L'importance de ce paramètre sera discutée dans une partie suivante.

3. Ce paramètre a peu d'impact sur les simulations.

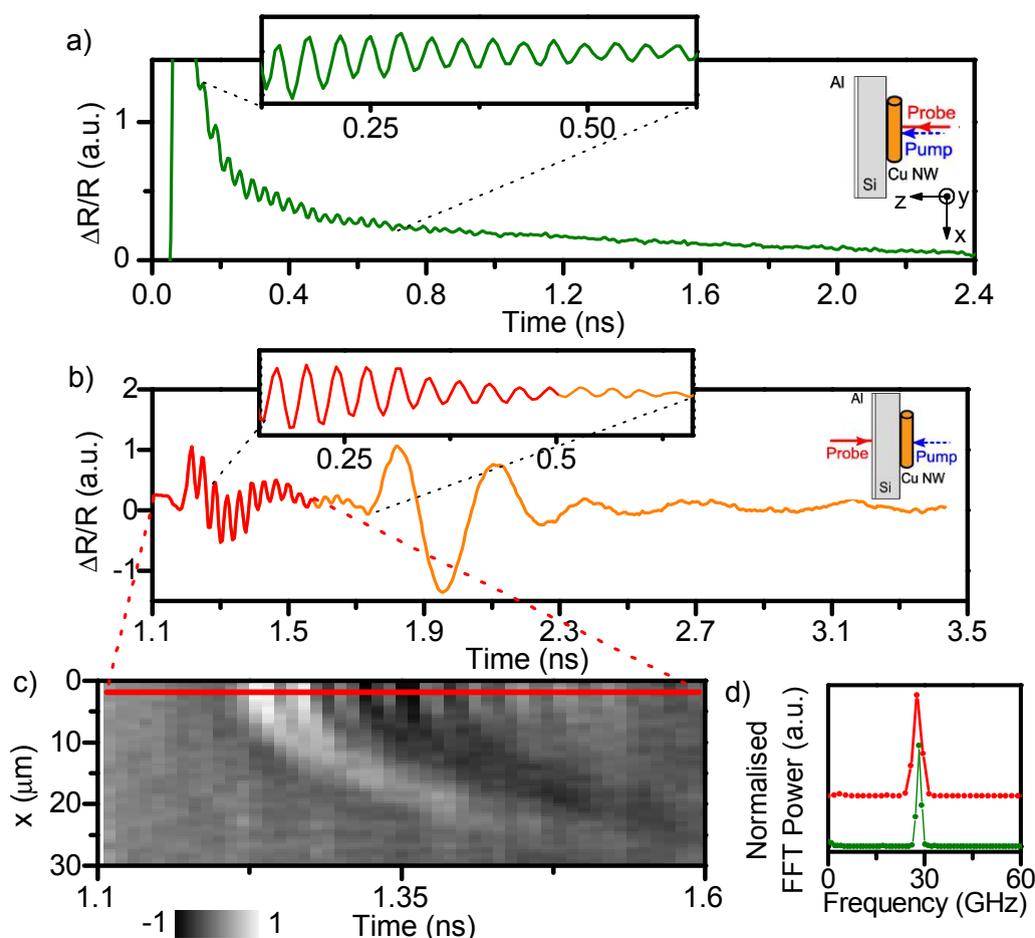


FIGURE 4.11: (a) Signal de réflectivité relative  $\Delta R/R$  obtenu dans la configuration en face avant (voir schéma en insert). Le laser de pompe, bleu, et le laser de sonde, rouge, sont focalisés sur un nanofil de cuivre unique de 120 nm de diamètre à l'aide d'un objectif de grossissement  $100\times$  et d'ouverture numérique  $NA = 0.95$ . Le deuxième insert représente le signal dérivé ce qui permet de s'affranchir des composantes continues et basses fréquences. On observe alors nettement un signal oscillant de période  $38 \pm 3$  ps. (b) Signal de réflectivité relative  $\Delta R/R$  obtenu en interférométrie dans la configuration en face arrière (voir schéma en insert). Le laser de pompe bleu est toujours focalisé sur un nanofil de cuivre de  $120 \pm 10$  nm de diamètre à l'aide de l'objectif décrit en Figure 4.11a. Le laser de sonde rouge est focalisé de l'autre côté de la membrane de silicium. Le second insert est le signal de réflectivité dérivé ce qui permet de mettre en évidence que la période des oscillations est identique à la période des oscillations en (a) :  $T = 38 \pm 3$  ps. (c) Cartographie bidimensionnelle (spatio-temporelle) de réflectivité relative (en interférométrie) le long de la direction  $x$ . La ligne rouge correspond à la partie rouge du signal en Figure 4.11b. (d) Spectre de densité de puissance FFT des inserts de la Figure 4.11b (en rouge) et Figure 4.11a (en vert).

fréquence. La Figure 4.11 présente les résultats obtenus avec un nanofil de cuivre de  $120 \pm 10$  nm de diamètre. Pour ces nanofils plus petits, la fréquence du mode de respiration est  $f_0 = 26,5 \pm 0,2$  GHz (équation 4.1), ce qui correspond à une période temporelle  $T_0 = 38 \pm 3$  ps. De façon similaire à ce qui a été présenté sur la Figure 4.6, à la fois des mesures de réflectivité en face avant (Figure 4.11a) et des mesures d'interférométrie en face arrière (Figure 4.11b) sont présentées. Encore une fois, les

oscillations monochromatiques observées grâce à la configuration en face avant (Figure 4.11a) ou grâce à la configuration interférométrique en face arrière (Figure 4.11b) sont à la même fréquence  $f_0 = 26,5 \pm 0,2$  GHz (Figure 4.11d) et en accord avec le modèle de mécanique des milieux continus (équation 4.1). Une autre composante oscillante à  $\sim 3$  GHz commence autour de 1,8 ns, au délai temporel auquel on attend l'onde transverse. Cette modulation basse fréquence est aussi présente sur la Figure 4.6 pour le même retard mais à une fréquence inférieure de l'ordre de  $\sim 1,5$  GHz. Ces composantes, dont la fréquence dépend de la taille du nanofil, pourraient constituer des signatures de modes acoustiques basses fréquences des nanofils associés à des déplacements de cisaillement. Cependant, bien que ce comportement soit quasi-systématiquement observé en face arrière, il n'existe aucune signature en face avant. Nous ne sommes donc pas capables d'attribuer ce comportement à un mode acoustique particulier des nanofils. On peut supposer que ces basses fréquences pourraient être reliées à des modes de contacts de la même manière que ce qui a été observé sur des nanosphères d'or[85]. Des travaux supplémentaires doivent encore être réalisés pour élucider cette question.

Afin de s'affranchir des composantes basses fréquences, les inserts présentés dans les deux sous-Figures 4.11 sont les dérivés des signaux de réflectivité relative. Contrairement au cas étudié à 8 GHz, ces inserts permettent de comparer directement et précisément les temps d'amortissement des oscillations en face avant et en face arrière puisque le temps de vie des oscillations est plus court que le délai temporel entre deux échos longitudinaux. Ainsi, le temps d'amortissement peut être déterminé par un ajustement des courbes par une sinusoïde amortie exponentiellement. On a  $\tau = 0,2$  ns en transmission et  $\tau = 0,3$  ns dans la configuration en face avant, ce qui correspond à un facteur de qualité  $Q = \pi f_0 \tau \sim 30$  de l'ordre de grandeur de ce qui avait été déterminé avec les oscillations à 8 GHz et en adéquation avec de précédentes études sur les modes de respiration de nanofils de cuivre déposés sur un substrat de silicium[15] ou de verre[209]. Une cartographie spatio-temporelle  $x - t$  du déplacement de surface le long de la direction  $x$  est présentée sur la Figure 4.11c. L'alternance de bandes blanches et noires, qui correspond au mode de respiration du nanofil dissipant son énergie dans le substrat n'est distinguable qu'en face de l'onde acoustique générée. Au fur et à mesure que la sonde est déplacée latéralement le long de l'axe  $x$ , le signal acoustique disparaît sous le bruit dans la cartographie. Ainsi, la forme d'une fonction racine des branches n'est visible que pour la première (qui est aussi la plus intense) oscillation. En effet, puisque la longueur d'onde de l'onde acoustique à 26,5 GHz est de l'ordre de  $\sim 0,3$   $\mu\text{m}$ , une cartographie spatiale (ici le long de la direction  $x$ ) devient un véritable défi puisque la sonde est focalisée sur une tâche de l'ordre de  $\sim 1$   $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, l'atténuation qui augmente avec le carré de la fréquence est aussi un paramètre critique qui limite notre capacité à obtenir des cartographies spatiales de qualité à ces fréquences.

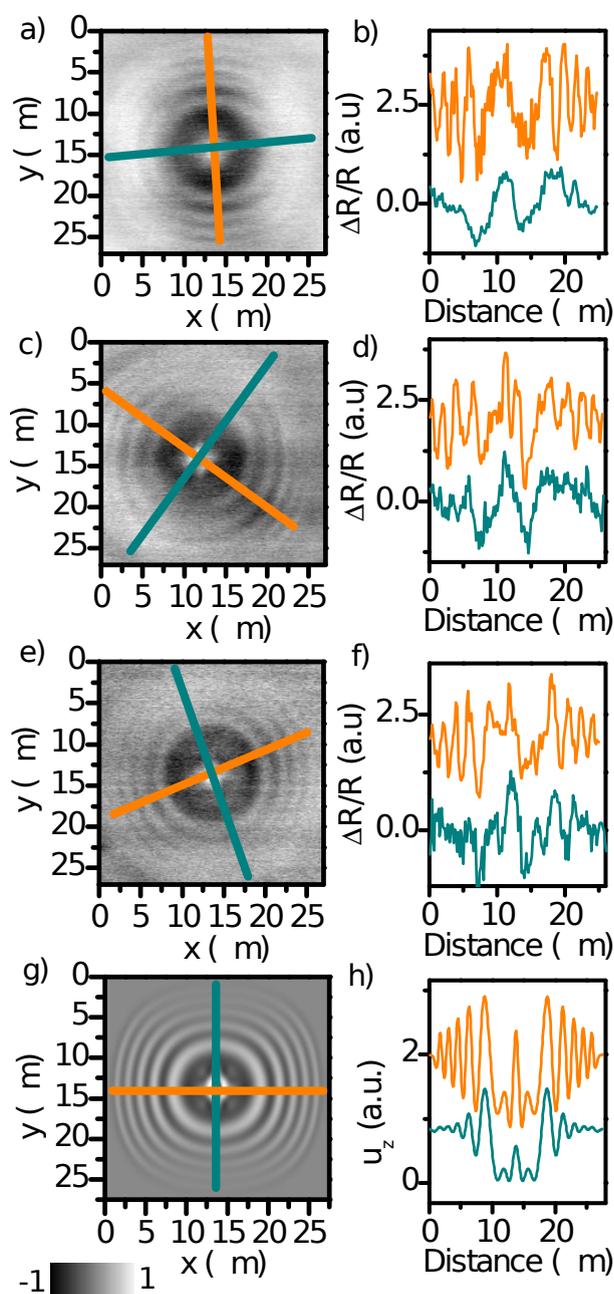


FIGURE 4.12: (a),(c) et (e) Cartographie bidimensionnelle  $x - y$  expérimentale (mesures interférométriques de réflectivité) du déplacement de surface sur la membrane de silicium. Cartographie réalisée avec un objectif de grossissement  $\times 50$  et une ouverture numérique 0,50 à un délai  $t_d = 700$  ps après la détection de l'écho longitudinal en position centrale. Le grand axe des trois différents nanofils sous-jacents est repéré par la ligne bleue cyan. (g) Cartographie bidimensionnelle  $x - y$  du déplacement de surface ( $u_z$ ) simulées par FDTD. Cartographie réalisée à un délai  $t = 700$  ps après la détection de l'écho longitudinal en position centrale. La source acoustique utilisée est un déplacement sinusoïdal  $u_z$  (équation 4.3) imposé sur un rectangle de  $2\ \mu\text{m}$  de large le long de la ligne bleue cyan et  $0,2\ \mu\text{m}$  de large selon la ligne orange. (b), (d), (f) et (h) Profils réalisés le long des lignes orange et bleues cyan des cartographies de déplacement de surface. Un décalage vertical est introduit pour des questions de lisibilité.

## IV.5 Caractéristiques du champ acoustique rayonné

Dans cette partie, on se concentre uniquement sur les nanofils de 400 nm de diamètre dont le mode de respiration fondamental se situe à environ 8 GHz. Comme décrit précédemment, le laser de pompe bleu est focalisé sur le nanofil grâce à un objectif 100× dont l'ouverture numérique est  $NA = 0,95$ . On estime que le diamètre à  $1/e^2$  de la tâche de focalisation est inférieur à 1  $\mu\text{m}$ . Par conséquent, la surface de contact entre la zone éclairée du nanofil de cuivre et la membrane de silicium est approchée par un rectangle de 200 nm par 1  $\mu\text{m}$ . Étant donnée sa taille inférieure à la longueur d'onde acoustique émise dans le silicium, cette source acoustique allongée devrait produire une émission géométriquement anisotrope. Grâce à cette anisotropie, l'orientation du nanofil de l'autre côté de la membrane devrait être détectable. Cependant, la cartographie  $x - y$  du déplacement de surface lié au champ acoustique produit par un nanofil de 400 nm de diamètre (Figure 4.7d) ne semble pas présenter d'anisotropie de forme : l'anneau central semble circulaire et l'intensité représentée par une couleur semble constante le long du périmètre à la modulation par le bruit près. Par ailleurs, la simulation FDTD de la Figure 4.7g ne semble pas révéler d'anisotropie dans le champ acoustique non plus.

Afin de comprendre cette observation, il faut rappeler à quelles conditions se produit un phénomène de diffraction. De façon générale, ce phénomène se produit lorsque la taille de l'obstacle ou de l'ouverture rencontrée par l'onde est similaire à la longueur d'onde de l'onde. Dans le cas présent, la borne supérieure des dimensions de la source acoustique est un rectangle de 200 nm par 1  $\mu\text{m}$ . Or, la longueur d'onde acoustique longitudinale correspondant à une fréquence de 8 GHz est  $\lambda_0 = c_L/f_0 \gtrsim 1 \mu\text{m}$ . On constate donc que les deux dimensions latérales de la source acoustique sont inférieures à la taille caractéristique de l'onde acoustique. Un phénomène de diffraction significatif est ainsi attendu dans les deux directions. En outre, la distance de l'observateur par rapport à la source est une deuxième condition nécessaire pour observer un motif de diffraction en champ lointain. Dans nos expériences, la diffraction sera d'autant plus marquée que les cartographies de déplacement de surface  $x - y$  sont réalisées sur des échelles plus grandes que les 15  $\mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$  de la Figure 4.7. Dans cette optique, une cartographie de déplacement de surface  $x - y$  de 27  $\mu\text{m} \times 27 \mu\text{m}$  est réalisée pour un retard  $t_d$  identique au cas précédent : 700 ps après la détection du premier écho longitudinal au centre de l'image (Figures 4.12a, c and e). Afin d'éviter toute confusion entre une signature d'anisotropie de forme et une anisotropie cristalline du silicium, nous étudions trois nanofils orientés à environ 45° les uns des autres. Une ligne bleue cyan alignée selon l'orientation du grand axe des nanofils est ajoutée sur les cartographies. L'orientation de chaque nanofil est vérifiée à l'aide d'une caméra CCD positionnée sur le chemin de la sonde dans la configuration en face avant. La position de chaque nanofil par rapport à la cartographie acoustique est ainsi connue sans aucune ambiguïté. Si on considère arbitrairement que le nanofil de la première cartographie (Figure 4.12a) est horizontal (0°), le deuxième nanofil est à 45° et le troisième à -55°. Les trois cartes de chaleur

correspondantes sont présentées sur les Figures 4.12a,c and e. Pour réaliser celles-ci, nous avons procédé à une modification substantielle du dispositif expérimental. Au lieu d'utiliser l'objectif  $100\times$ , dont l'ouverture numérique est  $NA = 0.95$ , pour focaliser le laser de pompe, nous avons utilisé un objectif  $50\times$  dont l'ouverture numérique est  $NA = 0.5$ . Dans cette situation, la tâche de focalisation à  $1/e^2$  de la pompe est maintenant de l'ordre de  $2\mu\text{m}$ . Par conséquent, la borne supérieure de la surface de contact entre le nanofil éclairé et la membrane de silicium est maintenant un rectangle de  $200\text{ nm}$  par  $2\mu\text{m}$  de côté. Une seule dimension de ce rectangle est maintenant de taille inférieure à la longueur d'onde  $\lambda_0$  de l'onde acoustique considérée. C'est cette dimension qui devrait favoriser l'observation d'un phénomène de diffraction. Au contraire, le phénomène devrait être absent dans la direction de  $2\mu\text{m}$  de long de la source. Ainsi, alors que sur la Figure 4.7d, lorsque la tâche du faisceau laser de pompe est de l'ordre de  $1\mu\text{m}$ , on observe des anneaux concentriques, les cartographies des Figures 4.12a, c et e présentent des anneaux incomplets. L'orientation des nanofils étant connue, il semble que le contraste entre chaque anneau soit maximal dans la direction symbolisée par une ligne orange et minimal dans la direction orthogonale symbolisée par la ligne bleue (qui correspond à l'orientation du grand axe du nanofil). Cette observation est nettement mise en évidence dans les panneaux b, d et f de la Figure 4.12 qui sont des profils de déplacement de surface selon les deux directions orthogonales représentées par les lignes orange et bleues. Ces observations sont cohérentes avec le fait que la diffraction est beaucoup plus efficace dans la direction orthogonale au grand axe du nanofil. On note également que la période spatiale entre chaque oscillation diminue au fur et à mesure que la distance à l'épicentre augmente, en accord avec les observations précédentes.

Une simulation FDTD est également réalisée. Par rapport à la Figure 4.7g, seul  $\sigma_x$  est modifié. On prend  $\sigma_x = 2\mu\text{m}$ . La cartographie et les profils correspondants sont présentés sur les Figures 4.12g and h. Les rayons simulés des différents anneaux valent  $6,0\mu\text{m}$ ,  $8,5\mu\text{m}$ ,  $10,3\mu\text{m}$  et  $11,7\mu\text{m}$ , en très bon accord avec les valeurs expérimentales. La séparation spatiale entre chaque rayon diminue de  $2,5\mu\text{m}$  à  $1,8\mu\text{m}$  puis finalement  $1,4\mu\text{m}$ . En outre, la simulation FDTD illustre clairement l'anisotropie cristalline par le fait que les structures annulaires ne sont pas parfaitement circulaires. Cette caractéristique doit être clairement différenciée de l'anisotropie de forme liée à la source acoustique allongée. Cette anisotropie de forme est mise en évidence par la différence nette de contraste entre le profil réalisé le long de la ligne orange et celui réalisé le long de la ligne bleue cyan (qui correspond à l'orientation de l'axe long de la source acoustique). Afin de quantifier cette anisotropie, nous avons entrepris des simulations avec  $\sigma_y$  variant de  $100\text{ nm}$  à  $2\mu\text{m}$ . Des profils selon les deux directions orthogonales, similaires à ceux de la Figure 4.12h, sont obtenus et le rapport entre les amplitudes selon la ligne orange et la ligne bleue cyan est extraite. Comme ce rapport peut, en principe, être extrait des cartographies expérimentales, il serait alors possible d'estimer  $\sigma_y$  et ainsi de quantifier la taille du contact entre le nanofil et son substrat. Cependant, pour  $\sigma_y \leq 1\mu\text{m}$ , des variations de  $\sim 100\text{ nm}$  de la surface d'adhésion entraînent des variations du rapport inférieures à 1% ce qui est indistinguable sur les cartographies expérimentales à cause du niveau de bruit. Finalement, cette cartographie de champ acoustique révèle bien la forme allongée du nanofil et permet d'identifier son

orientation à travers un substrat opaque optiquement mais elle ne permet pas de quantifier la surface d'adhésion.

## IV.6 Approche inverse : excitation d'un nanofil par une onde acoustique

Après avoir étudié en détail la génération d'ondes acoustiques monochromatiques par des nanofils de tailles variées déposés sur une membrane de silicium et excités par un pulse laser ultracourt, nous avons envisagé le dispositif inverse. Le nanofil n'est alors plus utilisé comme nanosource acoustique mais comme capteur nanométrique. Dans cette approche, le dispositif expérimental est identique au schéma de la Figure 4.3 sauf que l'échantillon est retourné : le nanofil fait maintenant face au dispositif en face arrière et la couche d'aluminium est excitée en face avant par le laser de pompe bleu. On se demande alors s'il est possible d'exciter le nanofil par une onde acoustique générée de l'autre côté de la membrane. De la sorte, on espère exciter des modes confinés différents des modes usuellement excités et détectés dans des nanofils par des techniques d'ultrasons laser classiques. En effet, l'hypothèse d'une dilatation initiale homogène de tout le fil, régulièrement utilisée en acoustique picoseconde sur des nano-objets, et qui explique l'observation généralisée des modes de respiration ne pourra plus être utilisée ici. On commence par enregistrer la variation de réflectivité sur la membrane de silicium en interférométrie lorsqu'on génère une onde acoustique sur la couche d'aluminium (Figure 4.13a). Notons d'abord que sans interférométrie, aucun signal n'est détecté. L'instant initial est la coïncidence électronique. En interférométrie on observe deux échos acoustiques longitudinaux à  $t_{L1} = 1,2$  ns et  $t_{L2} = 3,6$  ns ainsi qu'un écho transverse à  $t_S = 1,7$  ns en accord avec les vitesses du son dans le silicium et l'épaisseur de la membrane. Par rapport à la Figure 4.7, on observe que les échos longitudinaux sont beaucoup plus étroits temporellement. En effet, les ondes acoustiques sont générées sur une épaisseur beaucoup plus faible dans l'aluminium que dans le silicium à cause du différentiel d'absorption. En plus des ondes longitudinales et transverses on observe des oscillations à 77,6 GHz (Figure 4.13b) jusqu'à 0,8 ns avant et après les pulses longitudinaux. Ces ondes acoustiques correspondent parfaitement à la fréquence des oscillations Brillouin[219] dans le silicium :

$$f_{\text{Brillouin}} = \frac{2c_L^{\text{SI}}n(\lambda)}{\lambda} = 77,6 \text{ GHz} \quad (4.4)$$

avec  $\lambda = 800$  nm,  $n(\lambda) = 3,68$ [83] et  $c_L^{\text{SI}} = 8,43$   $\mu\text{m ns}^{-1}$ . Ces oscillations sont liées aux interférences entre le front d'onde acoustique qui se propage vers la surface de la membrane et la surface de la membrane elle-même[64]. Ces interférences sont rencontrées dans l'étude de substrats transparents. Ici, l'apparition des oscillations environ 0,8 ns avant l'arrivée de l'onde acoustique longitudinale à

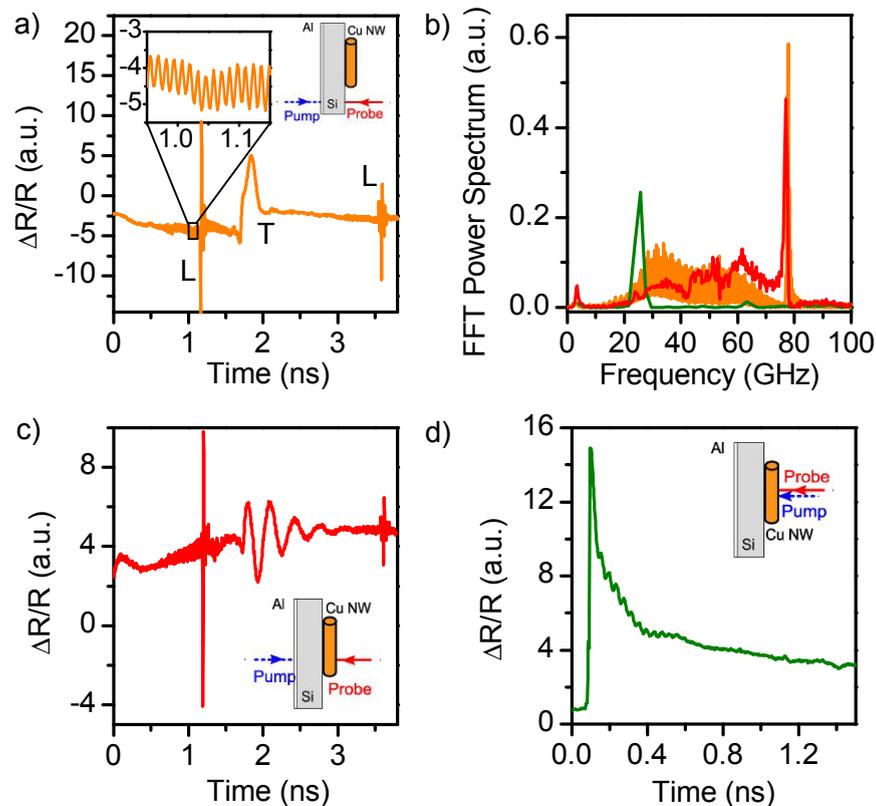


FIGURE 4.13: (a) Signal de réflectivité interférométrique en transmission lorsque la pompe bleue génère une onde acoustique dans l'aluminium et que la sonde rouge détecte de l'autre côté de la membrane de silicium directement sur le silicium (schéma en insert). On observe deux échos acoustiques longitudinaux à  $t_{L1} = 1,2$  ns et  $t_{L2} = 3,6$  ns ainsi qu'un écho transverse à  $t_S = 1,7$  ns. On observe également une oscillation Brillouin, de période  $T = 13$  ps, jusqu'à 0,8 ns avant et après les échos longitudinaux. (b) FFT réalisée sur les traces temporelles (a), (c) et (d). Dans la FFT de (a) on observe le seul pic caractéristique des oscillations Brillouin à 77,6 GHz. Dans la FFT de (d), on observe le pic à  $25 \pm 1$  GHz du mode de respiration fondamentale du nanofil ainsi que le son premier harmonique à  $63 \pm 1$  GHz. Enfin, dans la FFT de (c), on observe le même pic des oscillations Brillouin ainsi qu'une composante basse fréquence à 3 GHz. L'ensemble des composantes large bande entre 20 GHz et 70 GHz dans les FFT de (a) et (c) sont liées aux échos longitudinaux principalement. (c) Signal de réflectivité obtenu sur un nanofil de cuivre lorsque la pompe bleue génère une onde acoustique dans l'aluminium (schéma en insert). En plus des échos et de l'oscillation Brillouin similaires à ce qui est obtenu en (a), on observe une basse fréquence à 3 GHz excitée par l'onde transverse. (d) Signal de réflectivité relative  $\Delta R/R$  obtenu dans la configuration en face avant (voir schéma en insert) sur le même nanofil que pour l'expérience (b). La composante oscillante possède une période temporelle  $T = 40 \pm 3$  ps.

la surface de la membrane signifie que la sonde rouge pénètre près de  $7\ \mu\text{m}$  dans le silicium en accord avec la longueur de pénétration de la lumière rouge ( $\lambda = 800\ \text{nm}$ ) dans le silicium qui est de l'ordre de  $12\ \mu\text{m}$ [83]. Lorsqu'on positionne le nanofil de cuivre de  $120\ \text{nm}$  de diamètre sous la sonde (Figure 4.13c) et qu'on réalise une détection purement réflectométrique<sup>4</sup> on observe les mêmes composantes qu'en interférométrie sans le fil (Figure 4.13a) à l'exception de la composante transverse à  $t_S = 1,7\ \text{ns}$  qui est suivie d'une oscillation basse fréquence à  $3\ \text{GHz}$  (FFT Figure 4.13b). On en déduit que l'onde acoustique transverse excite des modes de vibration du nanofil à cette fréquence. Notons que cette composante à  $3\ \text{GHz}$  pour des nanofils de cuivre de  $120\ \text{nm}$  de diamètre était déjà présente lors de l'expérience inverse de génération d'ondes acoustiques par le nanofil (Figure 4.11b). Cette oscillation n'est pas présente dans une mesure de réflectivité en face avant (Figure 4.13) sur le même nanofil. Comme nous l'avons reporté dans la partie précédente, il semble donc qu'on mette en évidence l'excitation de modes de contact basse fréquence du nanofil, préférentiellement excités par des sollicitations transverses. Notons que ces résultats sont proches de ce qui a été reporté récemment par l'équipe de Jean-Yves Bigot à Strasbourg[116]. Cependant, on n'observe pas de modes quadripolaires ici puisque leur fréquence pour ces nanofils de cuivre est de l'ordre de  $13\ \text{GHz}$ . Finalement, cette géométrie d'excitation et de détection des ondes acoustiques permet de montrer qu'un nanofil unique peut être utilisé à la fois comme un transducteur nanométrique d'ondes acoustiques mais également comme un détecteur nanométriques d'ondes acoustiques. Par ailleurs, cette géométrie pourrait permettre d'exciter des modes acoustiques peu ou pas observés avec une géométrie pompe-sonde en face avant pour laquelle l'excitation par un laser limite l'excitation et la détection à des modes de respiration.

En conclusion, des nanofils de cuivre de  $400\ \text{nm}$  et  $120\ \text{nm}$  de diamètre, fabriqués par croissance électrochimique dans les pores d'une membrane ont été utilisés pour générer des phonons acoustiques longitudinaux monochromatiques (de  $8$  à  $27\ \text{GHz}$ ), avec une résolution submicronique. On utilise d'abord une expérience pompe-sonde en réflectivité et on attribue l'oscillation monochromatique observé au mode de respiration fondamental du nanofil. Puis on réalise des expériences d'ultrasons laser en transmission à travers des membranes de silicium. Les ondes acoustiques ainsi générées par le nanofil en vibration sont cartographiées spatialement en transmission et résolues en temps. Par ailleurs, la forte anisotropie de forme du champ acoustique transmis est attribuée au grand rapport d'aspect des nanofils étudiés. La propagation de ces phonons acoustiques gigahertz produits par les nanofils de cuivres a été modélisée grâce à des simulations de différences finies dans le domaine temporel qui sont en très bon accord avec les données expérimentales. La transmission des vibrations acoustiques d'un nanofil à travers une membrane de silicium de  $10\ \mu\text{m}$  d'épaisseur montre la très bonne adhésion de ces objets nanométriques simplement déposés sur le substrat. Ce contact produit un canal de dissipation très important pour l'oscillateur mécanique nanométrique

---

4. De la même façon qu'avec les nanopoutres d'or de la partie III.4 ou qu'avec les nanoparticules d'or de l'équipe de Yannick Guillet[85], il n'est pas à exclure qu'on réalise tout de même un interféromètre à chemin commun où le bras de référence est la surface de la membrane de silicium et le bras échantillon est la surface du nanofil de cuivre.

que constitue le nanofil. En outre, cette technique de génération d'ondes acoustiques pourrait être utilisée pour quantifier la surface d'adhésion entre le nano-résonateur et son substrat si de meilleurs rapports signal sur bruit étaient atteints dans la cartographie du champ acoustique. On pourrait également envisager de modifier le couplage entre le nano-objet et son substrat par des traitements de surface afin d'exalter ou d'inhiber l'émission d'ondes acoustiques produites par le nanofil dans le substrat. La génération d'ondes acoustiques longitudinales sur des dimensions nanométriques pourrait également permettre d'améliorer la résolution de la microscopie acoustique en utilisant par exemple des techniques de synthèse d'ouverture (« synthetic aperture focusing techniques »)[110]. Dans cette optique, l'implémentation de ces transducteurs nanométriques sur des dispositifs permettant le balayage spatial d'un échantillon est la prochaine étape vers la microscopie acoustique de résolution latérale nanométrique. Dans ce but, nous proposons dans la partie suivante l'utilisation d'une pointe AFM dans laquelle nous générons des ondes acoustiques par excitation laser. À l'opposé de la génération par un nanofil, nous avons également montré que les nanofils pouvaient être excités par une onde acoustique longitudinale. Cette démonstration pourrait permettre d'observer des modes acoustiques impossibles à générer par l'absorption directe d'un pulse laser.



# Chapitre 5

## De l'AFM à la microscopie acoustique de résolution nanométrique

### Sommaire

---

<b>V.1 Principe</b> . . . . .	<b>124</b>
<b>V.2 Montage expérimental</b> . . . . .	<b>127</b>
<b>V.3 Caractéristiques du champ acoustique</b> . . . . .	<b>129</b>
V.3.1 Étude temporelle . . . . .	129
V.3.2 Insensibilité au positionnement de la pompe . . . . .	130
V.3.3 Longueur d'onde acoustique . . . . .	131
V.3.4 Cartographie spatio-temporelle . . . . .	133
V.3.5 Simulations par éléments finis . . . . .	133

---

*Dans ce chapitre, nous utilisons une expérience d'ultrasons laser pour montrer qu'il est possible de guider des ondes acoustiques gigahertz dans une pointe AFM en silicium. Cette pointe d'AFM est ensuite utilisée pour générer des ondes acoustiques de surface sur une plaque de verre recouverte d'une couche métallique de titane de 100 nm d'épaisseur. L'émission de ces ondes acoustiques est étudiée dans le domaine temporel et spatial. Ces ondes acoustiques sont générées sur une dimension spatiale nanométrique par la pointe d'AFM mais les phénomènes de réflexions multiples lors de la propagation des ondes acoustiques dans la pointe entraînent un élargissement temporel du pulse acoustique. On montre alors que la pointe d'AFM est une source acoustique quasi-ponctuelle spatialement mais très étalée dans le domaine temporel. Ces expériences sont ensuite complétées par des simulations par éléments finis. Enfin, on présente des perspectives de ce qui pourrait constituer une preuve de concept d'un microscope acoustique de résolution nanométrique qui permettrait, à l'instar des techniques de nano-indentation, de réaliser la cartographie des propriétés mécaniques d'un substrat avec une résolution latérale nanométrique mais en ajoutant la possibilité de sonder ces propriétés en profondeur.*

## V.1 Principe

Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre précédent, la résolution spatiale latérale des expériences d'ultrasons laser reste limitée par la diffraction de la lumière à des tailles de l'ordre du micromètre. Afin d'atteindre une résolution latérales submicronique, de nombreuses approches ont été proposées[67, 143, 144, 227, 205, 19, 17, 133, 236, 142, 6] et sont décrites plus en détails en introduction du chapitre 4. Nous avons par ailleurs démontré dans le chapitre 4 qu'un nanofil unique pouvait être utilisé pour générer une onde acoustique avec une extension latérale nanométrique. Cependant, cette démonstration est loin d'atteindre la preuve de concept de la microscopie acoustique de résolution latérale nanométrique. En effet, le nanofil ne peut pas être déplacé à la surface de l'échantillon ce qui limite l'intérêt pour réaliser de l'imagerie acoustique. De plus, même s'il est possible de filtrer temporellement ou fréquentiellement pour ne considérer que le signal acoustique généré par le nanofil, une partie du laser de pompe focalisé sur une surface plus grande que le nanofil excite directement l'échantillon. Il faut donc imaginer un système qui permette de se déplacer facilement sur l'échantillon et d'exciter spécifiquement un objet nanométrique uniquement.

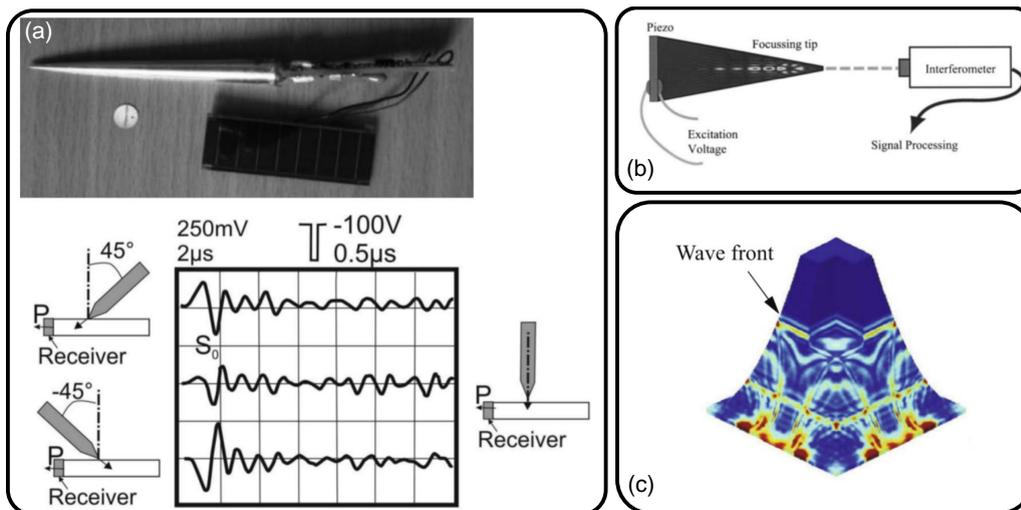


FIGURE 5.1: (a) Haut : Stylet de duralium utilisé pour guider des ondes acoustiques pour l'écriture numérique. Bas : Modification du signal acoustique obtenu en fonction de l'orientation du stylet. Figures extraites du travail de D. Fournier et J. P. Nikolovski[170] (b) Schéma du dispositif expérimental utilisé par D. M. Profunser *et al.*[188] pour étudier la propagation des ondes dans une pointe de PMMA. (c) Simulation numérique par différences finies (FDTD) de la propagation d'ondes acoustiques dans une pointe de silicium de 800 nm de long. Amplitude du champ de déplacement après 60 ps de propagation[28].

Afin de n'exciter que le nano-objet, l'utilisation de nano-objets coniques pourraient être intéressante : on peut exciter une onde acoustique grâce à un laser sur la base du cône de dimension micrométrique, cette onde se propage dans le nano-objet jusqu'à son extrémité la plus petite, de dimension nanométrique. La propagation d'ondes acoustiques dans des solides coniques à des fins

de détection a déjà explorée par le passé dans des guides d'ondes millimétriques (Figure 5.1). Par exemple, dans le cadre du développement de stylets pour l'écriture numériques, la propagation d'ondes acoustiques dans des pointes de duralium coniques de 55 mm de longueur a été étudiée dès le début des années 1990[170, 169]. Dans ce cas, des ondes de Lamb étaient excitées grâce un transducteur piézoélectrique installé à la base du cône. D'autres études numériques ou expérimentales ont également été menées au début des années 2000[188, 28]. Ces dernières se rapprochent de ce que nous souhaiterions faire puisqu'il était déjà évoqué le concept d'utiliser la pointe conique comme d'une « lentille acoustique ». Par ailleurs il était envisagé d'utiliser un dispositif d'acoustique picoseconde pour générer et détecter les ondes acoustiques dans la pointe.

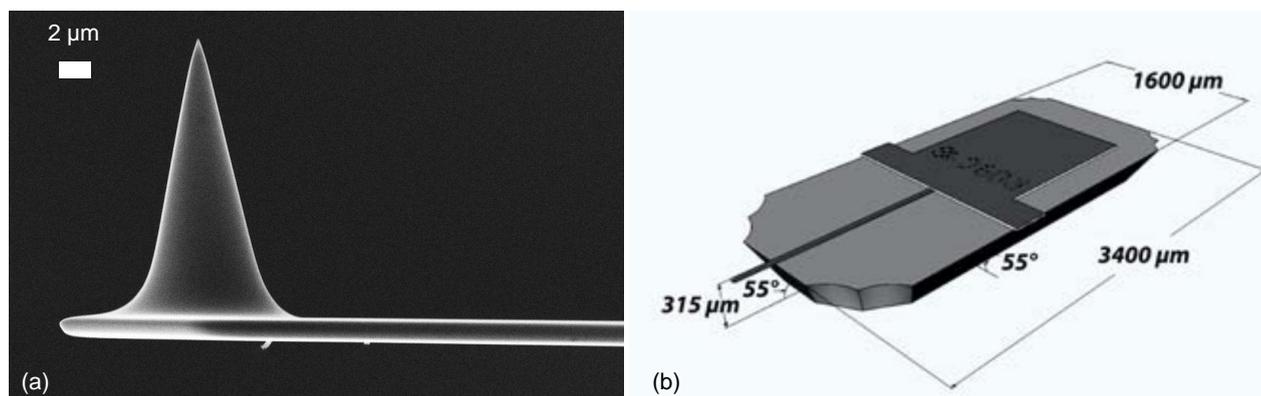


FIGURE 5.2: (a) Observation au microscope électronique d'une pointe AFM en silicium Aspire CT 130[163] utilisée dans ce chapitre. Le diamètre de la base est de l'ordre de 10 μm, la hauteur de la pointe est de l'ordre de 20 μm et le rayon de courbure en bout de pointe est de l'ordre de 10 nm. (b) Dimensions du support du cantilever. Schéma extrait de la fiche de caractéristiques du fabricant[163].

Afin de pouvoir se déplacer facilement sur la surface d'un échantillon à caractériser avec une résolution latérale nanométrique, on envisage d'utiliser une pointe d'AFM en silicium montée sur son cantilever (Figure 5.2). On pourrait ainsi exciter une onde acoustique à la base de la pointe AFM à l'aide d'un pulse laser femtoseconde. Cette onde acoustique pourrait alors se propager le long de la pointe. Au bout de la pointe, une partie de l'énergie acoustique serait transmise quand une autre partie serait réfléchiée en accord avec les coefficients de transmission et de réflexion (équation 5.1 et 5.2) qui sont liés aux désaccords d'impédance acoustique (Tableau en Annexe B.1) entre la pointe et le matériau sur lequel on vient la mettre en contact. L'impédance acoustique étant par définition  $Z_i = \rho_i c_{L,i}$ , où  $\rho_i$  est la masse volumique du matériau et  $c_{L,i}$  la vitesse longitudinale du son ( $i$  étant soit la pointe soit le substrat). On peut alors détecter l'intensité acoustique réfléchiée ou transmise et réaliser une cartographie d'adaptation d'impédance entre le matériau de la pointe et un échantillon à cartographier.

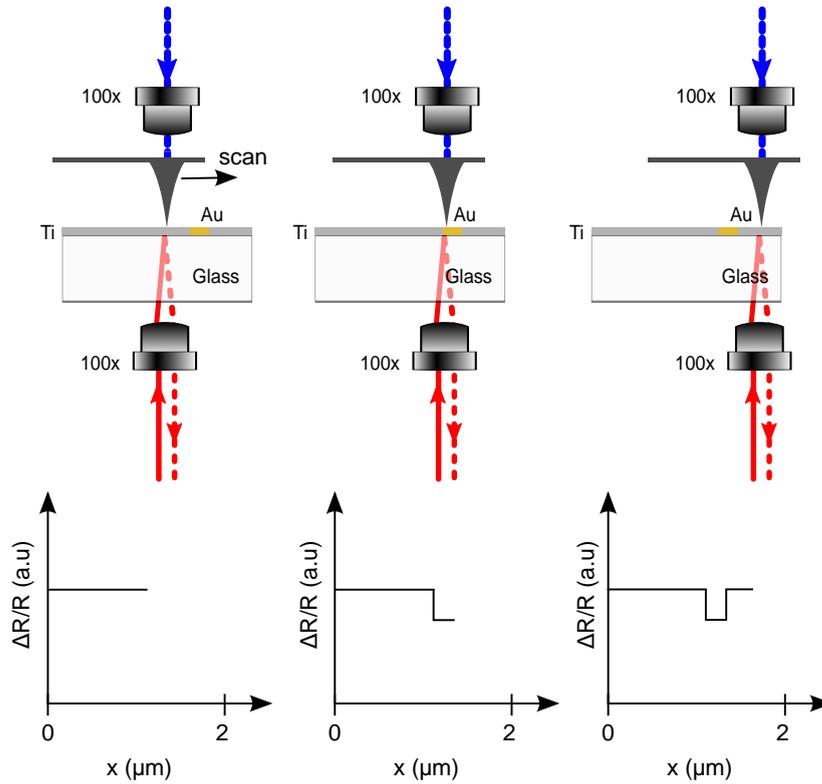


FIGURE 5.3: Schéma de principe d'un instrument de microscopie acoustique de résolution latérale nanométrique utilisant une pointe d'AFM en silicium et un dispositif d'acoustique picoseconde. Une onde acoustique est générée par le laser de pompe bleu sur le cantilever de la pointe d'AFM, l'onde se propage jusqu'au bout de la pointe puis est transmise à la couche mince à étudier avec un coefficient de transmission qui dépend du désaccord d'impédance acoustique. L'amplitude de cette onde acoustique transmise est détectée en transmission par le laser de sonde. La résolution latérale est dictée par la pointe même si le laser de sonde est de dimension micrométrique.

$$\left\{ \begin{array}{l} R = \left( \frac{Z_{\text{pointe}} - Z_{\text{substrat}}}{Z_{\text{pointe}} + Z_{\text{substrat}}} \right)^2 \\ T = \frac{4Z_{\text{pointe}} Z_{\text{substrat}}}{(Z_{\text{pointe}} + Z_{\text{substrat}})^2} \end{array} \right. \quad (5.1)$$

Ce principe est résumé sur la Figure 5.3. On considère une couche de verre sur laquelle est déposée une couche mince métallique de 100 nm d'épaisseur de titane par exemple. Considérons également que cette couche mince a été structurée de sorte qu'on a réalisé un motif de dimensions nanométriques d'un autre matériau (de l'or par exemple) sans que cette structuration soit visible d'un point de vue topographique. Considérons maintenant qu'une pointe d'AFM en silicium est mise

en contact avec la surface de l'échantillon et qu'on réalise un scan selon une dimension spatiale. On choisit un délai temporel entre la pompe et la sonde suffisant pour que l'onde acoustique générée par le laser de pompe bleu à la base de la pointe d'AFM ait le temps de se propager jusqu'à la couche métallique. On enregistre la transmission relative de l'énergie acoustique de l'autre côté de la couche mince grâce à la variation de la réflectivité du laser de sonde au fur et à mesure qu'on se déplace sur l'échantillon. Tant que la pointe est en contact avec le titane, le signal de réflectivité relative lié à l'onde acoustique est constant, mais lorsque la pointe entre en contact avec l'or, le désaccord d'impédances acoustiques augmente ( $Z_{\text{SI}} = 20 \times 10^6 \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ,  $Z_{\text{Ti}} = 27 \times 10^6 \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  et  $Z_{\text{Au}} = 70 \times 10^6 \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) et la transmission d'énergie acoustique diminue entre la pointe et la couche métallique. En détection, la variation relative de réflectivité diminue.

On détecte donc bien la variation d'impédance acoustique entre la pointe et la couche mince. De plus, cette détection est bien nanométrique et limitée par le rayon de courbure de la pointe d'AFM. En effet, même si la détection est micrométrique, c'est bien le déplacement nanométrique de la pointe qui fait varier la transmission acoustique qui est détecté par cette technique. Notons que des variations de réflectivité relative peuvent être entraînées par une modification de la détection. Cependant, comme on envisage une détection interférométrique, on est essentiellement sensible au déplacement de surface qui est faiblement impacté par les variations de coefficient photoélastique. Cette technique pourrait permettre d'enrichir l'éventail des techniques d'AFM de caractérisation topologique[20] et mécanique[166]. Afin de présenter une première preuve du concept, nous envisageons une simple couche de titane et nous caractérisons l'émission acoustique produite par la pointe en contact avec la couche métallique.

## V.2 Montage expérimental

Le dispositif expérimental est très similaire au dispositif du chapitre 4. Le laser de pompe est focalisé au moyen d'un objectif  $100\times$  et d'ouverture numérique 0,95 sur le cantilever de la pointe d'AFM (Aspire CT130-R Conical Soft Tapping Mode AFM Probes) sur lequel est déposé une couche d'aluminium que nous utilisons comme transducteur. On utilise des puissances de pompe supérieures à celles utilisées précédemment avec des nano-objets. Ici, la puissance moyenne utilisée approche 3 mW, soit une densité surfacique d'énergie déposée par pulse de  $W_p = 120 \text{ pJ } \mu\text{m}^{-2}$ . La détection du champ acoustique est assurée en face arrière par un interféromètre de Michelson de la même façon qu'au chapitre 4. La difficulté du montage expérimental réside ici dans le positionnement relatif des objectifs de pompe, de sonde (tous les deux sont des objectifs corrigés à l'infini  $100\times$  Mitutoyo Plan Apo SL dont l'ouverture numérique est  $NA = 0,55$ ), de la pointe d'AFM et de l'échantillon. C'est pourquoi nous utilisons deux platines de positionnement piézoélectrique tridimensionnelles et une platine bidimensionnelle. Le déplacement du cantilever de la pointe d'AFM se fait donc sur un champ  $300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$  avec une précision nanométrique. L'échantillon est lui aussi monté sur une

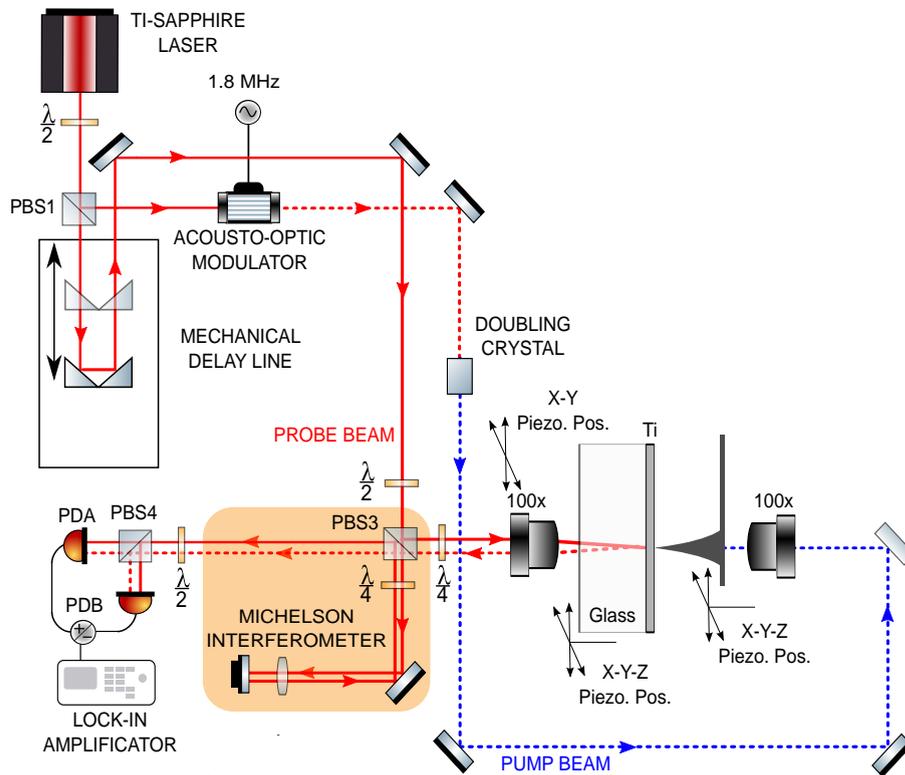


FIGURE 5.4: Schéma simplifié du dispositif expérimental. Le laser de pompe est focalisé sur le cantilever qui supporte la pointe d'AFM en silicium à l'aide d'un objectif corrigé à l'infini Mitutoyo Plan Apo SL (100 $\times$ , ouverture numérique NA = 0,55). L'onde acoustique générée se propage dans la pointe AFM et est transmise au substrat sous-jacent. Le faisceau rouge de sonde est focalisé à travers une lame de verre sur l'arrière de la couche de 100 nm de titane. Le déplacement de surface au niveau de cette couche métallique est enregistré à l'aide d'un interféromètre de Michelson. L'objectif de la sonde (100 $\times$ , ouverture numérique NA = 0,55, objectif corrigé à l'infini Mitutoyo Plan Apo SL) est monté sur une platine piézoélectrique deux axes PI pilotée pour réaliser des cartographies du champ de déplacement de surface (surface maximale de 150  $\mu\text{m} \times 150 \mu\text{m}$ ). L'échantillon de titane déposé sur du verre est monté sur une platine piézoélectrique PI trois axes (surface maximale de 100  $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ ) et le cantilever de la pointe AFM est monté sur une platine piézoélectrique trois axes PI (surface maximale de 300  $\mu\text{m} \times 300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$ ).

platine piézoélectrique tridimensionnelle 100  $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ . L'objectif de sonde est monté sur une platine piézoélectrique bidimensionnelle 100  $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ . L'objectif de pompe est monté sur une platine manuelle dont les déplacements sont centimétriques dans les trois dimensions. On commence d'abord par aligner les lasers de pompe et de sonde l'un par rapport à l'autre. On peut alors positionner l'échantillon de verre recouvert de titane (manuellement dans la limite de 100  $\mu\text{m}$  du point de focalisation). Une fois ce positionnement réalisé, on réalise l'approche critique du cantilever d'AFM : on doit amener le cantilever manuellement à moins de 300  $\mu\text{m}$  de l'échantillon en ce qui concerne la profondeur et à moins de 300  $\mu\text{m}$  du laser de pompe en ce qui concerne le positionnement latéral. La verticalité de l'échantillon et du cantilever d'AFM sont également critiques pour que la

pointe d'AFM soit effectivement mise en contact avec le substrat. Un mauvais alignement vertical peut conduire au contact entre le substrat et le support du cantilever (Figure 5.2b). Une fois tout le positionnement réalisé, on peut abaisser la pointe d'AFM délicatement pour la mettre en contact avec le substrat grâce au contrôle potentiométrique de la platine piézoélectrique. Le point de contact est contrôlé grâce à un dispositif d'imagerie en lumière blanche avec une caméra CCD : lorsque la pointe entre en contact avec l'échantillon, le cantilever entre en flexion et la lumière blanche se réfléchit différemment sur le cantilever ce qui entraîne une modification de teinte et de contraste. Pour l'heure, aucun système automatique ou de contrôle de force n'a été mis en place pour ce positionnement. Les pointes AFM sont examinées au microscope électronique a posteriori pour s'assurer de leur intégrité.

## V.3 Caractéristiques du champ acoustique

### V.3.1 Étude temporelle

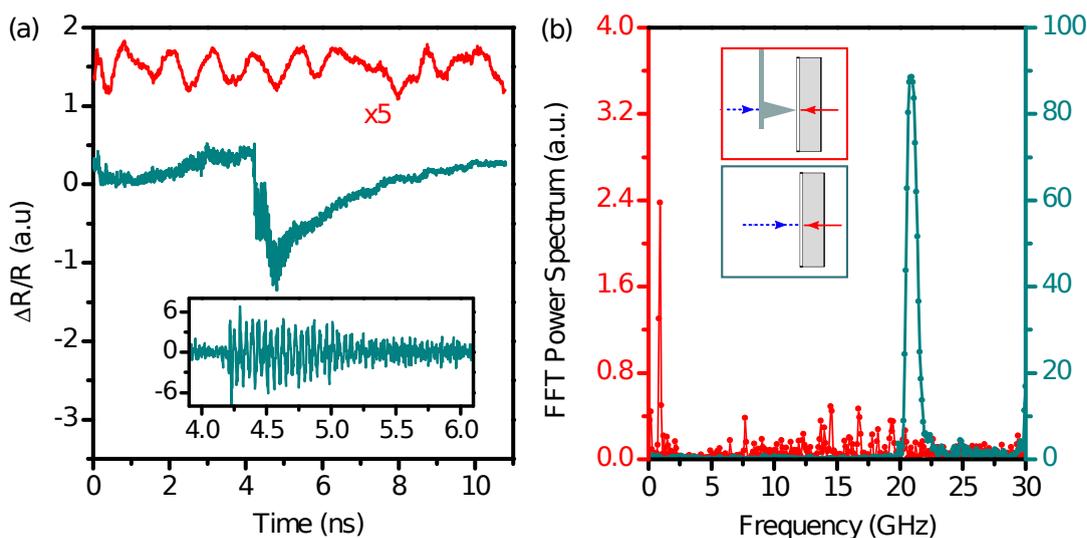


FIGURE 5.5: (a) Signaux expérimentaux de réflectivité relative en interférométrie. La coïncidence temporelle entre la pompe et la sonde a lieu à  $t_c = 4,2$  ns. Sans la pointe AFM, lorsque la pompe excite directement des ondes acoustiques dans la couche de titane (trace turquoise en bas, voir insert de la Figure 5.5b), on observe une oscillation Brillouin à  $f_B = 20,9$  GHz (signal dérivé en insert) qui dure environ 2 ns. Lorsque c'est la pointe AFM qui génère une onde acoustique dans la couche de titane et le verre (trace rouge en haut, voir insert de la Figure 5.5b), on observe un signal basse fréquence à  $f_{AFM} = 1,0 \pm 0,2$  GHz qui dure plus longtemps que le taux de répétition du laser. Ce signal est amplifié d'un facteur 5 sur la Figure. (b) Spectre de puissance de la transformée de Fourier rapide (FFT) des deux signaux temporels de la Figure 5.5a. On note l'absence de la fréquence des oscillations Brillouin sur le signal rouge. En insert sont représentés les schémas de principe des expériences menant aux traces rouge et turquoise.

La première expérience que nous réalisons est décrite en insert de la Figure 5.5b. Sur l'insert turquoise, la pompe et la sonde sont focalisées sur le même point, de part et d'autre de la couche de titane. On enregistre alors la variation relative de réflectivité différentielle entre les deux diodes de l'interféromètre de Michelson (Figure 5.4) afin d'enregistrer essentiellement le déplacement de surface hors plan provoqué par la génération d'une onde acoustique. Le signal temporel obtenu sur toute la longueur de la ligne à retard est représenté sur la Figure 5.5a. La coïncidence temporelle entre la pompe et la sonde a lieu à  $t_c = 4,2$  ns. Après cette coïncidence on observe une oscillation monochromatique à la fréquence  $f_B = 20,9$  GHz (signal dérivé en insert et spectre fréquentiel en Figure 5.5b) qui dure environ 1,5 ns. Cette fréquence est en adéquation avec la fréquence des oscillations Brillouin dans le verre borosilicaté que nous utilisons en prenant pour indice de réfraction optique  $n_{\text{verre}}(800 \text{ nm}) = 1,52$  (on a pris les propriétés élastiques de la silice en annexe B). Cet indice est en adéquation avec l'indice à 852 nm des verres borosilicatés Schott[1].

$$f_B = \frac{2c_L^{\text{verre}} n_{\text{verre}}(\lambda)}{\lambda} = 20,9 \text{ GHz} \quad (5.3)$$

En revanche, lorsque la pointe d'AFM est mise en contact avec la couche de titane en face de la sonde et qu'on génère une onde acoustique dans la pointe avec la pompe (Figure 5.5 en rouge), on n'observe plus cette oscillation Brillouin. On peut supposer que cela est dû à l'atténuation des plus hautes fréquences pendant la propagation dans la pointe de silicium. On observe au contraire une oscillation basse fréquence à  $f_{\text{AFM}} = 1,0 \pm 0,2$  GHz dont le début est difficile à identifier. On s'attend à ce que l'onde acoustique générée par la pointe arrive avec un retard de l'ordre de 2,4 ns sur le temps de coïncidence à  $t_c = 4,2$  ns (le temps de vol d'une onde longitudinale dans la pointe en silicium dont la longueur est de l'ordre de 20  $\mu\text{m}$ ). Ici, les oscillations basses fréquences sont observables sur tous les délais temporels explorables compte tenu du taux de répétition de notre laser. Ces oscillations sont moins visibles pour des temps supérieurs à 6,2 ns vraisemblablement à cause d'une superposition destructive des oscillations générées par deux pulses de pompe successifs.

### V.3.2 Insensibilité au positionnement de la pompe

Afin de s'assurer que les oscillations observées sur la Figure 5.5 avec la pointe d'AFM en contact avec la couche de titane sont effectivement des ondes acoustiques émises par la pointe, on réalise une cartographie spatiale du champ de déplacement à un temps fixe de  $t = 2,1$  ns pour deux positions de la pompe. On réalise la première cartographie (Figure 5.6a) lorsque la pompe génère une onde acoustique au centre de la base de la pointe. Sur cette cartographie où la sonde est déplacée sur une surface  $23 \mu\text{m} \times 23 \mu\text{m}$ , on observe un épicycle intense à la position  $X = 16 \mu\text{m}$  et  $Y = 12 \mu\text{m}$ . En s'éloignant de l'épicycle, on observe des cercles concentriques dont on discutera la fréquence de répétition par la suite. À ce stade, il semble que les ondes acoustiques transmises de la pointe

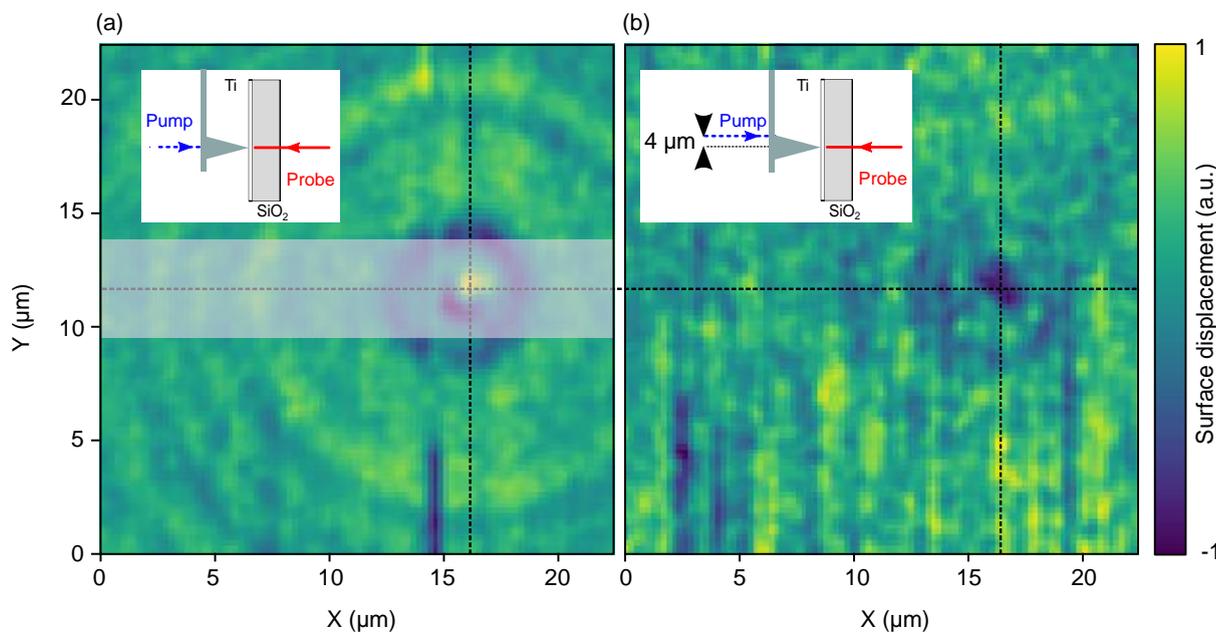


FIGURE 5.6: (a) Cartographie ( $23\ \mu\text{m} \times 23\ \mu\text{m}$ ) des déplacements de surface hors plan lorsque la pointe AFM est en contact avec la couche de titane et que le laser de pompe génère une onde acoustique au centre de la base de la pointe (voir insert). La cartographie est réalisée à l'instant  $t = 2,1\ \text{ns}$  si on se réfère à la Figure 5.5. La bande blanche semi-transparente représente la zone sur laquelle est réalisée la Figure 5.7. (b) Cartographie ( $23\ \mu\text{m} \times 23\ \mu\text{m}$ ) des déplacements de surface hors plan lorsque la pointe AFM est en contact avec la couche de titane et que le laser de pompe génère une onde acoustique sur le bord de la base de la pointe (voir insert). La cartographie est réalisée à l'instant  $t = 2,1\ \text{ns}$  si on se réfère à la Figure 5.5. Sur les deux Figures, les lignes pointillées noires mettent en évidence que le centre de l'onde acoustique générée n'est pas déplacé malgré le déplacement du laser de pompe.

AFM au substrat de titane sur verre génèrent des ondes acoustiques de surface pseudo-Rayleigh. Sur la deuxième cartographie (Figure 5.6b), réalisée avec les mêmes dimensions que la Figure 5.6a, on a déplacé latéralement la pompe de  $4\ \mu\text{m}$  environ par rapport au centre de la base de la pointe (voir insert de la Figure 5.6b). Sur la cartographie, on observe toujours un épicycle sur la position  $X = 16\ \mu\text{m}$  et  $Y = 12\ \mu\text{m}$  et on devine le premier anneau d'onde de surface générée même si la génération est beaucoup moins efficace que dans la première cartographie où la pompe était centrée. Ainsi, on montre bien que la position d'émission d'ondes acoustiques dépend de la seule position de la pointe AFM sur l'échantillon et pas de la position de la pompe.

### V.3.3 Longueur d'onde acoustique

On cherche maintenant à caractériser le type d'onde acoustique émise lors de la transmission d'une onde longitudinale se propageant dans la pointe de silicium à la plaque de verre surmontée

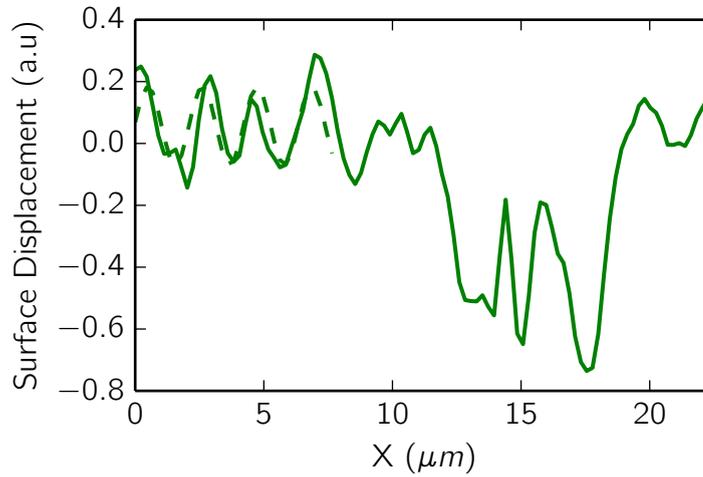


FIGURE 5.7: Déplacement de surface hors plan selon X le long de la zone blanche de la Figure 5.6. Le déplacement est moyenné sur la largeur de la bande blanche. La longueur d'onde spatiale est extraite des quatre anneaux extérieurs à l'aide d'un ajustement sinusoïdal. On obtient une longueur d'onde  $\lambda_{AFM} = 2,9 \pm 0,2 \mu m$  en accord avec une fréquence  $f_{AFM} = 1,0 \pm 0,2 GHz$  pour des ondes de Rayleigh dont la célérité est  $c_R = 2,9 \mu m ns^{-1}$ .

d'une couche mince de titane. Pour cela, on réalise un profil de déplacement de surface hors plan selon X le long de la zone blanche de la Figure 5.6a. Le déplacement est moyenné sur la largeur de la bande blanche pour augmenter le rapport signal sur bruit. Le résultat est présenté sur la Figure 5.7. Entre  $X = 0 \mu m$  et  $X = 8 \mu m$ , on observe trois oscillations complètes qui correspondent aux quatre anneaux concentriques extérieurs de la Figure 5.6a. Un ajustement par une fonction sinusoïdale de ces oscillations (en pointillés sur la Figure 5.7) permet d'extraire la période spatiale de ces oscillations :  $\lambda_{AFM} = 2,9 \pm 0,2 \mu m$ . Sachant que la période temporelle de ces mêmes oscillations est de  $f_{AFM} = 1,0 \pm 0,2 GHz$ , on peut déterminer que la vitesse de ces ondes acoustique est  $c_{AFM} = \lambda_{AFM} f_{AFM} = 2,9 \pm 0,6 \mu m ns^{-1}$ . Or, la vitesse de ondes de Rayleigh,  $c_{R,Ti}$ , dans le titane peut être approchée par

$$c_{R,Ti} = \left( \frac{0.862 + 1.14 \nu_{Ti}}{1 + \nu_{Ti}} \right) c_{T,Ti} = 2,9 \mu m ns^{-1} \quad (5.4)$$

On en déduit donc qu'on émet bien des ondes de Rayleigh dans le titane au point source nanométrique de la pointe d'AFM. Ces ondes sont émises avec une fréquence temporelle de l'ordre de  $f_{AFM} = 1,0 \pm 0,2 GHz$  pendant une durée supérieure à 12 ns, une durée très supérieure à la largeur temporelle du pulse acoustique généré à la base de la pointe par l'échauffement de la couche d'aluminium par le pulse femtoseconde du laser de pompe. En effet, les réflexions multiples à l'intérieur de la pointe lors de la propagation des ondes acoustiques entraînent un élargissement temporel du pulse acoustique que nous étudions par des simulations d'éléments finis par la suite.

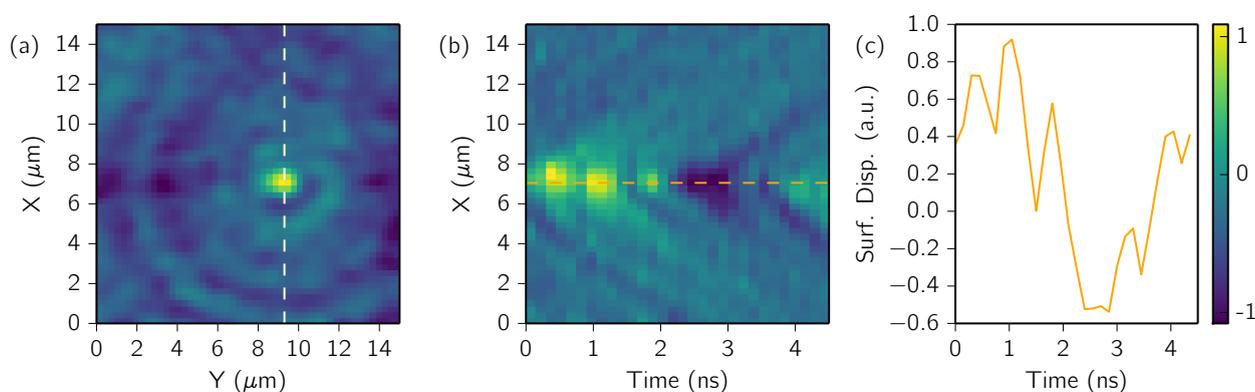


FIGURE 5.8: (a) De façon similaire à la Figure 5.6a, cartographie ( $15\ \mu\text{m} \times 15\ \mu\text{m}$ ) du déplacement de surface hors plan lorsque la pointe AFM est en contact avec la couche de titane et que le laser de pompe génère une onde acoustique au centre de la base de la pointe. La cartographie est réalisée à l'instant  $t = 2,1\ \text{ns}$  si on se réfère à la Figure 5.5. (b) Même déplacement de surface hors plan enregistré selon la ligne blanche pointillée de la Figure 5.8a pour différentes positions temporelles. (c) Même déplacement de surface hors plan enregistré selon la ligne pointillée orange de la Figure 5.8b. Cette dernière Figure présente des oscillations à la fréquence  $f_{\text{AFM}} = 1,2 \pm 0,2\ \text{GHz}$  en accord avec la longueur d'onde mesurée sur la Figure 5.7 et la fréquence mesurée sur la Figure 5.5.

### V.3.4 Cartographie spatio-temporelle

Comme au chapitre 4, il est également possible de réaliser une cartographie spatio-temporelle pour étudier l'évolution du champ de déplacement acoustique au cours du temps. Pour cela, on peut réaliser un film juxtaposant plusieurs cartographies spatiales  $X - Y$  au cours du temps. Comme ces cartographies (Figure 5.8a) sont axisymétriques, on peut également réaliser la cartographie à deux dimensions selon une direction d'espace ( $X$ ) et une dimension de temps. C'est ce que l'on représente sur la Figure 5.8b. On observe l'évolution spatio-temporelle d'au moins quatre anneaux. La pente des droites que décrivent ces anneaux dans cette représentation donne accès directement à la vitesse des ondes acoustiques qu'on mesure à  $c_{\text{R}} = 3,0 \pm 0,2\ \mu\text{m ns}^{-1}$  en accord avec la vitesse de Rayleigh des ondes de surface dans du titane. Par ailleurs, on peut retrouver une figure dans le domaine temporel en étudiant les oscillations de déplacement de surface selon une ligne à la position de l'épicentre en  $X = 7\ \mu\text{m}$  (Figure 5.8c). Malgré la faible résolution temporelle de cette figure, on obtient des oscillations dont la fréquence est de l'ordre de 1 GHz.

### V.3.5 Simulations par éléments finis

Nous avons également utilisé des simulations par éléments finis pour analyser la transmission d'ondes acoustiques d'une pointe de silicium vers un substrat de titane. En première approximation,

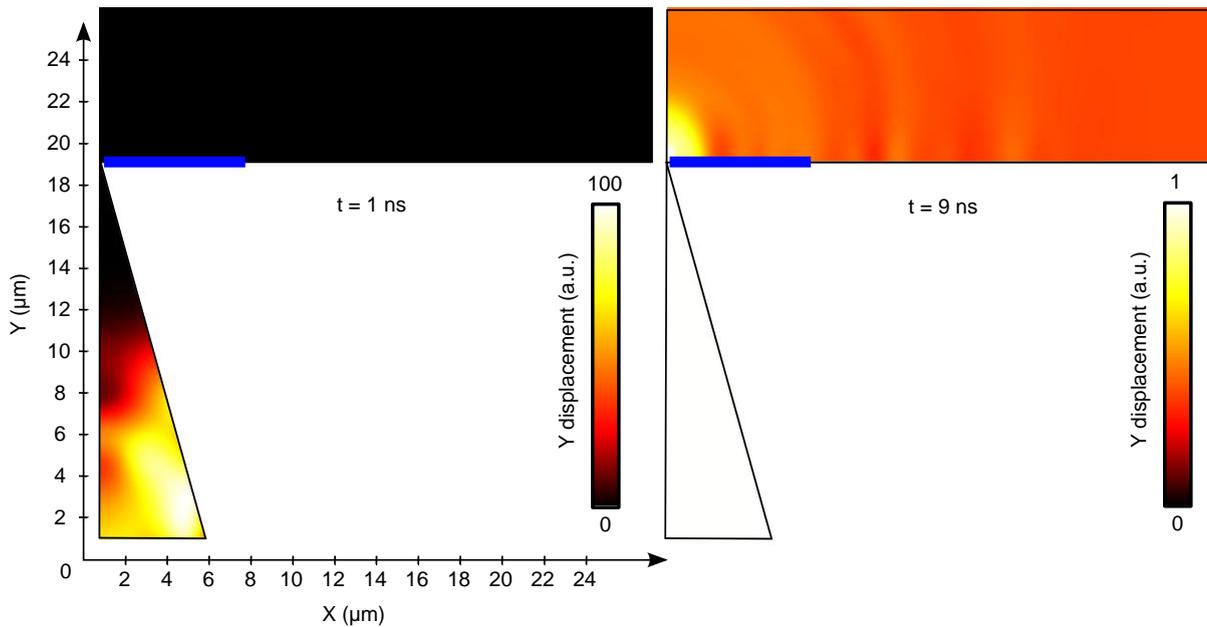


FIGURE 5.9: Champs de déplacement  $u_y$  dans la pointe d'AFM en silicium et dans un substrat de Titane calculés par éléments finis dans une géométrie axisymétrique après 2 ns de propagation à gauche et après 9 ns de propagation à droite. L'échelle est dilatée  $100\times$  à droite et le champ de déplacement est donc saturé dans la pointe sur cette cartographie. L'onde acoustique générée à la base de la pointe est un pulse longitudinal d'une durée de 500 ps et de rayon à  $1/e^2$  de  $1\ \mu\text{m}$ .

on utilise une géométrie axisymétrique dont une coupe est présentée sur la Figure 5.9. La pointe est un cône de silicium de  $5\ \mu\text{m}$  de rayon et de  $18\ \mu\text{m}$  de long. Elle est en contact avec un bloc de titane qu'on peut considérer comme infini dans la direction X et semi-infini dans la direction Y. Le contact entre le bloc de titane et la pointe d'AFM est un disque dont le diamètre est de 10 nm. Une onde acoustique longitudinale est générée à la base de la pointe par un pulse gaussien d'une durée de 500 ps et de rayon à  $1/e^2$  de  $1\ \mu\text{m}$ . Le champ de déplacement  $u_y$  de cette onde acoustique est représenté sur la Figure 5.9 après 1 ns (à gauche) et 9 ns (à droite). L'échelle est dilatée  $100\times$  sur la cartographie de droite comme l'onde acoustique transmise est très faible. Alors que l'onde acoustique n'a pas encore été transmise au substrat de titane après 1 ns, on observe des variations de déplacement sur la surface du bloc de titane après 9 ns ce qui montre qu'une onde acoustique a bien été transmise de la pointe vers le substrat. Afin de caractériser cette émission d'ondes acoustiques par la pointe, on représente le déplacement  $u_y$  selon la ligne bleue de la Figure 5.9 sur la Figure 5.10a pour les 28 ns qui suivent l'impulsion initiale.

Cette Figure 5.10a est à rapprocher de la Figure 5.8b expérimentale correspondante. Cette figure montre tout d'abord que l'émission d'ondes acoustiques dans le substrat de titane dure beaucoup plus longtemps que la durée de l'impulsion initiale de 500 ps. Cet étalement temporel du pulse acoustique avait déjà été observé expérimentalement mais avec une fenêtre temporelle que nous pouvons explorer expérimentalement limitée à 12 ns. On observe ensuite que ces ondes acoustiques

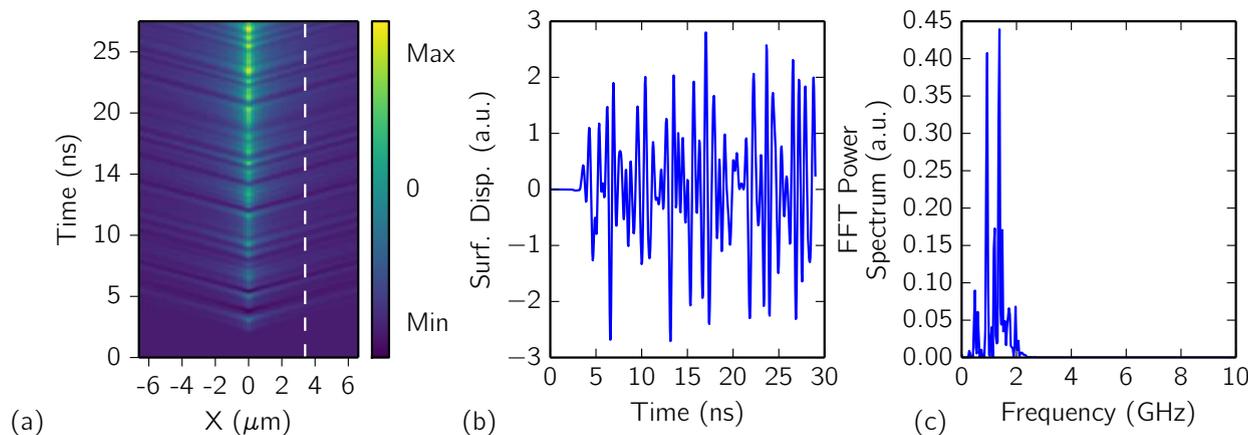


FIGURE 5.10: (a) Cartographie du déplacement de surface  $u_y$  enregistré selon la ligne bleue de la Figure 5.9 en fonction du temps. (b) Même déplacement de surface hors plan enregistré selon la ligne pointillée blanche de la Figure 5.10a. (c) Spectre de Puissance FFT de la Figure 5.10b. Les ondes de surface générées dans le titane ont des composantes fréquentielles variées centrées autour de 1 GHz.

se propagent à la vitesse des ondes de surface dans le titane,  $c_{R,Ti} = 2,9 \mu\text{m ns}^{-1}$ . On observe enfin de nombreuses oscillations. Ces oscillations du déplacement  $u_y$  au cours du temps selon la ligne pointillée blanche sont représentées sur la Figure 5.10b. Le spectre de puissance fréquentiel est représenté sur la Figure 5.10c. Ce spectre est centré autour de 1 GHz de la même façon que les résultats expérimentaux. Cependant, les signaux temporels reconstruits par éléments finis ne sont pas quasi-monochromatiques comme le sont les signaux expérimentaux (Figure 5.5). De nombreux paramètres n'ont pas été explorés et pourraient modifier les multi-réflexions lors de la propagation dans la pointe et donc les ondes émises dans le titane. On peut envisager d'étudier l'influence de la taille de la source laser, du contenu fréquentiel du pulse acoustique initial, de la taille de la zone de contact entre la pointe et le substrat ou de la forme de la pointe.

Finalement, nous avons montré qu'il était possible de générer, puis de guider des ondes acoustiques dans une pointe d'AFM de silicium grâce à un montage d'acoustique picoseconde. Ces ondes guidées sont ensuite transmises au substrat sous-jacent et il a été possible de caractériser extensivement ces ondes acoustiques de surface générées. La génération se fait avec une dimension spatiale nanométrique de l'ordre de 10 nm (rayon de courbure des pointes) mais avec un élargissement temporel important. Ces premières expériences sont largement complémentaires aux expériences du chapitre 4 d'émission d'ondes acoustiques par un nanofil de cuivre : on apporte ici la possibilité de déplacer le transducteur acoustique de taille nanométrique et une génération limitée exclusivement à la taille du transducteur. Afin de réaliser une réelle preuve de concept d'une imagerie acoustique de résolution nanométrique, il reste à concevoir un échantillon présentant des ruptures d'impédances acoustiques sur des échelles nanométriques. Le contrôle de la force de contact de la pointe d'AFM est également un point clef à développer pour intégrer un véritable dispositif.



# Conclusion

L'étude de la dynamique vibrationnelle de nano-objets par spectroscopie pompe-sonde résolue en temps est un domaine qui devient relativement mature après presque 20 années de recherches. Au fil des années, la sensibilité de détection et la qualité de synthèse des nano-objets ont été largement améliorées et ont permis d'étudier des objets de plus en plus petits et une physique de plus en plus raffinée. Même aux plus petites échelles, pour des clusters métalliques de quelques dizaines d'atomes, les vibrations de ces nano-objets sont essentiellement décrites par la mécanique classique des milieux continus. Parmi les différents nano-objets existants, nous avons choisi d'étudier l'acoustique de nanofils métalliques et semi-conducteurs de grands rapports d'aspects. Il y a trois raisons à cela. La première raison est que les équations de la mécanique sont solubles semi-analytiquement dans des guides d'ondes cylindriques, infiniment longs et constitués d'un matériau homogène et isotrope, ce qui rend certains calculs plus directs que pour des formes plus exotiques pour lesquelles le recours à des calculs d'éléments finis est presque indispensable. La deuxième raison est liée aux méthodes de fabrication particulièrement bien maîtrisées et versatiles qui permettent d'obtenir des nanofils dont la forme est très régulière, la rugosité particulièrement faible, et la composition modifiable à dessein. La troisième raison est qu'il est possible de découpler un nanofil de son substrat en le suspendant au-dessus de tranchées micrométriques ce qui n'est pas possible avec des nanosphères et autres nano-objets confinés 0D.

Nous avons donc commencé par étudier théoriquement et expérimentalement les modes acoustiques confinés dans des guides d'ondes cylindriques infiniment longs constitués de matériaux élastiques homogènes et isotropes. À ce titre, la dynamique vibrationnelle de nanofils de cuivre individuels suspendus au-dessus de tranchées micrométriques est le système modèle par excellence. Ces nanofils sont fabriqués par croissance électrochimique dans les pores d'une membrane à Darmstadt dans l'équipe de Maria-Eugenia Toimil Molares. La génération et la détection de modes de respiration radiaux jusqu'au deuxième harmonique a été explorée avec des fréquences qui atteignent la centaine de gigahertz. Les expériences sur des nanofils individuels découplés de leur substrat ont permis d'enrichir le paysage vibrationnel et d'augmenter la résolution spectrale en augmentant radicalement le facteur de qualité du nano-résonateur que constitue le nanofil. Cette augmentation de la résolution spectrale a notamment permis d'étudier le couplage entre deux nanofils en contact. Cependant, malgré l'augmentation significative des facteurs de qualité des oscillations de ces systèmes, il n'a pas été possible d'observer de possibles effets de l'anisotropie cristalline ou des écarts aux modèles de la mécanique des milieux continus possiblement observables sur les harmoniques élevés des modes de respiration. L'utilisation de systèmes plus anisotropes que le cuivre et plus monocristallins que nos échantillons pourrait permettre d'observer les effets de l'anisotropie cristalline sur les modes acoustiques. De plus, on pourrait envisager d'exalter le deuxième harmonique du mode de respiration en utilisant une deuxième pompe avec un retard astucieusement choisi. On pourrait

ainsi observer plus précisément ces harmoniques supérieurs et vérifier un potentiel écart au modèle d'élasticité classique.

La dynamique vibrationnelle d'autres systèmes plus ou moins modèles parce qu'ils s'écartent d'une structures cylindriques, homogène et isotrope a été décrite expérimentalement. Ainsi, toujours en considérant des nano-objets uniques et quasi libres, il a été possible d'estimer l'épaisseur de la coquille de nanofils cœur/coquille semi-conducteurs. Il a également été possible d'observer expérimentalement pour la première fois les modes de pseudo-respiration de nanofils d'or nanoporeux. Il a ainsi été mis en évidence que les paramètres élastiques de ces objets suivent une loi quadratique avec la porosité en accord avec les modèles de mousses usuels utilisés pour décrire l'or nanoporeux. Cependant, ces études restent préliminaires et des mesures de tailles systématiques et précises au microscope électronique, associées à des caractérisations de la cristallinité grâce à des études de rayons X pourraient améliorer la qualité des investigations.

Au-delà des modes acoustiques confinés, des facteurs de qualité aussi élevés qu'une centaine pour des fréquences de l'ordre de 15 GHz pour des nanofils de cuivre auto-suspendus offrent l'opportunité unique d'explorer la propagation d'ondes guidées le long du grand axe du nanofil. C'est ce que nous avons démontré expérimentalement sur des nanofils de cuivre de 200 nm de diamètre et d'une dizaine de micromètres de long. En contrôlant la séparation spatiale entre la pompe et la sonde, nous avons mis en évidence la propagation du premier mode longitudinal  $L(0,0)$  et du mode de respiration fondamental  $L(0,2)$  sur une distance de 1,5  $\mu\text{m}$  à 4  $\mu\text{m}$ . Nous avons également montré que la propagation de ces ondes acoustiques guidées le long du grand axe du nanofil sont bien décrites par une description unidimensionnelle de la propagation d'un paquet d'onde gaussien dont la relation de dispersion est linéaire pour  $L(0,0)$  et parabolique pour  $L(0,2)$ . De plus, grâce à la vitesse de propagation du mode  $L(0,0)$  et aux fréquences de coupure de deux premiers modes de respiration,  $L(0,2)$  et  $L(0,5)$ , il est possible de caractériser sans ambiguïté le module de Young, le coefficient de Poisson ainsi que le diamètre du nanofil sans avoir à recourir à une mesure indépendante au microscope électronique par exemple.

Nous avons également montré expérimentalement la propagation d'ondes acoustiques guidées le long d'un objet quasi-unidimensionnel quasi-libre dans le cas de nanopoutres d'or de section rectangulaires fabriquées par lithographie électronique et gravure chimique. Le recours à la lithographie électronique pourrait permettre à terme d'organiser efficacement des nano-objets pour concevoir, par exemple, des sources acoustiques nanométriques qui puissent interférer entre elles de façon contrôlée. Dans un premier temps, nous avons pu observer la propagation d'ondes acoustiques à 3 GHz dans ces nanopoutres d'or. Nous avons pu montrer qu'il était possible d'identifier un mode acoustique par sa propagation, dictée par sa relation de dispersion, et non plus seulement par sa fréquence de coupure.

À l'opposé de ces études d'objets unidimensionnels suspendus au-dessus de tranchées pour améliorer le confinement acoustique et enrichir le paysage vibrationnel, nous avons entrepris de caractériser la transmission de l'énergie d'un nanofil en vibration vers le substrat sur lequel il est déposé. Ainsi, nous avons pu réaliser l'imagerie spatio-temporelle du champ acoustique rayonné par des nanofils de cuivre de 120 nm à 400 nm de diamètre à travers une membrane de 10  $\mu\text{m}$  de silicium. Le mode de respiration fondamental de ces nanofils, de 8 GHz à 27 GHz en fonction de leur diamètre, a été excité et détecté en réflectivité par une expérience pompe-sonde résolue en temps. Simultanément, un dispositif d'imagerie interférométrique a été réalisé à l'aide d'un autre laser de sonde de l'autre côté de la membrane. Ce dernier dispositif a permis d'observer que les nanofils émettaient des ondes longitudinales à la fréquence du mode de respiration fondamental du nanofil. Il a aussi été mis en évidence que ces nanofils pouvaient être considérés comme des sources quasi-ponctuelles ou quasi-linéaires en fonction de la géométrie du faisceau laser d'excitation. On peut donc contrôler l'anisotropie géométrique du champ rayonné. Ces observations ont été renforcées par des simulations par différences finies utilisant des sources longitudinales monochromatiques dont l'anisotropie de forme était contrôlée. Il n'a cependant pas été possible d'estimer quantitativement et précisément la dimension du contact entre le nanofil et le substrat grâce à cette technique. Mais, il a également été mis en évidence que ces nanosources acoustiques émettent des ondes transverses monochromatiques à la fréquence de 3 GHz qui pourraient être liées à des modes de contact entre le nanofil et le substrat.

De façon tout à fait symétrique, nous avons pu montrer qu'une onde acoustique transverse, générée par un pulse laser de pompe dans une membrane de silicium pouvait exciter un nanofil de cuivre placé de l'autre côté cette membrane. Le mode acoustique généré de cette façon dans le nanofil possède une fréquence caractéristique de l'ordre de 3 GHz, similaire à la fréquence des ondes acoustiques transverses générées par un nanofil de cuivre excité optiquement. Ainsi, cette technique d'excitation de nano-objets uniques par des ondes acoustiques pourrait permettre d'exciter des modes dont la symétrie est peu propice à une excitation directe par laser, par exemple des modes quadripolaires et non-axisymétriques.

Nous avons pu montrer que des nanofils uniques pompés optiquement pouvaient être utilisés comme des transducteurs nanométriques d'ondes acoustiques longitudinales monochromatiques. Cependant, pour envisager de potentielles applications en microscopie ou en contrôle non destructif, il faut pouvoir intégrer ces transducteurs nanométriques dans un dispositif qui puisse se déplacer sur un échantillon. C'est pourquoi nous avons envisagé l'utilisation de pointes d'AFM comme guide d'ondes acoustiques pompés optiquement et de dimensions latérales nanométriques. Nous avons ainsi pu montrer qu'il était possible d'exciter optiquement et de guider des ondes acoustiques dans une pointe d'AFM en silicium puis de transmettre de l'énergie acoustique à travers un contact de dimension nanométrique entre la pointe et le substrat sous-jacent. Nous avons observé que les ondes acoustiques émises au niveau de la zone de contact entre la pointe d'AFM et le substrat, constitué d'une couche mince de titane de 100 nm d'épaisseur déposée sur une lame de verre, correspondaient à des ondes de surface. Nous avons pu réaliser la cartographie spatio-temporelle de leur champ de déplacement

et montrer que l'émission latéralement nanométrique s'accompagnait d'un important élargissement temporel. En effet, le contenu fréquentiel du pulse acoustique initial est centré sur 50 GHz sur une dimension latérale de l'ordre du micromètre alors que l'émission au bout de la pointe est localisée sur 5 nm à 10 nm avec un contenu fréquentiel centré sur 1 GHz. La réduction de la dimension latérale de la source s'est donc accompagnée ici d'un fort étalement temporel. Ces premiers résultats encourageants devront être poursuivis par des démonstrations de cartographie élastique de résolution nanométrique en utilisant des échantillons présentant des ruptures d'impédance acoustique.

En résumé, nous avons étudié les propriétés acoustiques de nombreux nano-objets individuels de grands rapports d'aspects par des expériences pompe-sonde résolues en temps dans la gamme de fréquence comprise entre 1 GHz et 60 GHz. Nous avons étudié différents modes propres, différents matériaux, la propagation d'ondes guidées, l'émission d'ondes acoustiques par ces nano-résonateurs et nous avons envisagé une nouvelle forme de microscopie à sonde locale pour quantifier des désaccords d'impédance acoustique à l'échelle nanométrique. De nombreuses opportunités existent pour poursuivre ce travail en couplant systématiquement les études pompe-sonde sur nano-objets uniques avec des mesures au microscope électronique et des techniques de caractérisation cristallographiques comme les rayons X sur les mêmes objets, et en poursuivant les investigations sur des objets plus originaux comme les nanofils poreux. Par ailleurs, la synthèse de champs acoustiques complexes résultant des interférences entre plusieurs sources nanométriques disposées de façon contrôlées pourrait permettre d'étendre dans le domaine du gigahertz des techniques déjà bien matures aux plus basses fréquences comme la focalisation par retournement temporel ou par filtre inverse.

# Annexe A

## Relations de dispersion : éléments finis

Cette appendice présente la méthode que nous avons utilisée pour obtenir les relations de dispersions des modes acoustiques dans les poutres et les cylindres infinis en utilisant COMSOL Multiphysics 4.3b. Afin de vérifier la robustesse de la méthode, les relations de dispersion obtenues grâce au calcul d'éléments finis sont comparées à un calcul semi-analytique présenté dans la partie I.4 pour les cylindres. Cette partie ne présente pas le cadre théorique de la méthode des éléments finis. On pourra se reporter aux nombreux ouvrages sur le sujet [190, 244, 14] ou à ce cours de l'université de Caen pour appréhender la méthode via des exemples solubles « à la main » [45].

Succinctement, dans le module de mécanique du solide de COMSOL, on définit un petit élément de section  $S$  et d'épaisseur  $dz$  du nano-objet infini selon  $z$ . On applique ensuite des conditions aux limites périodiques de Floquet pour le déplacement entre la section située en  $z$  et la section située en  $z + dz$ . Ces conditions aux limites induisent un déphasage entre le déplacement des deux sections situées en  $z$  et  $z + dz$ . Un déphasage nul correspond à une longueur d'onde infinie dans les relations de dispersion (on se ramène à un problème 2D), un déphasage unitaire correspond à une longueur d'onde de  $dz/2\pi$ .

### I.1 Module, géométrie et matériau

À l'ouverture de COMSOL :

- Choisir une géométrie 3D puis ,
- Choisir le module *Solid Mechanics (solid)* dans la section *Structural Mechanics* puis ,
- Sélectionner *Eigen Frequency* dans les *Preset Studies* puis ,
- Sélectionner le sous item *Geometry 1* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, sélectionner *Cylinder* (par exemple),
- Régler le rayon à 100 nm et la hauteur à 50 nm sous l'item *Size and shape*,
- Sélectionner le sous item *Materials* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Material*,
- Sélectionner le cylindre et attribuer ce matériau à la géométrie avec *Add to Selection* () sous l'onglet *Geometric Entity Selection*,

- Rentrer les paramètres élastiques sous l'onglet *Material Contents*. Le module d'Young, le coefficient de Poisson et la densité du cuivre sont respectivement de 110 GPa, 0,35 et 8700 kg/m<sup>3</sup>,

## I.2 Paramètres et variables

- Sélectionner l'item *Global Definitions* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Parameters*,
- Créer un paramètre sans dimension *kzh* qui prend pour expression  $10^{-4}$ .
- Sélectionner le sous item *Definitions* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Variables*,
- Sélectionner *Boundary* comme *Geometric entity level* de l'onglet *Geometric Entity Selection* puis sélectionner la face inférieure du cylindre (face 3) et valider avec *Add to Selection (+)*,
- Créer trois variables sous l'onglet *Variables* dont les noms sont *pconst1*, *pconst2* et *pconst3* et dont les expressions sont respectivement *u*, *v* et *w*.
- Sélectionner le sous item *Definitions* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Model Couplings*, puis *Linear Extrusion*.
- Sélectionner *Boundary* comme *Geometric entity level* sous l'onglet *Source Selection* puis sélectionner la face inférieure du cylindre (face 3) et valider avec *+*,
- Activer la sélection de *Source vertex 1* avec le bouton  sous l'onglet *Source Vertices*. Sélectionner ensuite un sommet de la face 3. Terminer en validant la sélection *+*. Procéder de la même façon pour les trois autres *Source vertex*.
- Activer la sélection de *Destination vertex 1* avec le bouton  sous l'onglet *Destination Vertices*. Sélectionner ensuite le sommet de la face 4, projeté orthogonal sur la face 4 du *Source vertex 1*. Terminer en validant la sélection *+*. Procéder de la même façon pour les trois autres *Destination vertex*.
- Sélectionner le sous item *Definitions* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Selections*, puis *Explicit*.
- Sélectionner *Boundary* comme *Geometric entity level* sous l'onglet *Input Entities* puis sélectionner la face supérieure du cylindre (face 4) et valider avec *+*,
- Sélectionner à nouveau le sous item *Definitions* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Variables*,
- Sélectionner *Boundary* comme *Geometric entity level* de l'onglet *Geometric Entity Selection* puis sélectionner la face supérieure du cylindre (face 4) et valider avec *+*,
- Créer trois variables sous l'onglet *Variables* dont les noms sont *econst1*, *econst2* et *econst3* et dont les expressions sont respectivement *linext1(pconst1)*, *linext1(pconst2)* et *linext1(pconst3)*.

### I.3 Conditions aux limites et étude paramétrique

- Sélectionner le sous item *Solid Mechanis (solid)* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Prescribed Displacement*,
- Sélectionner la face supérieure du cylindre (face 4) et valider avec **+**,
- Sous l'onglet *Prescribed Displacement*, cocher *Prescribed in x direction* puis utiliser l'expression  $econst1 * \exp(i * kzh)$  pour  $u_{0x}$ .
- Procéder de la même façon pour les directions  $y$  et  $z$  en remplaçant  $econst1$  respectivement par  $econst2$  et  $econst3$ .
- Sélectionner le sous item *Study 1* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Parametric Sweep*,
- Sous l'onglet *Study Settings*, ajouter un paramètre avec le bouton *add (+)*,
- Donner la série de valeurs du paramètre souhaitée en rentrant  $range(0.0010, 0.01, 1)$  dans le champ *Parameter value list* correspondant au paramètre  $kzh$ .
- Sélectionner le sous item *Step 1 : Eigenfrequency* dans le sous item *Study 1* puis entrer  $30$  dans le champ *Desired number of eigenfrequencies* sous l'onglet *Study Settings*,
- Sélectionner le sous item *Study 1* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Show Default Solver*,
- Dérouler le sous item *Solver Configurations* dans le sous item *Study 1*. Puis dérouler le sous item *Solver 1*, puis *Eigenvalue Solver 1*, puis sélectionner *Advanced*. Sous l'onglet *General*, choisir *Hermitian* pour le choix de *Matrix symmetry*.
- Sélectionner le sous item *Study 1* dans l'item *Model 1 (mod1)* puis lancer le calcul à l'aide de F8 ou du bouton .

### I.4 Post-traitement et récupération des résultats

Avec la taille de grille *Normal* d'une *Physics-controlled mesh*, la durée du calcul est d'une trentaine de minute sur un Intel Core 2 Quad CPU Q8400@2.66GHz et requiert de l'ordre de 7 GB de RAM.

- Sélectionner l'item *Results*, puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *1D Plot Group*,
- Sélectionner le sous item *1D Plot Group* dans l'item *Results* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Global*,
- Sous l'onglet *Data*, sélectionner *Solution 2* comme *Data set*.
- Sous l'onglet *y-Axis Data*, ajouter une expression avec le bouton **+**. Choisir *Solver*, puis *Frequency (freq)*.

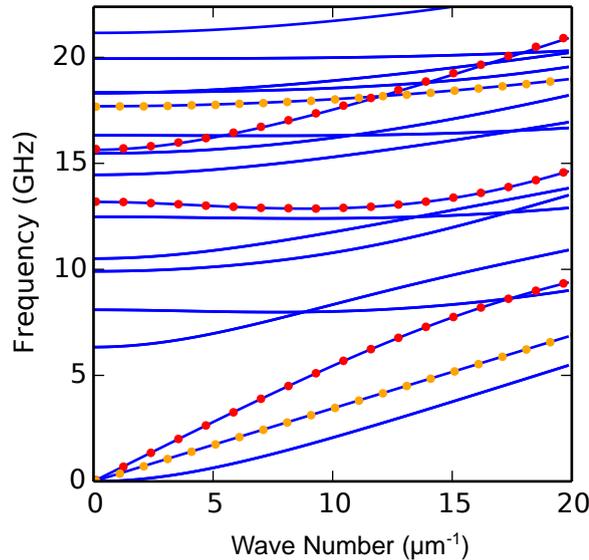


FIGURE A.1: Relations de dispersion des ondes acoustiques dans un cylindre de cuivre infiniment long de 200 nm de diamètre élastiquement isotrope. Calcul 3D par éléments finis en bleu. Résolution numérique des équations de Pochhammer et Chree pour les modes axisymétriques de compression (les points rouges) et de torsion (les points oranges) décrites au chapitre I.4.

- Sous l'onglet *x-Axis Data*, choisir *Outer solutions* comme *Axis source data*, puis *Parameter value* comme *Parameter*.
- Décocher *Show legends* sous l'onglet *Legends*.
- Sélectionner le sous item *Export* dans l'item *Results* puis dans le menu déroulant qui apparaît lors d'un clic droit, choisir *Plot*,
- Sous l'onglet *Plot*, sélectionner *1D Plot Group 2* comme *Plot group*. Sélectionner *Spreadsheet* comme *Data format* sous l'onglet *Output*. Choisir le nom du fichier d'export avec *Browse* puis exporter avec F8 ou le bouton .

On obtient alors les relations de dispersion des modes acoustiques d'un cylindre de cuivre infini et isotrope (courbes bleus sur la Figure A.1). Tous les modes, quels que soient leur symétrie sont obtenus grâce aux éléments finis. À titre de comparaison et pour vérifier la validité de la procédure décrite précédemment, les solutions de l'équation de Pochhammer et Chree pour les modes axisymétriques de compression (les points rouges) et de torsion (les points oranges) décrites au chapitre I.4 ont été superposées aux courbes obtenues par éléments finis. L'accord est parfait pour les modes concernées. Cette procédure a donc été utilisée pour d'autres géométries comme les nanopoutres d'or à section rectangulaire. Par ailleurs, notons que la procédure COMSOL décrite précédemment peut être appliquée en géométrie 2D. Dans ce cas, seuls les modes axisymétriques de compression apparaissent.

# Annexe B

## Impédances acoustiques

Quelques propriétés élastiques de plusieurs matériaux utilisés dans la thèse.

matériau	$\rho$ (g cm <sup>-3</sup> )	E (GPa)	$\nu$	$c_L$ (km s <sup>-1</sup> )	$10^{-6} \times Z_{ac}$ (kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> )
Ti[191]	4,5	118	0,31	6,0	27
Al[191]	2,7	71	0,31	6,1	17
Au[154]	19,3	79	0,44	3,6	70
W[191]	19,3	410	0,31	5,4	104
Si(100)[88]	2,3	130	0,28	8,4	20
SiO <sub>2</sub> [34]	2,65	72	0,20	5,5	15
Cu[129]	8,7	110	0,35	4,5	39
Ag[191]	10,5	79	0,35	3,4	36
Fe[191]	7,9	206	0,26	5,6	44

FIGURE B.1: Paramètres physiques de quelques matériaux : masse volumique  $\rho$ , module de Young E, coefficient de Poisson  $\nu$ , vitesse des ondes longitudinales  $c_L$ , impédance acoustique  $Z_{ac} = \rho c_L$ .



# Annexe C

## Publications

- [1] C. Jean, L. Belliard, T. W. Cornelius, O. Thomas, M. E. Toimil-molares, M. Cassinelli, 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. doi:10.1021/jz502170j. (Not cited)
- [2] C. Jean, L. Belliard, L. Becerra, and B. Perrin. Backward Propagating Acoustic Waves In Single Gold Nanobeams. *Appl. Phys. Lett.*, 107(19) :193103, 2015. doi:10.1063/1.4935351. (Not cited)
- [3] C. Jean, L. Belliard, T. W. Cornelius, O. Thomas, Y. Penneç, M. Cassinelli, M. E. Toimil-molares, and B. Perrin. Spatiotemporal Imaging of the Acoustic Field Emitted by a Single Copper Nanowire. *Nano Lett.*, 16(10) :6592–6598, 2016. doi:10.1021/acs.nanolett.6b03260. (Not cited)

## Direct Observation of Gigahertz Coherent Guided Acoustic Phonons in Free-Standing Single Copper Nanowires

Cyril Jean,<sup>†,‡</sup> Laurent Belliard,<sup>\*,†,‡</sup> Thomas W. Cornelius,<sup>¶</sup> Olivier Thomas,<sup>¶</sup> Maria Eugenia Toimil-Molares,<sup>§</sup> Marco Cassinelli,<sup>§</sup> Loïc Becerra,<sup>†,‡</sup> and Bernard Perrin<sup>†,‡</sup>

<sup>†</sup>Sorbonne Universités, UPMC Univ Paris 06, UMR 7588, Institut des NanoSciences de Paris, F-75005 Paris, France

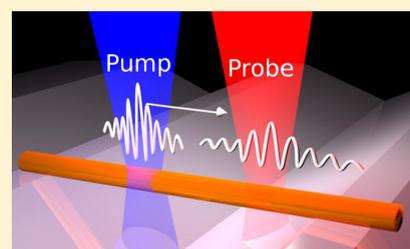
<sup>‡</sup>CNRS, UMR 7588, Institut des NanoSciences de Paris, F-75005 Paris, France

<sup>¶</sup>Aix-Marseille Université, CNRS UMR 7334, IM2NP, F-13397 Marseille Cedex, France

<sup>§</sup>GSI Helmholtz Centre for Heavy Ion Research, D-64291 Darmstadt, Germany

**ABSTRACT:** We report on gigahertz acoustic phonon waveguiding in free-standing single copper nanowires studied by femtosecond transient reflectivity measurements. The results are discussed on the basis of the semianalytical resolution of the Pochhammer and Chree equation. The spreading of the generated Gaussian wave packet of two different modes is derived analytically and compared with the observed oscillations of the sample reflectivity. These experiments provide a unique way to independently obtain geometrical and material characterization. This direct observation of coherent guided acoustic phonons in a single nano-object is also the first step toward nanolateral size acoustic transducer and comprehensive studies of the thermal properties of nanowires.

**SECTION:** Physical Processes in Nanomaterials and Nanostructures



During the past decade, nanoscale confinement has stimulated wide fundamental and technological interests in various fields such as photonics,<sup>1</sup> electronics,<sup>2</sup> chemistry,<sup>3</sup> or biology.<sup>4,5</sup> The impact of size reduction down to the nanoscale on acoustic response also attracts considerable attention.<sup>6</sup> Fundamental motivations include testing the validity of the classical continuum theory of elasticity at the nanoscale.<sup>7,8</sup> A better understanding of the phonon behavior in nanostructures is also crucial to design MEMS nanoresonators.<sup>9</sup> Confinement deeply modifies the acoustic dispersion relations compared with the bulk counterpart. Such modifications strongly influence the thermal<sup>10,11</sup> and electronic<sup>12</sup> properties of the nanostructures. Time-resolved optical spectroscopy is now considered a powerful tool to address phonon properties in single nanoparticles. In such an approach, thermal expansion induced by fast lattice heating created by femtosecond laser absorption is optically detected in transmission or reflection geometry in the far- or near-field.<sup>13–15</sup> Since the pioneering work of van Dijk et al.,<sup>16</sup> which investigated the dynamic response of single gold nanospheres, a large variety of materials and particle shapes have been investigated, including nanostructures,<sup>17–19</sup> nanowires,<sup>20–22</sup> nanorings,<sup>23</sup> nanocubes,<sup>24</sup> nanorods,<sup>25,26</sup> or dimer nanoparticles.<sup>27</sup> These investigations revealed that the system's vibrational eigenmodes are strongly correlated with different parameters like size, shape, material, and coupling with the surroundings. Recently, to circumvent the drawback linked to the breathing mode's huge damping rate, which occurs due to the interaction between the nanostructure and the substrate, free-standing nanowires have been investigated.<sup>21</sup> The main advantage of this geometry lies in the obtention of resonators

with high quality factors, thus allowing a better understanding of their elastic properties.<sup>28,29</sup> In parallel, guided acoustic phonons inside of nanowires emerge as promising candidates for nanoacoustic wave generation with a nanoscale spot size, which could prove useful to design nanodevices for three-dimensional noninvasive ultrasonic imaging<sup>30</sup> with nanometer resolutions. Confined<sup>31</sup> and propagating<sup>32</sup> acoustic waves have been reported recently in a single microfiber (with diameter > 30 μm). However, up to now, guided phonon mode propagation in nanowires has been addressed only for a bundle of 75 nm GaN nanowires,<sup>33</sup> and consequently, the results were very sensitive to the inhomogeneous broadening of the acoustic features due to averaging on nanowires of different dimensions.

In this Letter, we provide evidence of the propagation of gigahertz coherent guided acoustic phonons in single free-standing nanowires. Beyond the intrinsic novelty of this direct experimental observation on a single nano-object, the generation and detection of nanoacoustic waves emerge as useful characterization tools. We first show that the experimental investigation of confined modes only allows the determination of the characteristic sound velocities  $v_L$  and  $v_T$  ( $v_L = (E(1 - \nu)/(\rho(1 + \nu)(1 - 2\nu)))^{1/2}$  is the longitudinal sound velocity, and  $v_T = (E/(2\rho(1 + \nu)))^{1/2}$  is the transverse sound velocity;  $E$ ,  $\nu$ , and  $\rho$  are the Young modulus, the Poisson ratio, and the density of the material, respectively); the radius  $a$  of the wire has to be determined by another characterization

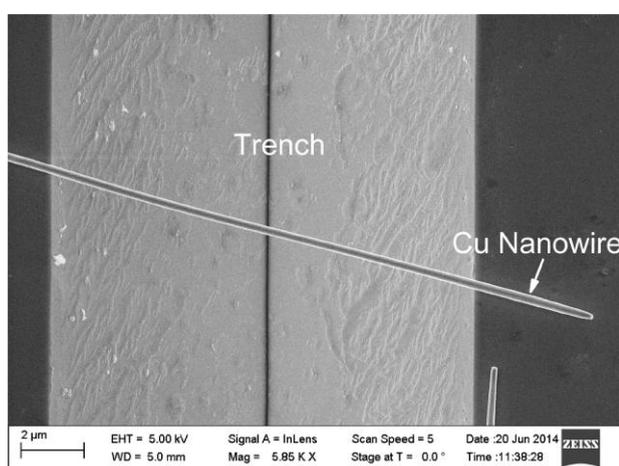
**Received:** October 13, 2014

**Accepted:** November 7, 2014

**Published:** November 7, 2014

method such as scanning electron microscopy (SEM). We then analyze the generation and propagation of coherent guided phonons in single copper nanowires. We are able to follow two phonon modes along the nanowire axis. We first observe the propagation of a Gaussian wave packet corresponding to the propagation of a pure radial breathing mode of frequency around 15.6 GHz that exhibits a parabolic dispersion curve. A pulse characteristic of an expansional mode associated with a linear dispersion curve is also observed. The observed oscillations of the sample reflectivity are compared to the predicted behavior in an infinite cylinder.

Since the past decade, many works have been devoted to time-resolved spectroscopy on supported nanowires. More recently, free-standing geometries have demonstrated a better acoustic confinement. Our polycrystalline copper nanowires are prepared by electrodeposition in etched ion-track membranes, as described elsewhere.<sup>28,34</sup> In order to reduce the energy dissipation through the silicon substrate, the wires are dispersed on a silicon wafer structured with periodic trenches (Figure 1)



**Figure 1.** Scanning electron microscope image of a 200 nm diameter copper nanowire placed across pyramidal trenches fabricated by lithography and anisotropic silicon etching.

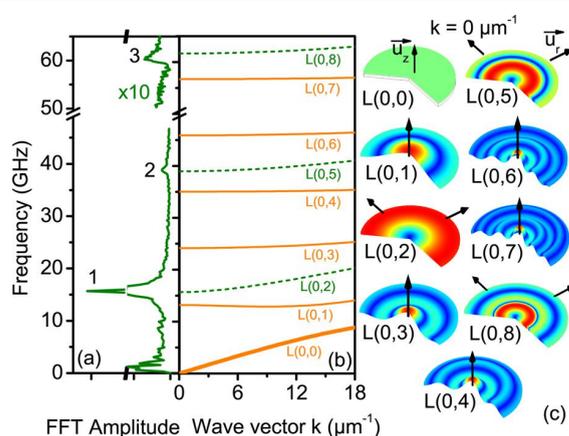
fabricated by lithography and anisotropic silicon etching.<sup>28</sup> Ultrafast pump–probe spectroscopy experiments are performed using a mode-locked Ti:sapphire (MAI-TAI Spectra) laser source operating at 800 nm with a pulse duration of 100 fs at a repetition rate of 78.8 MHz. The pump beam is modulated at 1.8 MHz to perform synchronous detection on the sample reflectivity. Both pump and probe beams are focused by an objective with a NA = 0.9 and are normally incident on the sample. The probe beam is fixed on a XY piezoelectric stage such as it is laterally positioned with respect to the pump beam. To avoid scattered light coming from the pump beam, a two-color experiment is performed by doubling the pump frequency ( $\lambda = 400$  nm) with a nonlinear crystal. A dichroic filter located in front of the diode system suppresses the light of the pump beam, its power is reduced around 300  $\mu$ W, and the power of the probe beam does not exceed 30  $\mu$ W. With such experimental conditions, we stay in the thermoelastic regime; the acoustic signal and the optical reflectivity remain stable during all of the average processing. The reflectivity from the sample is measured by an avalanche photodiode and analyzed with a lock-in amplifier. A maximum pump–probe time delay

equal to 12 ns is achieved using a mobile reflector system mounted on a translation stage.

We investigate nanowires, whose diameter  $D$  is around 200 nm and whose total length  $L$  exceeds 5  $\mu$ m, in the frame of the elasticity theory of waves developed by Pochhammer<sup>35</sup> and Chree.<sup>36</sup> Our cylinders are considered as infinite given their large aspect ratio  $L/D > 25$ . Due to diffraction limitation, the pump laser spot size is larger than the nanowire's diameter, leading to homogeneous dilatation. We thus consider no azimuthal dependence of the modes in the following. Zero radial stress at the surface is the boundary condition for a free-standing cylinder. Applying these conditions yields the following dispersion equation<sup>37</sup>

$$2P_n(Q_n^2 + K^2)J_1(P_n)J_1(Q_n) - (Q_n^2 - K^2)^2J_0(P_n)J_1(Q_n) - 4K^2P_nQ_nJ_1(P_n)J_0(Q_n) = 0 \quad (1)$$

where  $J_0$  and  $J_1$  are, respectively, the spherical Bessel functions of the first kind of order zero and one. The natural number  $n$  is the order of the longitudinal axially symmetric mode,  $L(0,n)$ , according to the Silk and Bainton naming convention.<sup>39</sup>  $P_n^2 = (X_n/\beta)^2 - K^2$  and  $Q_n^2 = X_n^2 - K^2$ .  $X_n = \omega_n a/v_T$  is the reduced pulsation,  $K = ka$  is the reduced wavenumber, and  $\beta$  is a material parameter that exclusively depends of the Poisson ratio  $\nu$  of the material,  $\beta^2 = (v_l/v_T)^2 = (2 - 2\nu)/(1 - 2\nu)$ . The dispersion curves of the first nine dilatational modes of a 200 nm diameter copper nanowire with a circular cross section are calculated numerically and reproduced in Figure 2b. At infinite wavelength ( $K = 0$ ), eq 1 can be simplified as



**Figure 2.** (a) FFT of an experimental oscillatory signal on an autosuspended 200 nm diameter copper nanowire. One can observe the first three breathing modes. (b) Numerically calculated dispersion relation of the first nine longitudinal modes of a 200 nm diameter copper nanowire. (c) Mode shapes of the first nine longitudinal eigenmodes calculated at infinite wavelength ( $K = 0$ ) using the 2D axisymmetric finite elements method (FEM). The Young modulus, Poisson ratio, and density have been set at 110 GPa, 0.35, and 8700  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ , respectively, in agreement with usual values for polycrystalline copper.<sup>38</sup> The modes  $L(0,2)$ ,  $L(0,5)$ , and  $L(0,8)$  exhibit purely radial displacement, whereas the displacement field of the other six modes is purely axial. Colors represent the magnitude of the displacement; a deep blue color corresponds to a nodal area of the mode shape when the red color means maximum magnitude. Black arrows indicate the displacement field direction.

$$J_1\left(\frac{\omega_n a}{v_T}\right) \left[ 2 \frac{v_L}{v_T} J_1\left(\frac{\omega_n a}{v_L}\right) - \frac{\omega_n a}{v_T} J_0\left(\frac{\omega_n a}{v_L}\right) \right] = 0 \quad (2)$$

It can be shown that the roots of  $J_1$  define modes with a purely axial displacement field. The roots of the second factor  $g_n(a, v_L, v_T) = 2(v_L/v_T)J_1(\omega_n a/v_L) - (\omega_n a/v_T)J_0(\omega_n a/v_L) = 0$  define the well-known breathing modes with a purely radial displacement field. The displacement field distributions of some of these modes are depicted in Figure 2c.

The frequency signature obtained on a single free-standing 200 nm diameter copper nanowire with pump and probe superimposed is depicted in Figure 2a. In an infinite wire, excitation and detection mechanisms essentially favor modes exhibiting large radial displacements.<sup>21</sup> Taking advantage of the huge acoustic confinement, the signal exhibits a complex structure composed of the fundamental breathing mode at around 15.6 GHz and its two first harmonics located at 39.6 and 60 GHz. Using this rich vibrational behavior, one can then expect to determine the three nanowire properties ( $a, v_L, v_T$ ) by solving this nonlinear inverse problem. However, it does not matter how many breathing mode frequencies are experimentally determined because the  $g_n$  are homogeneous function of order zero,  $g_n(\lambda a, \lambda v_L, \lambda v_T) = g_n(a, v_L, v_T)$  with  $\lambda \neq 0$ . When a solution is found, there is no uniqueness. One has to determine the dilatation factor  $\lambda$  with another set of measurements. For instance,  $a$  can be determined using SEM or atomic force microscopy. Our SEM measurements give us a 200 nm nanowire diameter, which allows an estimation of the velocity, equal to  $v_L = 4.5 \times 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  and  $v_T = 2.2 \times 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  for longitudinal and transverse waves, respectively, in good agreement with the copper elastic constants.<sup>38</sup> However, finding a single nano-object previously studied by femtosecond transient reflectometry under SEM often results in a very tedious and unfruitful task. Consequently, a means to characterize the material and geometrical properties of nanowires completely with picosecond acoustic measurement remains to be found.

In the following, we show that the determination of the three nanowire properties ( $a, v_L, v_T$ ) can be addressed by the experimental observation of propagating acoustic nanowaves corresponding to the L(0,0) and L(0,2) modes. It can be demonstrated that, in the case of L(0,0), the first-order development of the dispersion relation around  $k = 0$  is  $\omega = vk$  with  $v = (E/\rho)^{1/2}$ . We also demonstrated that the development of the dispersion equation around  $K = 0$  of the first radial breathing mode L(0,2) that verifies  $2(v_L/v_T)J_1(\omega_2 a/v_L) - (\omega_2 a/v_T)J_0(\omega_2 a/v_L) = 0$  is parabolic;  $(\omega a/v_L) = (\omega_2 a/v_L) + \delta(ka)^2$  with

$$\delta = \frac{4(2p_2\beta J_0(p_2\beta) - 3J_1(p_2\beta)) + p_2^2\beta^4 J_1(p_2\beta)}{2p_2 J_1(p_2\beta)(p_2^2\beta^4 + 4(1 - \beta^2))} \quad (3)$$

where  $p_2 = P_2(K = 0) = \omega_2 a/v_L$ . The time and space evolution of a wave packet resulting from a propagation with the linear and parabolic dispersion relation is calculated, and the general form  $\omega(k) = \alpha k^2 + \beta k + \gamma$  is chosen. Assuming a Gaussian pump beam with diameter  $\sigma = 0.5 \mu\text{m}$  at  $1/e^2$  and a uniform radial dilation of the nanowire at  $z = 0$  and  $t = 0$ , the initial deformation is  $\eta(z) = [4/(\sigma(2\pi)^{1/2})] \exp(-8z^2/\sigma^2)$ . As we do not provide physical insight on the excitation mechanism, we suppose no mode dependence in the excitation amplitude. According to this zero-order approximation, each  $k$  mode is excited with the same unitary amplitude, leading to  $\hat{\eta}(k) =$

$\int_{-\infty}^{\infty} \eta(z) \exp(ikz) dz = \exp(-k^2\sigma^2/32)$ . We notice that only wave numbers verifying  $k^2\sigma^2/32 < 2$ , that is to say,  $k < 20 \mu\text{m}^{-1}$ , are excited with significant amplitude. Such a low  $k$  amplitude should lead to a small  $k$  dependence in the excitation amplitude of each mode, which justifies the above approximation. Each  $k$  mode propagates as a plane wave  $\exp(i(kz - \omega(k)t))$  along the  $z$  axis of the wire, resulting in the following Gaussian wave packet

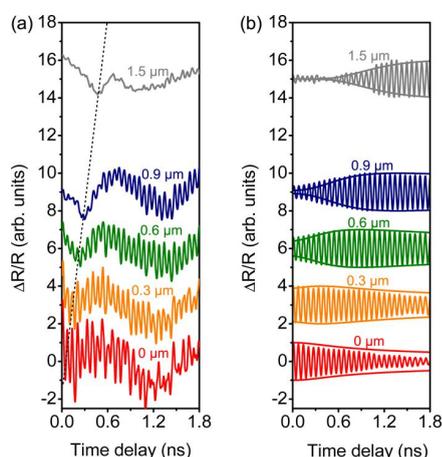
$$\begin{aligned} \psi(z, t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\eta}(k) \exp(i(kz - \omega(k)t)) dk \quad (4) \\ &= \frac{\sqrt{32\pi}}{\sqrt{\sigma^2 + 32iat}} \exp\left(-\frac{8(\beta t - z)^2}{\sigma^2 + 32iat}\right) \exp(-i\gamma t) \quad (5) \end{aligned}$$

As the detection is achieved at  $z = z_0$  using a Gaussian probe beam, with diameter  $\nu = 1 \mu\text{m}$  at  $1/e^2$ , a convolution with  $\phi(z) = 4/(\nu(2\pi)^{1/2}) \exp(-8(z - z_0)^2/\nu^2)$  is applied. Finally, the experimental signal at a distance  $z_0$  from the pump beam may be assumed to be proportional to the real part of the following equation

$$\begin{aligned} \Delta r(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \phi(z) \psi(z, t) dz \quad (6) \\ &= \frac{\sqrt{32\pi} \exp(-i\gamma t)}{\sqrt{\nu^2 + \sigma^2 + 32iat}} \exp\left(-\frac{8(z_0 - \beta t)^2}{\nu^2 + \sigma^2 + 32iat}\right) \quad (7) \end{aligned}$$

We can also extract the envelope of the Gaussian wave packet with the modulus of  $\Delta r(t)$ . In the following, we will discuss the experimental results in light of this analytical expression. Considering the L(0,0) mode, we will take  $\alpha = 0$ ,  $\beta = (E/\rho)^{1/2}$ , and  $\gamma = \omega_0 = 0$ . Considering the L(0,2) mode, the parameter values will be  $\alpha = \delta v_L a$ ,  $\beta = 0$ , and  $\gamma = \omega_2$ .

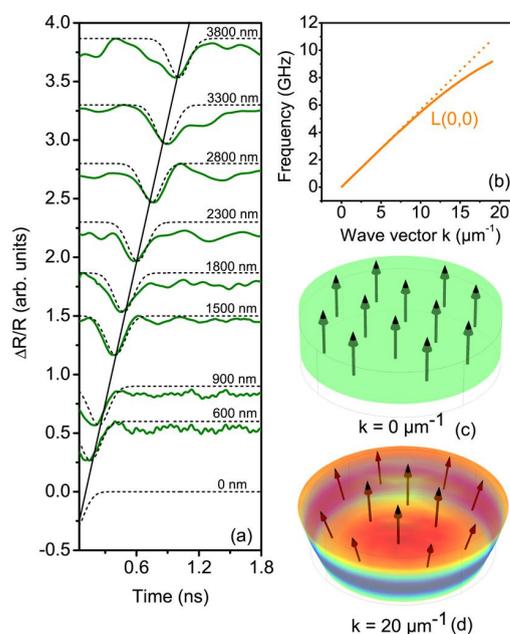
In order to be sensitive to the propagation phenomenon, the pump and probe beams have to be separated using an experimental setup that allows one to tilt the probe before the last objective lens.<sup>23</sup> The transient reflectivity obtained on a single free-standing 200 nm diameter copper nanowire, with pump-probe separation ranging from  $z_0 = 0$  to  $1.5 \mu\text{m}$ , is presented in Figure 3. The distance labeled above each curve is the pump-probe separation  $z_0$ . At small pump-probe separation, the signal is mainly composed of a high-frequency signature at 15.6 GHz, which corresponds to the first radial breathing mode. As the pump-probe separation increases, this high-frequency wave packet shifts to a longer time delay, as expected for a propagation guided along the nanowire axis. However, this signal suffers strong attenuation, which results in a poor signal-to-noise ratio at large pump-probe separations. To get rid of the attenuation and to increase the signal-to-noise ratio at large pump-probe separation, the signal is normalized to  $[-1, 1]$ , and a band-pass filter centered at 15.6 GHz is applied. The resulting signal is plotted in Figure 3b. The strong dispersion of this mode is clearly revealed. The solid line envelope  $|\Delta r(t)|$  calculated analytically with a purely parabolic dispersion relation,  $\alpha = 1.7 \times 10^{-4} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $\beta = 0$ ,  $\gamma = 15.6 \text{ GHz}$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$ , and  $\sigma = 0.5 \mu\text{m}$ , fits very well with the whole set of experimental results. It is remarkable that the extracted value  $\alpha$  is the numerical result of  $\delta v_L a$  with  $v_L = 4.5 \times 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $v_T = 2.2 \times 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , and  $a = 100 \text{ nm}$ , which are the values obtained experimentally using the breathing mode at  $K = 0$  and the SEM measurements. Furthermore, a close inspection of Figure 3 reveals that a signal deformation appears at  $z_0 = 600 \text{ nm}$  with a



**Figure 3.** (a) Raw data of the transient reflectivity obtained on a single free-standing 200 nm diameter copper nanowire. The distance labeled above each curve is the pump–probe separation  $z_0$ . The high-frequency signal is the 15.6 GHz first radial breathing mode. The additional feature that appears at 600 nm with a probe delay of 170 ps and at 1500 nm with a probe delay of 400 ps is the signature of the L(0,0) mode; the black dotted line follows the maximum of the deformation and demonstrates a linear propagation. (b) Same signal normalized to  $[-1,1]$  with a second-order band-pass filter centered at the first radial breathing mode frequency of 15.6 GHz. We thus highlight the dispersion of the first breathing mode. The solid line envelope is  $|\Delta r(t)|$ , calculated analytically with  $\alpha = 1.7 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $\beta = 0$ ,  $\gamma = 15.6 \text{ GHz}$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$ , and  $\sigma = 0.5 \mu\text{m}$ . A comparison between nonfiltered (a) and filtered (b) shows that there is no artifact added by such a filtering process.

probe delay of 170 ps and propagates through  $z_0 = 1500 \text{ nm}$  with a probe delay of 400 ps. This signature can be associated with the L(0,0) mode. It is interesting to note that the displacement field distribution of mode L(0,0) at an infinite wavelength calculated with three-dimensional FEM presents no radial displacement, explaining its absence when the pump and probe are superimposed. On the contrary, the displacement field distribution of mode L(0,0) at  $k \approx 20 \mu\text{m}^{-1}$  calculated with three-dimensional FEM shows a significant radial displacement. Therefore, this mode will be more easily detected with small pump and probe beams that provide a large wave vector distribution. We are then able to detect this L(0,0) mode when the pump–probe spatial separation increases. To further investigate this signal, we explore larger pump–probe spatial separation, as reported in Figure 4.

This transient reflectivity signal is obtained on a single free-standing 200 nm diameter copper nanowire with a 200 ms time integration constant that acts as a low-pass filter and increases the signal-to-noise ratio dramatically, which is much needed at distances as large as  $3.8 \mu\text{m}$ . Signals are normalized to  $[-0.3,0]$  to get rid of the attenuation that is not taken into account in our theoretical model. The distance labeled above each curve corresponds to the pump–probe separation  $z_0$ . The dotted line is  $|\Delta r(t)|$ , calculated analytically with  $\alpha = 0$ ,  $\beta = 3.6 \times 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $\gamma = 0$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$ , and  $\sigma = 0.5 \mu\text{m}$ . Such a best-fit value is consistent with  $(E/\rho)^{1/2}$ . Unlike the complex expression of the parabolic coefficient  $\delta$  of the L(0,2) mode and the resulting complex spreading of the Gaussian wave packet in Figure 3, this L(0,0) mode provides a unique way to get the Young modulus of a material independently of any geometrical dimensions. Simple and precise reading of the deformation maximum's



**Figure 4.** (a) Transient reflectivity signal obtained on a single free-standing 200 nm diameter copper nanowire with a 200 ms time integration constant that acts as a hardware low-pass filter. Signals are normalized to  $[-0.3,0]$ . The distance labeled above each curve corresponds to the pump–probe separation  $z_0$ . The dotted line is  $|\Delta r(t)|$ , calculated analytically with  $\alpha = 0$ ,  $\beta = 3.6 \times 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $\gamma = 0$ ,  $\nu = 1 \mu\text{m}$ , and  $\sigma = 0.5 \mu\text{m}$ . The black solid line follows the maximum of the deformation and demonstrates a linear propagation. (b) Dispersion relation of the L(0,0) branch. The solid line corresponds to the exact relation, and the dotted line is the linear approximation  $\omega = (E/\rho k)^{1/2}$ . (c) The displacement field distribution of mode L(0,0) at infinite wavelength calculated with three-dimensional FEM exhibits no radial displacement. (d) The displacement field distribution of mode L(0,0) at  $k \approx 20 \mu\text{m}^{-1}$  calculated with three-dimensional FEM shows a significant radial displacement.

propagation velocity gives direct access to the Young modulus. Finally, measuring  $\nu = 3.6 \times 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $f_2 = 15.6 \text{ GHz}$ , and  $f_3 = 39.6 \text{ GHz}$  gives  $a = 91 \pm 3 \text{ nm}$ ,  $\nu_L = 4.1 \pm 0.2 \times 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , and  $\nu_T = 2.2 \pm 0.1 \times 10^3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . These values are in good agreement both with copper elastic constants and SEM measurements.

In summary, we have investigated the propagation of two guided modes in single free-standing copper nanowires. By considerably reducing the relaxation channel toward the substrate, the suspended nanowires provide a unique tool to observe the propagation of gigahertz coherent acoustic waves with spatial separations between generation and detection as large as  $4 \mu\text{m}$ . A rigorous approach allows us to assign the main components of the reflectometry signal to a precise acoustic mode. These experimental observations also lead to two equations that accurately complete the set of equations at infinite wavelength, thus allowing the determination of elastic properties as well as the geometrical radius  $a$  of the nanowire. Beyond this new way to achieve material and geometrical characterization through picosecond acoustic experiment, this study paves the way to use nanowires as nanometric lateral size acoustic transducers.

## ■ AUTHOR INFORMATION

### Corresponding Author

\*E-mail: Laurent.Belliard@upmc.fr.

## Notes

The authors declare no competing financial interest.

## REFERENCES

- (1) Maier, S. A.; Brongersma, M. L.; Kik, P. G.; Meltzer, S.; Requicha, A. A. G.; Atwater, H. A. Plasmonics — A Route to Nanoscale Optical Devices. *Adv. Mater.* **2001**, *13*, 1501–1505.
- (2) Chang, D. E.; Sørensen, A. S.; Demler, E. A.; Lukin, M. D. A Single-Photon Transistor Using Nanoscale Surface Plasmons. *Nat. Phys.* **2007**, *3*, 807–812.
- (3) Novo, C.; Funston, A. M.; Mulvaney, P. Direct Observation of Chemical Reactions on Single Gold Nanocrystals Using Surface Plasmon Spectroscopy. *Nat. Nano* **2008**, *3*, 598–602.
- (4) Huang, X.; El-Sayed, I. H.; Qian, W.; El-Sayed, M. A. Cancer Cell Imaging and Photothermal Therapy in the Near-Infrared Region by Using Gold Nanorods. *J. Am. Chem. Soc.* **2006**, *128*, 2115–2120.
- (5) Hirsch, L. R.; Stafford, R. J.; Bankson, J. a.; Sershen, S. R.; Rivera, B.; Price, R. E.; Hazle, J. D.; Halas, N. J.; West, J. L. Nanoshell-Mediated Near-Infrared Thermal Therapy of Tumors under Magnetic Resonance Guidance. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **2003**, *100*, 13549–13554.
- (6) Major, T. A.; Lo, S. S.; Yu, K.; Hartland, G. V. Time-Resolved Studies of the Acoustic Vibrational Modes of Metal and Semiconductor Nano-objects. *J. Phys. Chem. Lett.* **2014**, *5*, 866–874.
- (7) Liang, H.; Upmanyu, M.; Huang, H. Size-Dependent Elasticity of Nanowires: Nonlinear Effects. *Phys. Rev. B* **2005**, *71*, 241403.
- (8) Juvé, V.; Crut, A.; Maioli, P.; Pellarin, M.; Broyer, M.; Del Fatti, N.; Vallée, F. Probing Elasticity at the Nanoscale: Terahertz Acoustic Vibration of Small Metal Nanoparticles. *Nano Lett.* **2010**, *10*, 1853–1858.
- (9) Feng, X. L.; He, R.; Yang, P.; Roukes, M. L. Very High Frequency Silicon Nanowire Electromechanical Resonators. *Nano Lett.* **2007**, *7*, 1953–1959.
- (10) Mingo, N.; Yang, L.; Li, D.; Majumdar, A. Predicting the Thermal Conductivity of Si and Ge Nanowires. *Nano Lett.* **2003**, *3*, 1713–1716.
- (11) Boukai, A. I.; Bunimovich, Y.; Tahir-Kheli, J.; Yu, J.-K.; Goddard, W. A.; Heath, J. R. Silicon Nanowires as Efficient Thermoelectric Materials. *Nature* **2008**, *451*, 168–171.
- (12) Bannov, N.; Aristov, V.; Mitin, V.; Stroschio, M. A. Electron Relaxation Times Due to the Deformation–Potential Interaction of Electrons with Confined Acoustic Phonons in a Free-Standing Quantum Well. *Phys. Rev. B* **1995**, *51*, 9930–9942.
- (13) Thomsen, C.; Grahn, H. T.; Maris, H. J.; Tauc, J. Surface Generation and Detection of Phonons by Picosecond Light Pulses. *Phys. Rev. B* **1986**, *34*, 4129–4138.
- (14) Siry, P.; Belliard, L.; Perrin, B. Picosecond Acoustics with Very High Lateral Resolution. *Acta Acust. Acust.* **2003**, *89*, 925–929.
- (15) Vertikov, A.; Kuball, M.; Nurmikko, A. V.; Maris, H. J. Time-Resolved Pump–Probe Experiments with Subwavelength Lateral Resolution. *Appl. Phys. Lett.* **1996**, *69*, 2465.
- (16) van Dijk, M.; Lippitz, M.; Orrit, M. Detection of Acoustic Oscillations of Single Gold Nanospheres by Time-Resolved Interferometry. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, *95*, 267406.
- (17) Burgin, J.; Langot, P.; Del Fatti, N.; Valle, F.; Huang, W.; El-Sayed, M. A. Time-Resolved Investigation of the Acoustic Vibration of a Single Gold Nanoprism Pair. *J. Phys. Chem. C* **2008**, *112*, 11231–11235.
- (18) Bienville, T.; Robillard, J. F.; Belliard, L.; Roch-Jeune, I.; Devos, A.; Perrin, B. Individual and Collective Vibrational Modes of Nanostructures Studied by Picosecond Ultrasonics. *Ultrasonics* **2006**, *44* (Suppl 1), e1289–1294.
- (19) Amziane, A.; Belliard, L.; Decremps, F.; Perrin, B. Ultrafast Acoustic Resonance Spectroscopy of Gold Nanostructures: Towards a Generation of Tunable Transverse Waves. *Phys. Rev. B* **2011**, *83*, 014102.
- (20) Staleva, H.; Hartland, G. V. Vibrational Dynamics of Silver Nanocubes and Nanowires Studied by Single-Particle Transient Absorption Spectroscopy. *Adv. Funct. Mater.* **2008**, *18*, 3809–3817.
- (21) Major, T. A.; Crut, A.; Gao, B.; Lo, S. S.; Del Fatti, N.; Vallée, F.; Hartland, G. V. Damping of the Acoustic Vibrations of a Suspended Gold Nanowire in Air and Water Environments. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2013**, *15*, 4169–4176.
- (22) Staleva, H.; Skrabalak, S. E.; Carey, C. R.; Kosel, T.; Xia, Y.; Hartland, G. V. Coupling to Light, and Transport and Dissipation of Energy in Silver Nanowires. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2009**, *11*, 5889–5896.
- (23) Kelf, T. A.; Tanaka, Y.; Matsuda, O.; Larsson, E. M.; Sutherland, D. S.; Wright, O. B. Ultrafast Vibrations of Gold Nanorings. *Nano Lett.* **2011**, *11*, 3893–3898.
- (24) Staleva, H.; Hartland, G. V. Transient Absorption Studies of Single Silver Nanocubes. *J. Phys. Chem. C* **2008**, *112*, 7535–7539.
- (25) Cardinal, M. F.; Mongin, D.; Crut, A.; Maioli, P.; Rodriguez-Gonzalez, B.; Prez-Juste, J.; Liz-Marzán, L. M.; Del Fatti, N.; Valle, F. Acoustic Vibrations in Bimetallic Au@Pd Core–Shell Nanorods. *J. Phys. Chem. Lett.* **2012**, *3*, 613–619.
- (26) Zijlstra, P.; Tchegotareva, A. L.; Chon, J. W.; Gu, M.; Orrit, M. Acoustic Oscillations and Elastic Moduli of Single Gold Nanorods. *Nano Lett.* **2008**, *8*, 3493–3497.
- (27) Jais, P. M.; Murray, D. B.; Merlin, R.; Bragas, A. V. Metal Nanoparticle Ensembles: Tunable Laser Pulses Distinguish Monomer from Dimer Vibrations. *Nano Lett.* **2011**, *11*, 3685–3689.
- (28) Belliard, L.; Cornélius, T. W.; Perrin, B.; Kacemi, N.; Becerra, L.; Thomas, O.; Eugenia Toimil-Molares, M.; Cassinelli, M. Vibrational Response of Free Standing Single Copper Nanowire through Transient Reflectivity Microscopy. *J. Appl. Phys.* **2013**, *114*, 193509.
- (29) Ristow, O.; Merklein, M.; Grossmann, M.; Hettich, M.; Schubert, M.; Bruchhausen, A.; Grebing, J.; Erbe, A.; Mounier, D.; Gusev, V.; et al. Ultrafast Spectroscopy of Super High Frequency Mechanical Modes of Doubly Clamped Beams. *Appl. Phys. Lett.* **2013**, *103*, 233114.
- (30) Lin, K.-H.; Yu, C.-T.; Sun, S.-Z.; Chen, H.-P.; Pan, C.-C.; Chyi, J.-I.; Huang, S.-W.; Li, P.-C.; Sun, C.-K. Two-Dimensional Nano-ultrasonic Imaging by Using Acoustic Nanowaves. *Appl. Phys. Lett.* **2006**, *89*, 043106.
- (31) Mounier, D.; Poilâne, C.; Khelifa, H.; Picart, P. Sub-Gigahertz Laser Resonant Ultrasound Spectroscopy for the Evaluation of Elastic Properties of Micrometric Fibers. *Ultrasonics* **2014**, *54*, 259–267.
- (32) Khelifa, H.; Mounier, D.; Poilâne, C.; Picart, P. Détermination Expérimentale des Courbes de Dispersion des Modes Guidés se Propageant le Long d'une Fibre Cylindrique Micrométrique. *14ème Congrès Français d'Acoustique* **2014**, 1225–1231.
- (33) Mante, P.-A.; Wu, Y.-C.; Lin, Y.-T.; Ho, C.-Y.; Tu, L.-W.; Sun, C.-K. Gigahertz Coherent Guided Acoustic Phonons in AlN/GaN Nanowire Superlattices. *Nano Lett.* **2013**, *13*, 1139–1144.
- (34) Molares, M. T.; Buschmann, V.; Dobrev, D.; Neumann, R.; Scholz, R.; Schuchert, I. U.; Vetter, J. Single-Crystalline Copper Nanowires Produced by Electrochemical Deposition in Polymeric Ion Track Membranes. *Adv. Mater.* **2001**, *13*, 62–65.
- (35) Pochhammer, L. Über die Fortpflanzungsgeschwindigkeiten kleiner Schwingungen in einem Unbegrenzten Isotropen Kreiszyllinder. *J. Reine Angew. Math.* **1876**, *81*, 324.
- (36) Chree, C. The Equations of an Isotropic Elastic Solid in Polar and Cylindrical Coordinates, Their Solutions and Applications. *Trans. Cambridge Philos. Soc.* **1889**, *14*, 250.
- (37) Royer, D.; Dieulesaint, E. *Elastic Waves in Solids I: Free and Guided Propagation*; Springer-Verlag: New York, 2000.
- (38) Ledbetter, H.; Naimon, E. Elastic Properties of Metals and Alloys. II. Copper. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **1974**, *3*, 897–935.
- (39) Silk, M.; Bainton, K. The Propagation in Metal Tubing of Ultrasonic Wave Modes Equivalent to Lamb Waves. *Ultrasonics* **1979**, *17*, 11–19.

## Backward propagating acoustic waves in single gold nanobeams

Cyril Jean, Laurent Belliard,<sup>a)</sup> Loïc Becerra, and Bernard Perrin

Sorbonne Universités, UPMC Univ Paris 06, CNRS-UMR 7588, Institut des NanoSciences de Paris, F-75005 Paris, France

(Received 30 September 2015; accepted 25 October 2015; published online 9 November 2015)

Femtosecond pump-probe spectroscopy has been carried out on suspended gold nanostructures with a rectangular cross section lithographed on a silicon substrate. With a thickness fixed to 110 nm and a width ranging from 200 nm to 800 nm, size dependent measurements are used to distinguish which confined acoustic modes are detected. Furthermore, in order to avoid any ambiguity due to the measurement uncertainties on both the frequency and size, pump and probe beams are also spatially shifted to detect guided acoustic phonons. This leads us to the observation of backward propagating acoustic phonons in the gigahertz range ( $\sim 3$  GHz) in such nanostructures. While backward wave propagation in elastic waveguides has been predicted and already observed at the macroscale, very few studies have been done at the nanoscale. Here, we show that these backward waves can be used as the unique signature of the width dilatational acoustic mode.

© 2015 AIP Publishing LLC. [<http://dx.doi.org/10.1063/1.4935351>]

Probing the elasticity at the nanoscale is a challenge that led a wide community to study confined acoustic modes of nano-objects in the 10 GHz–1 THz range using time-resolved pump-probe experiments.<sup>1</sup> In such an approach, acoustic modes are excited by the absorption of a femtosecond laser pulse and detected in transmission<sup>2,3</sup> or reflectivity geometry in near<sup>4,5</sup> or far<sup>6,7</sup> field by the induced change in the material optical properties. As ensemble studies result in inhomogeneous broadening of the acoustic features,<sup>8,9</sup> single particle spectroscopy has been considered to circumvent this drawback and to clarify the acoustic response.<sup>3,10,11</sup> However, the strong damping at these extremely high frequencies has led several groups to isolate the nanoresonators from their substrate to avoid energy leaking through the nano-object-substrate contact.<sup>12–14</sup> These breakthroughs have made possible the observation of an other source of acoustic energy leaks. Indeed, it has been proven that acoustic phonons are also guided along the nano-objects.<sup>15,16</sup> Other major developments illustrate the possibility to use nano-objects as nanoscale acoustic transducers for hypersonic wave imaging.<sup>17</sup> Non destructive imaging with nanometric resolution in both depth and lateral direction is now one step ahead.

Furthermore, there is a recent and growing interest in both the electromagnetic and acoustic wave communities for materials and waveguides that exhibit backward propagating waves.<sup>18</sup> In backward waves, the phase velocity describing the propagation of individual wave fronts in a wave packet and the energy flux of the wave, characterized by the Poynting vector, are anti-parallel. This anti-parallel propagation constitutes the definition of a negative index material and opens the way to a large variety of intriguing physical phenomena.<sup>19</sup> There now exist multiple experimental evidences of this effect, and applications of negative index materials for electromagnetic waves have already been conceived.<sup>20</sup> The possibility of such backward wave motion in elastic waveguides has been revealed by the early work of

Lamb.<sup>21</sup> Many different elastic waveguides such as cylinders<sup>22</sup> or surface acoustic waves<sup>23</sup> can also exhibit backward wave motion. Recently, negative refraction and focusing of elastic Lamb waves have been investigated but are still confined to the low-MHz range.<sup>24,25</sup> In this letter, we provide evidence of backward wave propagation in one-dimensional elastic waveguide in the gigahertz range. We use time-resolved pump-probe spectroscopy with spatially shifted pump and probe beams to excite and detect the backward wave motion. As a first application, unambiguous mode identification using backward wave propagation is investigated.

In order to study guided modes in one dimensional elastic waveguides, gold nanostructures with a rectangular cross section are conceived (Fig. 1). Their thickness,  $h$ , is fixed to  $h = 110$  nm and their width,  $W$ , ranges from 200 to 800 nm.

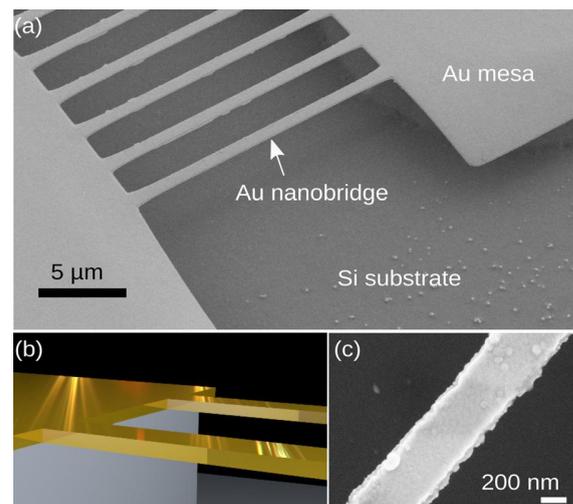


FIG. 1. (a) Scanning electron microscope image (top view) of several gold nanobeams suspended a few micrometers above the silicon substrate. (b) Artist view of nanobeams with a rectangular cross section suspended above the silicon substrate. (c) Scanning electron microscope image (top view) of a 400 nm wide gold nanobeam. The edge roughness is lower than 20 nm.

<sup>a)</sup>Laurent.Belliard@upmc.fr

As shown in Fig. 1(a), the gold stripes are connected to large mesas at both ends. To reduce the influence of the silicon substrate on the elastic confinement, the gold nanostructures are suspended several micrometers above the substrate as illustrated in Fig. 1(b). This geometry results in what we call “gold nanobeams.” All boundaries are thus mechanically free. As their length is greater than  $15\ \mu\text{m}$ , they are considered as infinitely long and the fixed boundary conditions at the extremities can be neglected. The samples are fabricated by electronic lithography coupled with anisotropic wet etching on silicon substrates. To prepare these structures, single face polished Si(001) substrates are used. First, an electronic resist (PMMA-950K-A6) is spin coated on the Si wafer surface. The exposition is made at 20kV using a Zeiss Supra 40 scanning electron microscope equipped with a Raith Elphy Quantum module. After being developed, rinsed with water and blown dry, the sample is coated with 10 nm of chromium to improve the adhesion, followed by a 110 nm thick gold layer. Then, a lift-off process in acetone with careful ultrasonic agitation is performed to delimit the future gold nanobeams. Finally, the sample is dipped in a hot 40% KOH solution to partially etch the Si substrate and free the desired gold nanobeams. This quick anisotropic Si etching process leads to the formation of suspended gold nanobeams between two big gold pads. The key point of this process is that the main axis of the beams has been rotated  $45^\circ$  with respect to the  $\langle 110 \rangle$  direction of Si substrates to allow this underetching.

Our experimental setup working in reflection geometry was described in detail elsewhere.<sup>7</sup> Ultrafast pump-probe spectroscopy experiments are performed using a mode-locked Ti:sapphire (MAI-TAI Spectra) laser source operating at 800 nm with a pulse duration below 100 fs at the laser output and a repetition rate of 78.8 MHz. Synchronous detection on the sample reflectivity is performed by modulating the pump beam at 1.8 MHz. Both pump and probe beams are focused by means of a microscope objective with a  $NA = 0.9$  and are normally incident on the sample. The laser spots can be focused around  $1\ \mu\text{m}$  diameter at  $1/e^2$ . A telescope is fixed on a XY piezoelectric stage such that the probe beam is laterally positioned with respect to the fixed pump beam. A two-color experiment is performed by doubling the pump frequency ( $\lambda = 400\ \text{nm}$ ) with a nonlinear crystal (BBO) to avoid scattered light coming from the pump beam. A dichroic filter located in front of the diode system suppresses the light of the pump beam, its power is reduced around  $500\ \mu\text{W}$ , and the power of the probe beam does not exceed  $15\ \mu\text{W}$ .

Such experimental conditions place us in the thermo-elastic regime and the acoustic signal and optical reflectivity remain stable during all the average processing. The reflectivity from the sample is measured by an avalanche photodiode and analyzed with a lock-in amplifier. A maximum pump-probe time delay equal to 12 ns is achieved using a mobile reflector system mounted on a translation stage.

First, let us consider the case where the pump and probe beams are spatially superimposed. Fig. 2 shows the time domain reflectivity change measurements  $\Delta R/R$  obtained on a  $400\ \text{nm} \pm 20\ \text{nm}$  wide (determined by SEM measurement) and 110 nm thick gold nanobeam in a usual reflectometry

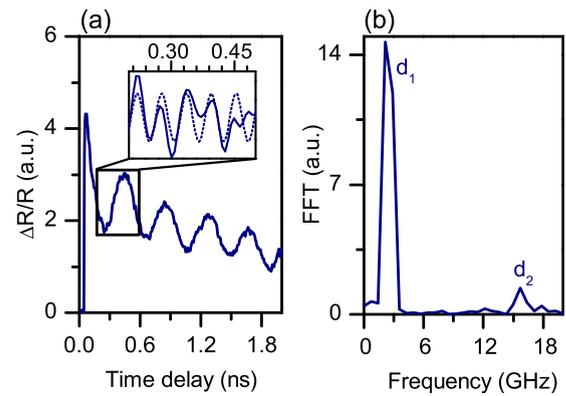


FIG. 2. (a) Typical time-resolved modulation of the reflected probe beam  $\Delta R/R$  of a  $400\ \text{nm} \pm 20\ \text{nm}$  wide and 110 nm thick gold nanobeam that exhibits a low frequency oscillation at 2.8 GHz superimposed to a higher modulation around 16 GHz (the inset is a zoom where the lower modulation is removed; dotted line is a 16 GHz sinus). (b) Fourier power spectra of the time transient signal (a) showing both 2.8 GHz and 16 GHz acoustic signatures.  $d_1$  and  $d_2$  refer to the first dilatational modes.

set-up. After a sharp and sudden rise, a slowly decreasing non-oscillatory background in  $\Delta R/R$  is observed. This is the signature of the rapid heating of the electron gas induced by the pump pulse absorption, followed by the slow cooling down process. This thermal stress launches the acoustic vibrations of the nanobeam.<sup>26</sup> The time-resolved signature also shows a superposition of high (inset Fig. 2(a)) and low frequency oscillations. By performing a numerical fast Fourier transform (Fig. 2(b)) or by fitting the time oscillation with a damped sinus function, one can extract a  $2.8\ \text{GHz} \pm 0.5\ \text{GHz}$  and a  $16\ \text{GHz} \pm 0.5\ \text{GHz}$  acoustic signatures. In the following, we consider that the Young modulus, the Poisson's ratio, and the density of gold are, respectively, 79 GPa, 0.44, and  $19\ 300\ \text{kg/m}^3$ .<sup>27</sup> The longitudinal  $v_L$  and transverse  $v_T$  sound velocities are then  $3.6\ \mu\text{m ns}^{-1}$  and  $1.2\ \mu\text{m ns}^{-1}$ , respectively. Thus, the higher 16 GHz frequency appears to be the thickness vibration of the beam owing to the fact that  $v_L/(2h) = 16.5\ \text{GHz}$ . The displacement field of this  $d_2$  eigenmode is plotted in Fig. 3(b). At this point, we verify that this thickness resonance signature is also observed when the pump-probe experiment is undertaken on the gold mesa using an interferometric scheme in this case as photoelastic signals are negligible in gold layers.<sup>28</sup> Consequently, the reflectometry measurement undertaken on the gold nanobeam is probably partly an interferometric like detection with the light reflected by the silicon substrate underneath acting as a reference mirror.

The case of the lower frequency  $\sim 3\ \text{GHz}$  is dealt with by performing an eigenmode analysis by finite elements method. The dispersion relation of a 370 nm wide nanobeam is plotted in Fig. 3. Several acoustic modes with non-zero cut-off frequencies are revealed. Three distinct families emerge: the flexural modes  $f_1$ ,  $f_2$ , and  $f_3$ , the dilatational modes  $d_1$  and  $d_2$ , and the shear modes  $s_1$ ,  $s_2$ , and  $s_3$  (see Fig. 3(b)). The frequency evolution of  $s_1$ ,  $s_2$ ,  $f_1$ ,  $f_2$ ,  $f_3$ , and  $d_1$  with the nanobeam width is plotted in Fig. 4. The measured frequencies on different gold nanobeams are also reported. Owing to the measurement uncertainties, the experimental frequencies ranging from 1.7 GHz to 5.5 GHz may be

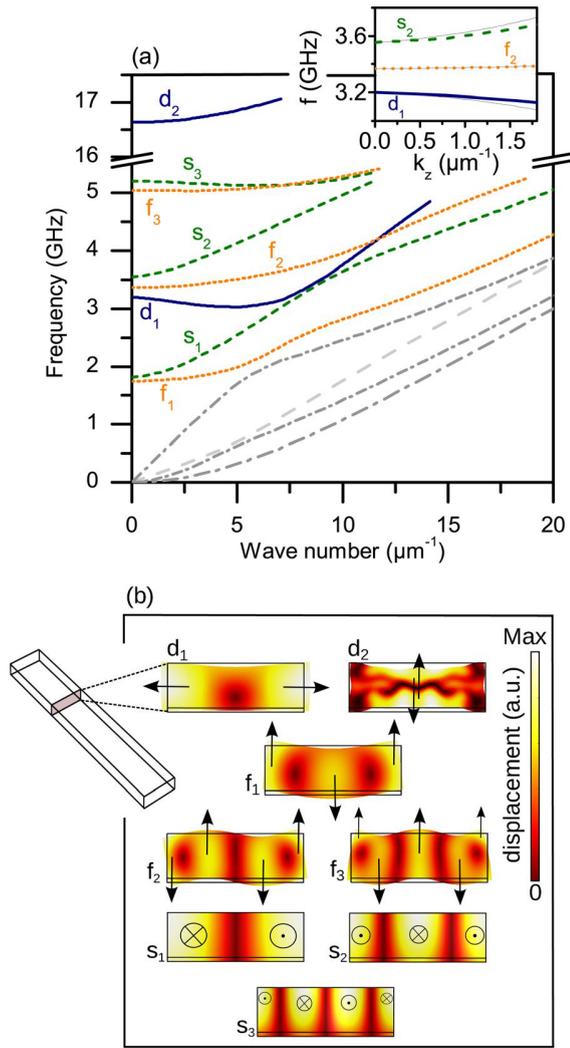


FIG. 3. (a) Acoustic modes dispersion relations in a 370nm wide and 110nm thick gold nanobeam (with a 10nm thick adhesion layer of chromium).  $f_i$ ,  $s_i$ , and  $d_i$  refer, respectively, to flexural, shear, and dilatational modes. The inset shows the parabolic fit of three specific modes at low wave number used to evaluate the corresponding propagating wave packet. The parabolic fit is, respectively,  $f_{d_1}(k) = -3.4 \times 10^{-2} k^2 - 9.2 \times 10^{-5} k + 3.2$  GHz,  $f_{s_2}(k) = 5.0 \times 10^{-2} k^2 + 5.0 \times 10^{-4} k + 3.6$  GHz, and  $f_{f_2}(k) = 5.7 \times 10^{-3} k^2 + 2.8 \times 10^{-4} k + 3.4$  GHz for the modes  $d_1$ ,  $s_2$ , and  $f_2$  with the wave number  $k$  in  $\mu\text{m}^{-1}$ . (b) Cross-sectional representation of the displacement field of three flexural ( $f_1$ ,  $f_2$ , and  $f_3$ ), two dilatational ( $d_1$  and  $d_2$ ), and three shear ( $s_1$ ,  $s_2$ , and  $s_3$ ) acoustic modes. The black arrows show the displacement direction.

consistent with the frequencies of the modes  $f_2$ ,  $s_2$ , and  $d_1$  which exhibit close cut-off frequencies. Consequently, additional evidence on the detected mode is needed. Given that the excitation process imposes the relative amplitudes of the excited modes, one can use the initial displacement field projection on the orthogonal basis formed by the nano-object eigenmodes to identify which mode will be efficiently excited.<sup>29,30</sup> Here, we propose to discriminate unambiguously between the different acoustic modes by probing their propagation. Very different behaviors are expected owing to the very different slopes of the dispersion relationship.

In order to be sensitive to the propagation phenomenon, the pump and probe beams have to be separated.<sup>8</sup> The transient reflectivity measured on a 370nm width gold nanobeam, with pump-probe separation ranging from 0  $\mu\text{m}$  to

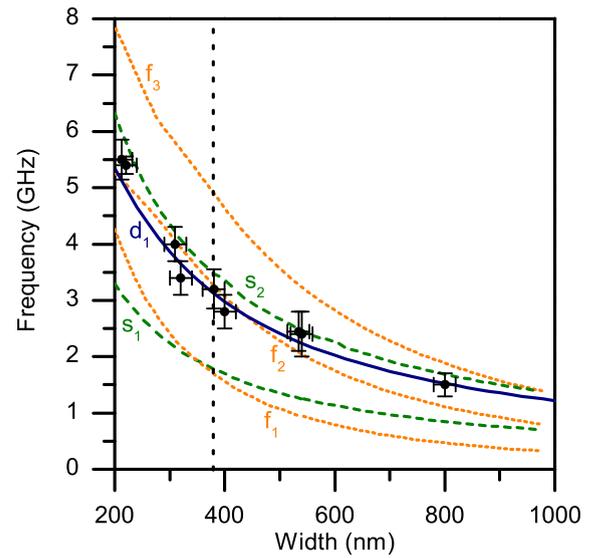


FIG. 4. Using a finite elements method, the acoustic mode frequency at wave number  $k=0$  is plotted versus the nanobeam width. Flexural, shear, and dilatational modes are, respectively, the orange dotted lines, the green dashed lines, and the blue solid lines. Experimental measurements are the full black circle with bars. The vertical black dashed line at 370nm is the specific width where dispersion relations have been calculated (Fig. 3) and propagation has been observed (Fig. 5).

2.1  $\mu\text{m}$ , is presented in Fig. 5(a). The vertical scale corresponds to the pump-probe spatial separation. The exponential thermal background has been removed. As physical insight on the attenuation process is beyond the scope of this study, each transient reflectivity signal is normalized by its maximum: the eighth experimental signal with 2.1  $\mu\text{m}$  spatial separation is 1 order of magnitude less intense than the first one when pump and probe beams are spatially superimposed. The signal is mainly composed by a 3.2 GHz oscillation. As the pump-probe separation increases, this wave-packet shifts to a longer time delays as expected for a propagation guided along the nanobeam. This is analogous to what has already been observed in copper nanowires.<sup>15</sup> However, let us have a closer look at the individual wave fronts (Fig. 5(e)). It appears that as the wave-packet propagates (from darker to lighter curve), the individual wave fronts move to smaller time-delay. To investigate this propagation quantitatively, we use the previously developed expression of the reflectivity for a propagating gaussian wave-packet with the parabolic dispersion relation  $\omega(k) = ak^2 + bk + \gamma$ <sup>15</sup>

$$\Delta r(t) \propto \text{Re} \left( \frac{\exp(-i\gamma t)}{\sqrt{\sigma^2 + 32i\alpha t}} \exp \left( -\frac{8(z_0 - \beta t)^2}{\sigma^2 + 32i\alpha t} \right) \right), \quad (1)$$

where  $z_0$  is the spatial pump-probe separation and  $\sigma$  is the root of the sum of squares of the pump and probe beam diameters at  $1/e^2$ . A polynomial fit at small wavenumber for  $d_1$ ,  $f_2$ , and  $s_2$  (see inset Fig. 3(a)) is used. We then evaluate the theoretical reflectivity signal for these three modes  $d_1$  (Fig. 5(b)),  $f_2$  (Fig. 5(c)), and  $s_2$  (Fig. 5(d)) at different pump and probe separations. The progressive shift of the wave-packet is very slow for the  $f_2$  mode (Fig. 5(c)), due to the very flat dispersion relation. Both the  $f_2$  and  $s_2$  modes show parallel propagation of the individual wave fronts and the

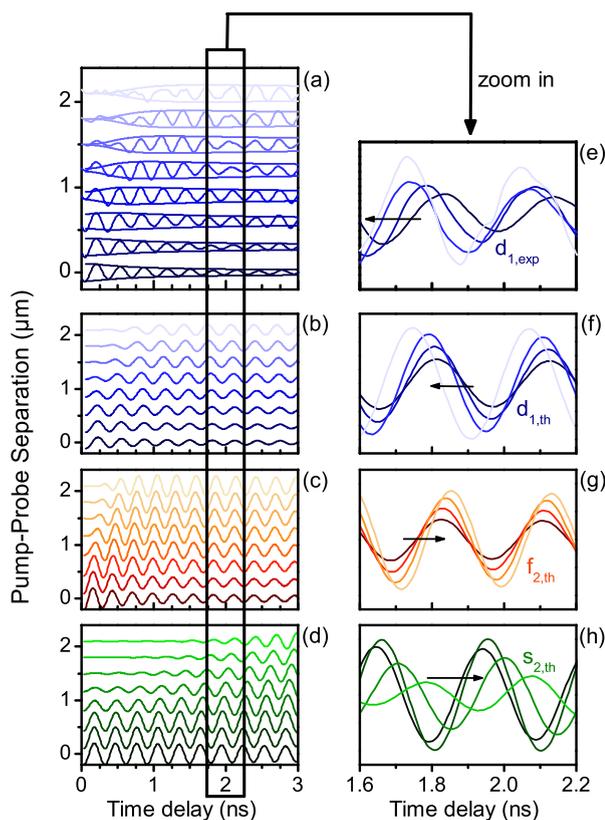


FIG. 5. (a) Experimental transient relative reflectivity signal at different spatial pump-probe separations (the decreasing exponential background has been removed). The offset corresponds to the spatial pump-probe shift and the reflectivity modulation is normalised by the maximum. The envelope of the eight experimental traces in (a) is the simulated envelope of the first dilatational mode  $d_1$  after propagation. (b)–(d) are the simulated transient relative reflectivity signal of the modes  $d_1$ ,  $f_2$ , and  $s_2$ , according to the parabolic fit of the dispersion relation (Fig. 3(a)). (e)–(h) are, respectively, the same signals as in (a)–(d) zoomed in a shorter time window. Only half of the eight curves are plotted for readability. The offset is also suppressed in order to observe the propagation direction of the phase of the wave. The black arrow indicates this propagation direction.

wave packet (Figs. 5(g) and 5(h)), whereas the  $d_1$  mode exhibits the expected backward propagation behavior (Fig. 5(f)). According to our simplified analytical expression, the parallel (forward) or anti-parallel (backward) behavior is strongly dependent on the sign of the curvature parameter  $\alpha$ . The first dilatational mode  $d_1$  is the only one to exhibit a negative curvature  $\alpha$  at low wave numbers  $k$  which are the only wave numbers excited owing to the laser spot diameters of around  $1\ \mu\text{m}$ . To confront the experiment, the envelope of the theoretical signal  $d_1$  is also plotted on the experimental oscillation and shows a good agreement (Fig. 5(a)). Finally, it could be argued that the experimental signal is a superposition of two or more acoustic modes. However, if a contribution of beyond 10% of  $f_2$  or  $s_2$  is added in the simulated signal  $d_1$ , the resulting simulated propagative wave no longer exhibits the backward wave behavior. The backward wave observation in our 1D elastic waveguide is thus the unique fingerprint of the first width dilatational mode  $d_1$ .

In conclusion, two dilatational acoustic modes are investigated on e-beam lithographed gold nanobeams by pump-probe time-resolved spectroscopy leading to the observation

of backward wave propagation in the gigahertz range. As a first application, we show unambiguous acoustic mode discrimination using this unique property in the dispersion relations. Furthermore, as already observed in 2D Lamb waveguides, one can imagine to tune the width and thickness of our nanobeam, thus opening the way to negative refraction physics in acoustics at the nanoscale.

The authors would like to thank Michael Rosticher at the ENS for the EBL steps during the maintenance in our facilities, Mélanie Escudier for the gold deposition process, and Frances Edwards for her careful proofreading of the manuscript's English.

- <sup>1</sup>A. Crut, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée, *Phys. Rep.* **549**, 1 (2015).
- <sup>2</sup>V. Juvé, A. Crut, P. Maioli, M. Pellarin, M. Broyer, N. Del Fatti, and F. Vallée, *Nano Lett.* **10**, 1853 (2010).
- <sup>3</sup>M. van Dijk, M. Lippitz, and M. Orrit, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 267406 (2005).
- <sup>4</sup>P. Siry, L. Belliard, and B. Perrin, *Acta Acust. Acust.* **89**, 925 (2003).
- <sup>5</sup>A. Vertikov, M. Kuball, A. V. Nurmikko, and H. J. Maris, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2465 (1996).
- <sup>6</sup>Y. Guillet, C. Rossignol, B. Audoin, G. Calbris, and S. Ravaine, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 061909 (2009).
- <sup>7</sup>T. Bienville, J. F. Robillard, L. Belliard, I. Roch-Jeune, A. Devos, and B. Perrin, *Ultrasonics* **44**(Suppl. 1), e1289 (2006).
- <sup>8</sup>T. A. Kelf, Y. Tanaka, O. Matsuda, E. M. Larsson, D. S. Sutherland, and O. B. Wright, *Nano Lett.* **11**, 3893 (2011).
- <sup>9</sup>N. Del Fatti, C. Voisin, F. Chevy, F. Vallée, and C. Flytzanis, *J. Chem. Phys.* **110**, 11484 (1999).
- <sup>10</sup>H. Staleva and G. V. Hartland, *Adv. Funct. Mater.* **18**, 3809 (2008).
- <sup>11</sup>P. Zijlstra, A. L. Tchebotareva, J. W. M. Chon, M. Gu, and M. Orrit, *Nano Lett.* **8**, 3493 (2008).
- <sup>12</sup>T. A. Major, A. Crut, B. Gao, S. S. Lo, N. Del Fatti, F. Vallée, and G. V. Hartland, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 4169 (2013).
- <sup>13</sup>L. Belliard, T. W. Cornelius, B. Perrin, N. Kacemi, L. Becerra, O. Thomas, M. Eugenia Toimil-Molares, and M. Cassinelli, *J. Appl. Phys.* **114**, 193509 (2013).
- <sup>14</sup>O. Ristow, M. Merklein, M. Grossmann, M. Hettich, M. Schubert, A. Bruchhausen, J. Grebing, A. Erbe, D. Mounier, V. Gusev, E. Scheer, T. Dekorsy, and E. C. S. Barretto, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 233114 (2013).
- <sup>15</sup>C. Jean, L. Belliard, T. W. Cornelius, O. Thomas, M. E. Toimil-Molares, M. Cassinelli, L. Becerra, and B. Perrin, *J. Phys. Chem. Lett.* **5**, 4100 (2014).
- <sup>16</sup>P.-A. Mante, Y.-C. Wu, Y.-T. Lin, C.-Y. Ho, L.-W. Tu, and C.-K. Sun, *Nano Lett.* **13**, 1139 (2013).
- <sup>17</sup>A. Amziane, L. Belliard, F. Decremps, and B. Perrin, *Phys. Rev. B* **83**, 14102 (2011).
- <sup>18</sup>V. Veselago and E. Narimanov, *Nat. Mater.* **5**, 759 (2006).
- <sup>19</sup>V. G. Veselago, *Sov. Phys. Usp.* **10**, 509 (1968).
- <sup>20</sup>C. G. Parazzoli, R. B. Greegor, J. A. Nielsen, M. A. Thompson, K. Li, A. M. Vetter, M. H. Tanielian, and D. C. Vier, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3232 (2004).
- <sup>21</sup>H. Lamb, *Proc. London Math. Soc.* **2**, 473 (1904).
- <sup>22</sup>A. H. Meitzler, *J. Acoust. Soc. Am.* **38**, 835 (1965).
- <sup>23</sup>A. A. Maznev and A. G. Every, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 011903 (2009).
- <sup>24</sup>F. D. Philippe, T. W. Murray, and C. Prada, *Sci. Rep.* **5**, 11112 (2015).
- <sup>25</sup>S. Bramhavar, C. Prada, A. A. Maznev, A. G. Every, T. B. Norris, and T. W. Murray, *Phys. Rev. B* **83**, 014106 (2011).
- <sup>26</sup>C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, and J. Hauser, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 989 (1984).
- <sup>27</sup>M. A. Meyers and K. K. Chawla, *Mechanical Behavior of Materials* (Cambridge University Press, Cambridge, 2009), Vol. 2.
- <sup>28</sup>B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, and J. C. Jeannet, *Physica B* **263–264**, 571 (1999).
- <sup>29</sup>M. Hu, X. Wang, G. V. Hartland, P. Mulvaney, J. P. Juste, and J. E. Sader, *J. Am. Chem. Soc.* **125**, 14925 (2003).
- <sup>30</sup>A. Crut, V. Juvé, D. Mongin, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée, *Phys. Rev. B* **83**, 205430 (2011).

# Spatiotemporal Imaging of the Acoustic Field Emitted by a Single Copper Nanowire

Cyril Jean,<sup>\*,†</sup> Laurent Belliard,<sup>†</sup> Thomas W. Cornelius,<sup>‡</sup> Olivier Thomas,<sup>‡</sup> Yan Pennec,<sup>¶</sup> Marco Cassinelli,<sup>§</sup> Maria Eugenia Toimil-Molaes,<sup>§</sup> and Bernard Perrin<sup>†</sup>

<sup>†</sup>Sorbonne Universités, UPMC Université Paris 06, CNRS UMR 7588, Institut des NanoSciences de Paris, F-75005 Paris, France

<sup>‡</sup>Aix-Marseille Université, CNRS UMR 7334, IM2NP, F-13397 Marseille Cedex, France

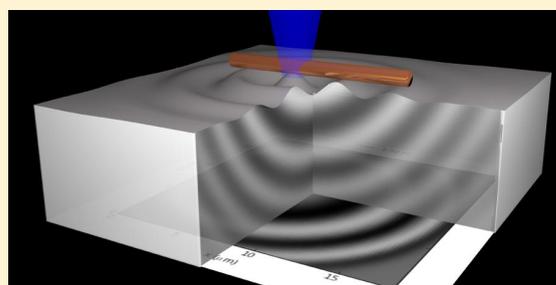
<sup>¶</sup>Institut d'électronique, de microélectronique et de nanotechnologie (IEMN), UMR CNRS 8520, UFR de physique, Université de Lille-1, Cité scientifique, 59652 Villeneuve-d'Ascq cedex, France

<sup>§</sup>GSI Helmholtz Centre for Heavy Ion Research, D-64291 Darmstadt, Germany

## S Supporting Information

**ABSTRACT:** The monochromatic and geometrically anisotropic acoustic field generated by 400 and 120 nm diameter copper nanowires simply dropped on a 10  $\mu\text{m}$  silicon membrane is investigated in transmission using three-dimensional time-resolved femtosecond pump–probe experiments. Two pump–probe time-resolved experiments are carried out at the same time on both sides of the silicon substrate. In reflection, the first radial breathing mode of the nanowire is excited and detected. In transmission, the longitudinal and shear waves are observed. The longitudinal signal is followed by a monochromatic component associated with the relaxation of the nanowire's first radial breathing mode. Finite difference time domain (FDTD) simulations are performed and accurately reproduce the diffracted field. A shape anisotropy resulting from the large aspect ratio of the nanowire is detected in the acoustic field. The orientation of the underlying nanowires is thus acoustically deduced.

**KEYWORDS:** Nanowires, ultrafast pump–probe spectroscopy, acoustic phonons, acoustic transducers, suboptical diffraction limited acoustic



Coherent acoustic phonons with very high in-depth spatial resolution can be generated through the absorption of a femtosecond laser pulse by a nanostructure, such as a semiconducting or metallic thin film<sup>1</sup> or multiple quantum wells.<sup>2</sup> Such generated acoustic waves exhibit a wavelength in the order of magnitude of tens of nanometers, which is proved useful for noninvasive ultrasonic imaging in biological tissues<sup>3,4</sup> or for very high frequency optomechanics.<sup>5</sup> Nonlinear effects could even increase this in-depth spatial resolution by decreasing the spatial extent of the acoustic pulse.<sup>6</sup> However, the lateral resolution of such laser ultrasonic measurements is still limited by the diffraction of light that imposes a micrometric lateral resolution. In order to improve the lateral resolution down to the submicrometer scale, various approaches have been suggested. For example, near-field optical microscopy (NSOM) was incorporated into the picosecond ultrasonics experimental setup.<sup>7,8</sup> In addition, an opto-acoustic scanning acoustic microscope has also been reported, claiming a lateral resolution below 100 nm.<sup>9,10</sup> A stimulated emission depletion (STED) inspired approach has also reduced the acoustic spot lateral dimension to 140 nm.<sup>11</sup> The use of nanostructures as acoustic transducers integrated in scanning acoustic microscopy systems is also promising. Yang

et al.<sup>12</sup> reported the use of a nanowire as an acoustic transducer to optically generate and guide an acoustic pulse. This nanowire can be integrated on an AFM cantilever used to sweep the underlying sample. However, although confined acoustic modes in individual metallic nano-objects is a well-studied topic,<sup>13–17</sup> the propagation of acoustic waves in nanometric waveguides<sup>18–21</sup> and the characterization of the ability to generate an acoustic wave into the substrate is scarce.<sup>22</sup>

In this letter, we propose and demonstrate the use of copper nanowires as efficient nanometric, monochromatic, tunable, and anisotropic acoustic transducers. First, investigations of the radial breathing mode of the nanowires of 120 and 400 nm diameter are performed using time-resolved pump–probe spectroscopy in the common front side reflectivity setup. Then, a back side transmission setup is used to detect any acoustic feature generated by the nanowire and reaching the other side of the silicon membrane. This approach based on the spatial imaging of the acoustic field enables us to highlight the shape anisotropy of the nanowire-generated acoustic field.

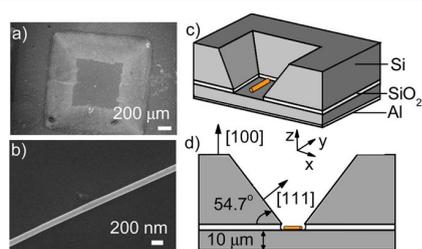
**Received:** August 4, 2016

**Revised:** September 7, 2016

**Published:** September 22, 2016

Finite difference time domain (FDTD) simulations are compared to the experimental acoustic field data and may allow a rough estimation of the nanowire–substrate contact size. The imaging of the transmitted 8 and 27 GHz monochromatic acoustic waves through a 10  $\mu\text{m}$  silicon membrane is a very important step toward the use of nano-objects as acoustic transducers for acoustic imaging with nanometric lateral resolution.

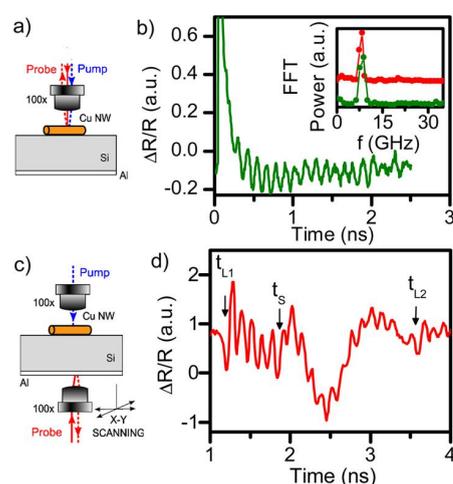
Because of their high aspect ratio, their quasi-perfect cylindricity and their smooth contour surface, we have chosen copper nanowires grown by electrodeposition in polycarbonate etched ion-track membranes<sup>23</sup> as model systems to study the confined<sup>24</sup> and propagating<sup>18</sup> acoustic phonons in single nano-objects. The details of their fabrication are described in the [Supporting Information](#). Here, these copper nanowires are considered as monochromatic acoustic transducers when simply in contact with a silicon substrate. Indeed, as previously shown,<sup>24–26</sup> the huge increase in the quality factor of a nanowire’s radial breathing mode when suspended in air is interpreted as the suppression of the dissipation channel through the nanowire–substrate contact. In this work, we go one step further and are able to detect the dissipated acoustic energy in transmission after its propagation through the substrate. We investigate two types of nanowires with length  $L > 10 \mu\text{m}$  and diameter  $d = 120$  and 400 nm ([Figure 1a](#)).



**Figure 1.** (a) SEM top view of the etched silicon on insulator wafer. (b) Close SEM view of a 120 nm copper nanowire supported by the silicon substrate. (c) Three-dimensional schematic of the etched 100  $\mu\text{m}$  SOI wafer, resulting in a 10  $\mu\text{m}$  silicon membrane with a squared surface topped with a thin 100 nm aluminum layer. (d) Side schematic view of a nanowire resting at the bottom of a silicon membrane.

According to the continuum mechanics model that holds at these sizes,<sup>27,28</sup> the expected frequencies  $f$  of our mechanical nanoresonators are in the range  $f \approx c_L/d \approx 10$  to 30 GHz. At room temperature, these high frequency acoustic phonons suffer severe attenuation in silicon. Consequently the experiments are performed on 10  $\mu\text{m}$  thick silicon membranes obtained by a wet etching in KOH on a 2 in. silicon-on-insulator (SOI) wafer ([Figure 1b–d](#)). Experimental details on the fabrication are provided in the [Supporting Information](#) ([Figure S3](#)).

The elastic response of the 400 nm diameter copper nanowires is investigated using a femtosecond optical pump–probe technique described extensively in previous works<sup>29</sup> and in the [Supporting Information](#). The mechanical vibrations of the copper nanowires are first studied using the common front side setup where both the pump and the probe laser beams are colinear and focused using the same objective ([Figures 2a](#) and [S4](#)). Using preliminary SEM experiments ([Figure 1b](#)), a single nanowire is located and the subsequent single particle experiment is performed. In this approach, a first blue pump pulse excites the conduction electrons of the metallic nano-

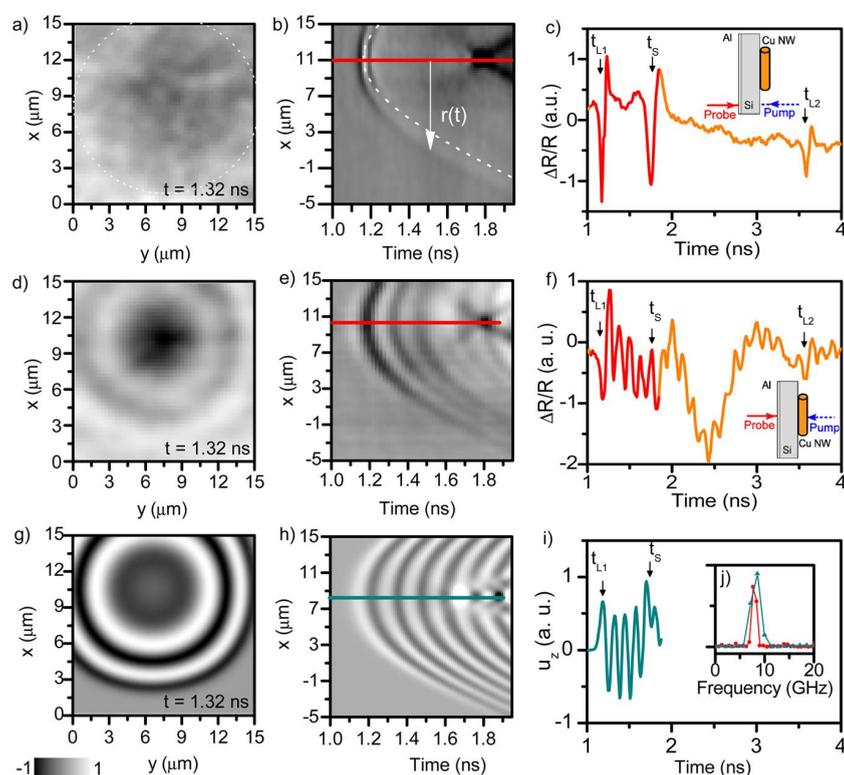


**Figure 2.** (a) Front side configuration. Both the blue pump laser and the red probe laser are focused on a single 400 nm diameter copper nanowire using the same 100 $\times$  objective with a numerical aperture  $NA = 0.95$ . (b) Relative reflectivity  $\Delta R/R$  obtained in the front side configuration of [Figure 1a](#). It exhibits an oscillatory signal with a period  $T = 125$  ps. Inset: normalized FFT power spectrum of the derived signal of d (in red) and b (in green). (c) Back side configuration. The two laser beams are focused on different sides of the silicon membrane. The probe is mounted on a piezoelectric stage in order to map the displacement field on a maximum 150  $\mu\text{m} \times 150 \mu\text{m}$  area. (d) Relative reflectivity  $\Delta R/R$  obtained in the back side configuration of [Figure 1c](#). It exhibits an oscillatory component with a period  $T = 125$  ps.

object. The subsequent electron cooling by electron–lattice interactions<sup>30</sup> results in the heating of the crystal lattice finally launching the dilatation of the nanowire.<sup>31,32</sup> Because of the electrons fast diffusion, this ultrafast heating is not confined to the surface of the nano-object, the whole width of the nanowire subsequently undergoes periodic radial contractions and expansions. These isotropic volume oscillations correspond to the fundamental breathing mode of the nanowire.<sup>24,26</sup> These periodic lattice oscillations induce a modulation of the metal refractive index, which shows up by a periodic variation of the relative probe reflectivity  $\Delta R/R$  ([Figure 2b](#)). The oscillatory signal is superimposed to an exponentially decaying background as the nanowire cools down by transferring its energy to the substrate. The oscillation frequency  $f_0 = 8.0 \pm 0.2$  GHz is extracted from the time trace by either a fast Fourier transform (FFT) or a numerical fitting with a damped sinusoidal function superimposed to an exponentially decaying background. Both methods lead to a quality factor  $Q$  on the order of 20. This frequency is compared to the theoretical first radial breathing mode frequency of a free, elastically isotropic and infinite copper cylinder,  $f_0 = \phi_0 v_L / (2\pi a)$ , where  $a = 200 \pm 15$  nm is the radius of the nanowire and  $\phi_0$  is the first root of [eq 1](#)

$$2 \left( \frac{v_T}{v_L} \right)^2 J_1(\phi_n) = \phi_n J_0(\phi_n) \quad (1)$$

where  $v_L = 4.5 \times 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  and  $v_T = 2.2 \times 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  are respectively the longitudinal and transversal speed of sound in bulk polycrystalline copper.<sup>33</sup>  $J_0$  and  $J_1$  are respectively the Bessel functions of the first kind of order 0 and 1. The theoretical breathing mode frequency reaches  $f_0 = 8.0 \pm 0.3$  GHz, where the frequency uncertainty is dictated by the 15 nm fluctuations in the nanowire diameter. Owing to the radial



**Figure 3.** (a–c) Reference mapping: the pump hits directly the silicon membrane (schematic inset c). (d–f) The pump excites the first radial breathing mode of the 400 nm diameter copper nanowire (schematic inset f), which generates a monochromatic longitudinal acoustic wave leading to concentric rings. (g–i) FDTD simulation: the acoustic source is a 8 GHz monochromatic longitudinal displacement imposed on the surface of the silicon layer. (j) FFT power spectrum of the red part of panel f and the turquoise part of panel i. (a,d,g) Two-dimensional  $x$ – $y$  surface displacement mapping at  $t_{\text{map}} = 1.32$  ns. (b,e,h) Two-dimensional  $x$ – $t$  surface displacement mapping at fixed  $y_0 = 7$   $\mu\text{m}$ . (c,f,i) One-dimensional (time domain) surface displacement recording on the position  $x_0 = 10$   $\mu\text{m}$  and  $y_0 = 7$   $\mu\text{m}$ . The red (or turquoise) part of the signal matches the corresponding red (or turquoise) line on panels b, e, and h.

displacement of this breathing mode, the acoustic energy of the nanowire is expected to leak toward the substrate mainly as a longitudinal wave. By flipping a mirror, the experimental setup is thus switched to the backside configuration (Figures 2c and S4). The nanowire remains excited by the blue pump laser, whereas the red probe laser is now focused on the other side of the silicon membrane. The relative reflectivity trace recorded using a Michelson interferometer is plotted in Figure 2d. The origin of the plot corresponds to the electronic coincidence in the frontside configuration. The longitudinal deformation at  $t_{L1} = 1.18 \pm 0.02$  ns is followed by a monochromatic oscillation at the same frequency  $f_0 = 8.0 \pm 0.4$  GHz as observed in the frontside configuration (inset Figure 2b). As expected, these oscillations present a quality factor close to that observed in the frontside configuration even if an accurate comparison is not reachable because the damping time of the oscillations is on the order of magnitude of the time delay between the two longitudinal echoes. The second longitudinal echo appears at  $t_{L2} = 3.56 \pm 0.02$  ns after an additional round trip. This second echo is also followed by oscillations. Owing to the well-known longitudinal speed of sound along the  $\langle 100 \rangle$  direction of silicon,  $v_L^{\text{SI}} = 8.43 \times 10^3$   $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , one gets the thickness  $h = (t_{L2} - t_{L1})v_L^{\text{SI}}/2 = 10.0 \pm 0.2$   $\mu\text{m}$  of the silicon membrane. The shear wave is thus expected at a time delay  $t_S = h/v_T^{\text{SI}} = 1.84 \pm 0.02$  ns, where  $v_T^{\text{SI}} = 5.84 \times 10^3$   $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  is the transverse speed of sound along the  $\langle 100 \rangle$  direction of silicon. As the shear wave reaches the surface while the 8.0 GHz longitudinal oscillations are still

occurring, the exact time of arrival cannot be accurately determined. However, the main reflectivity change produced by the shear wave appears between 1.8 and 2.8 ns. This wide shear wave signature will be discussed later on. The perfect agreement between the resonance frequency of the nanowires' radial breathing mode and the frequency of the generated monochromatic longitudinal wave across the membrane is strong evidence that the nanowire acts as a nanoacoustic wave transducer. We noticed this behavior on several different nanowires: whenever the front side configuration signal shows an oscillatory component, the reported emission phenomenon is observed.

A control experiment is additionally performed. Starting with the time-resolved interferometric measurement in Figure 2d (reproduced in the Figure 3f) when the blue pump beam hits the copper nanowire, the sample is smoothly moved laterally so as the pump beam does not excite the nanowire anymore (Figure 3c). In this configuration, the monochromatic oscillation disappears and the three remaining dipolar peaks at  $t_{L1}$ ,  $t_{L2}$ , and  $t_S$  correspond to the longitudinal (direct and after one round trip) and transverse echoes. Both longitudinal and shear waves are effectively excited in the  $(100)$  oriented silicon membrane due to the small size of the pump and probe beams.<sup>34,35</sup> The amplitude of the acoustic echoes is similar between the two experiments, but the pump power is 5 mW in Figure 3c and 0.5 mW in Figure 3f. The metallic nanowire is thus accountable for the monochromatic oscillations observed

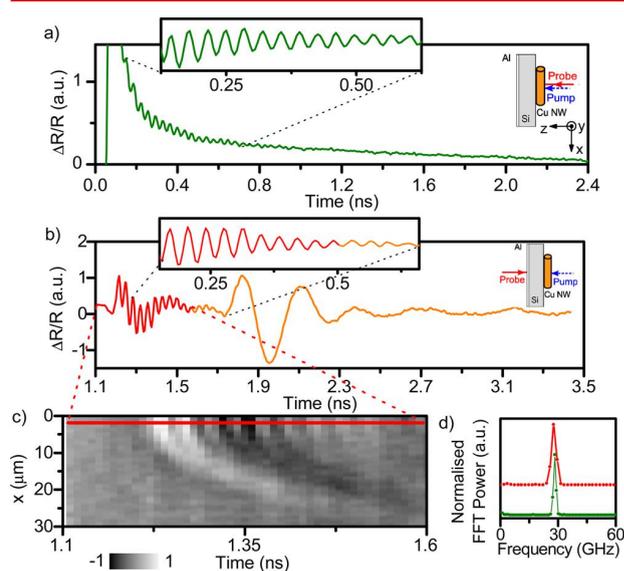
in Figure 3f. The surface displacement produced by the acoustic wave was recorded in time and space by displacing the probe laser, which is mounted on a piezoelectric stage allowing a movement of 150  $\mu\text{m}$  with an accuracy of 5 nm. Complementary to the experiments described previously (see Figure 3c,f), two different arrangements of the backside configuration were realized where the pump laser beam excites either the nanowire (Figures 3d,e) or the silicon substrate directly (Figures 3a,b). The first experiment is a two-dimensional  $x$ - $y$  surface displacement mapping at a fixed time delay  $t_{\text{map}} = 1.32$  ns after the electronic coincidence in the frontside configuration. Considering the micrometric penetration depth of the light in the silicon, the generation of acoustic waves directly in the silicon substrate is inefficient, explaining the extremely poor contrast in the 2D-spatial mapping shown in Figure 3a (the dotted circle is a guide for the eye). On the contrary, when the acoustic wave is generated by a laser-excited copper nanowire, the generation of concentric acoustic waves is highlighted in Figure 3d. These experiments can be performed at different time delays in order to obtain a movie (Movie S1 and S2). As the patterns possess a quasi circular symmetry, another experiment is performed to obtain information on how the patterns change as the acoustic waves evolve in time. This second experiment is a two-dimensional  $x$ - $t$  surface displacement mapping at a fixed position  $y_0 = 7$   $\mu\text{m}$ . The alternation of white and black stripes in Figure 3e, which is missing on the reference Figure 3c, is characteristic of the longitudinal monochromatic acoustic wave emitted by the copper nanowire. In addition, using the rough isotropic approximation, the longitudinal branches in the Figure 3b,e should follow the equation  $r(t) = \sqrt{((v_L(t - t_{L1}) + h)^2 - h^2)}$  (dotted line in the Figure 3b). This approximation underestimates the experimental  $r(t)$ . To investigate the nanowire-mediated generation of acoustic waves beyond the rough isotropic estimation, anisotropic FDTD experiments are calculated using a Fortran code developed at the IEMN in Lille. In order to design the geometry of the acoustic source in this simulation, an estimation of the spatial dimensions of the acoustic source generated by the nanowire deposited on the silicon frontside is needed. For now, the nanowires' excitation is produced by a blue light pulse ( $\lambda = 400$  nm) using a 100 $\times$  objective with a numerical aperture NA = 0.95. The beam diameter at  $1/e^2$  is thus measured to be slightly smaller than 1  $\mu\text{m}$ . The excited surface of the silicon substrate may be estimated as the surface of contact between the excited area of the 400 nm nanowire and the silicon. Here, the acoustic source along the nanowire axis is confined to the irradiated part. Possible enlargement associated with guided acoustic phonons<sup>18</sup> along the axis could be neglected due to the huge elastic coupling with the substrate. In a first rough approximation, this source is described in the FDTD simulation by imposing a boundary speed equation

$$v_{zz}(x, y, z, t) = \sin(2\pi f_0 t) \exp(8((y - y_0)^2/\sigma_y^2 + (z - z_0)^2/\sigma_z^2 + x^2/\sigma_x^2))$$

where  $\sigma_x = 1$   $\mu\text{m}$  is related to the pump beam diameter,  $\sigma_y = 0.2$   $\mu\text{m}$  is given by the nanowire diameter, and  $\sigma_z = 0.1$   $\mu\text{m}$  is chosen to be small but nonzero to avoid abrupt discontinuity. The out of plane surface displacement  $u_z$  is thus recorded and plotted in Figure 3g–i using the exact same representation as in Figure 3d–f. The time-of-flight of the longitudinal and

transverse echoes (Figure 3i), as well as the concentric rings (Figure 3g) or alternating white and black stripes (Figure 3h) are in good agreement with the experimental data in Figures 3d–f. Modeling the copper nanowire as a submicronic monochromatic longitudinal acoustic transducer seems to effectively describe our experimental observations, even though the transverse acoustic wave signature cannot be grasped perfectly by these simulations.

According to the simultaneous experiments in the frontside and the backside configurations of Figure 2, the generated acoustic wave is due to the laser-excited radial breathing mode of the copper nanowire. As the first radial breathing mode frequency,  $f_0$  is inversely proportional to the radius  $a$  of the nanowire, it is expected that using smaller nanowires will result in a higher frequency acoustic transducer. Figure 4 shows the



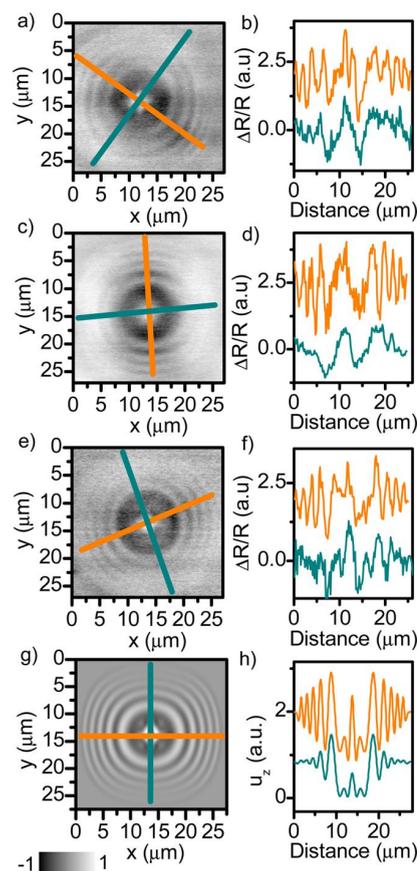
**Figure 4.** (a) Relative reflectivity  $\Delta R/R$  obtained in the front side configuration (see schematic in the inset). Both the blue pump and the red probe are focused on a single 120 nm diameter copper nanowire using the same 100 $\times$  objective with a numerical aperture NA = 0.95. The other inset is the derived signal exhibiting a 35 ps oscillatory signal. (b) Relative reflectivity  $\Delta R/R$  obtained in the back side configuration (see schematic in the inset) when the blue pump is focused on a single 120 nm diameter copper nanowire. The other inset is the derived signal exhibiting an oscillatory signal with a periodicity  $T = 38$  ps. (c) Two-dimensional (spatiotemporal) surface displacement mapping along the spatial direction  $x$ . The red line corresponds to the red part of the oscillatory signal in panel b. (d) Normalized FFT power spectrum of the inset of panels b (in red) and a (in green).

results obtained using copper nanowires with  $120 \pm 10$  nm diameter. For these thinner nanowires, the radial breathing mode frequency amounts  $f_0 = 26.5 \pm 0.2$  GHz (Figure 4d), which corresponds to a temporal period  $T_0 = 38 \pm 3$  ps. Similar to Figure 2, both reflectivity frontside (Figure 4a) and interferometric backside measurements (Figure 4b) are shown. Once again, the monochromatic oscillations obtained using the frontside optical setup (Figure 4 relative reflectivity time trace a) or the backside optical setup (Figure 4 relative reflectivity time trace b) appear to be at the same frequency  $f_0 = 26.5 \pm 0.2$  GHz (Figure 4d). Another oscillatory component at  $\sim 3$  GHz starts around 1.8 ns, at the time delay where the shear wave is expected. This low frequency modulation was also

present in Figure 2 at the same time delay but at a lower frequency around  $\sim 1.5$  GHz. This could be the signature of a low frequency shear acoustic mode generated by the nanowire as the frequency depends on the nanowire's diameter. However, as this acoustic feature is missing in the frontside experiment, we are not able to attribute this behavior to any specific acoustic mode. It could be related to some contact mode in the same manner that was previously observed on single gold nanoparticles.<sup>36</sup> Thus, further investigations are still needed to address this question. The insets in these two subfigures are the derived signals to get rid of the low frequency features in the relative reflectivity signals. Unlike the 8 GHz case, these insets permit a direct and convincing comparison of the damping time of the oscillations between the two cases as the oscillation lifetime is shorter than the time delay between the two longitudinal echoes. Thus, this damping time can be accurately determined and reaches  $\tau = 0.2$  ns in transmission to be compared to  $\tau = 0.3$  ns in the frontside configuration, which corresponds to a quality factor  $Q = \pi f_0 \tau \approx 30$  in good adequation with previous studies on supported metallic nanowires.<sup>24,37</sup> A pseudocolor  $x-t$  spatiotemporal surface displacement mapping along the spatial direction  $x$  is presented in the Figure 4c. The white and black stripe alternance, which corresponds to the nanowire breathing mode leaking through the substrate, is only distinguishable directly in front of the generated acoustic wave. As the probe is moved along the  $x$  axis, this acoustic feature disappears under the noise. The square root shape of the branches is only visible for the first (and more intense) oscillation. As the wavelength of the 26.5 GHz acoustic wave reaches  $\sim 0.3 \mu\text{m}$ , a spatial imaging (here along the direction  $x$ ) becomes highly challenging as the probe is focused on a  $\sim 1 \mu\text{m}$  diameter spot. The attenuation that increases with the square of the frequency is also a critical parameter preventing us to obtain nice spatial mapping images.

In the last part of this letter, we focus on the 400 nm diameter nanowires vibrating at 8 GHz. As previously described, the blue pump pulse is focused on a nanowire using a 100 $\times$  objective with a numerical aperture NA = 0.95. The beam diameter at  $1/e^2$  is thus estimated to be under  $1 \mu\text{m}$ . Consequently, the contact surface between an excited 400 nm diameter copper nanowire and the silicon substrate is estimated as a  $200 \text{ nm} \times 1 \mu\text{m}$  rectangle. This elongated acoustic source should produce a geometrically anisotropic emission, due to a smaller size compared to the acoustic wavelength emitted in the silicon. Thus, the orientation of the underlying nanowire should be detected using such an anisotropic acoustic field. However, the  $x-y$  surface displacement mapping of the acoustic field produced by a 400 nm diameter nanowire in Figure 3d does not seem anisotropic: the inner ring seems circular and the color along its perimeter is constant and modulated by a strong noise. The FDTD simulation in Figure 3g does not reveal any obvious anisotropy in the acoustic field either. To understand this observation, let us remind the conditions to observe a diffraction phenomenon. Generally speaking, this phenomenon occurs if the size of the obstacle or the slit encountered by the wave is close to the spatial wavelength of the wave. In the present case, the upper limit dimensions of the acoustic source is a  $200 \text{ nm} \times 1 \mu\text{m}$  rectangle. In comparison, the wavelength of a longitudinal acoustic wave at 8 GHz is  $\lambda_0 = v_L/f_0 \approx 1 \mu\text{m}$ . Both dimensions of the acoustic source are thus below the characteristic length of the acoustic wave. A significant diffraction is therefore expected in both directions. The remote position of the observer is a second necessary condition to

observe a far field diffracted pattern. In our experiments, the diffraction will be significantly stronger if the two-dimensional  $x-y$  surface displacement mapping is undergone at a larger scale than the  $15 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$  of Figure 3. To do so, a  $27 \mu\text{m} \times 27 \mu\text{m}$   $x-y$  surface displacement mapping is observed at a time delay  $t_d$  chosen to be 700 ps after the first longitudinal echo detection in the center of the images (Figure 5a,c,e). In order to



**Figure 5.** (a,c,e) Two-dimensional  $x-y$  surface displacement mapping 700 ps after the longitudinal echo detection on the central position with a 50 $\times$  objective. The three different underlying nanowires are oriented along the blue cyan line. (g) FDTD two-dimensional  $x-y$  surface displacement ( $u_z$ ) mapping 700 ps after the longitudinal echo detection on the central position. The acoustic source is  $\sim 2 \mu\text{m}$  wide along the blue cyan line and  $\sim 0.2 \mu\text{m}$  wide along the orange line. (b,d,f,h) Surface displacement profile, respectively, along the orange and the cyan line. The offset is for readability purpose.

avoid any confusion with an elastic anisotropy resulting from the silicon substrate, three different nanowires are investigated. A blue line corresponding to the effective orientation of the long axis of the nanowire is added in the graphs. The orientation of the nanowire is checked using a CCD camera positioned on the probe beam path of the frontside setup. The effective position of the nanowires according to the recorded images is thus confirmed without any ambiguity. If the first one (Figure 5a) is arbitrarily referred to as horizontal ( $0^\circ$ ), the second one is at  $45^\circ$ , and the third one is at  $-55^\circ$ . The three corresponding pseudocolor plots of the  $27 \mu\text{m} \times 27 \mu\text{m}$  surface displacement mapping are presented in Figure 5a,c,e. A substantial modification is also made on the optical setup. Instead of using a 100 $\times$  objective with a numerical aperture NA

= 0.95 to focus the blue pump laser beam, a 50 $\times$  objective with a numerical aperture NA = 0.5 is preferred. The beam diameter at  $1/e^2$  is now estimated to be smaller than 2  $\mu\text{m}$ . The upper bound of the contact surface between the excited part of the nanowire and the silicon membrane is therefore a 200 nm  $\times$  2  $\mu\text{m}$  rectangle. Only one dimension of this rectangular source is now smaller than the wavelength  $\lambda_0$  of the considered acoustic wave. This dimension should be favorable to the observation of the diffraction. On the contrary, regarding the 2  $\mu\text{m}$  direction of the source, the phenomenon should be missing. While in Figure 3d when the laser beam diameter is slightly under 1  $\mu\text{m}$  we observe concentric rings, the images in Figure 5a,c,e exhibit incomplete rings. Being confident in the nanowires' orientation, the contrast between each ring appears to be maximal in the direction symbolized by an orange line and minimal in the orthogonal direction symbolized by the blue line corresponding to the long axis of the nanowire. These observations are in good agreement with the fact that diffraction is far more efficient in the direction perpendicular to the nanowire. Moreover, the two profile plots related to each image are depicted on the right-hand side of the Figure 5. The spatial period between each oscillation decreases as the distance from the epicenter increases. Using the same isotropic approximation as above, it can be shown that the spatial separation  $\Delta R$  between two successive rings is nonlinear (see the Supporting Information for details). In the case investigated here, the function decreases from 2.4 to 1.5  $\mu\text{m}$  from the inner to the outer rings. However, the radius of the rings are underestimated (3.9, 6.2, 8.0, and 9.6  $\mu\text{m}$  in comparison to the experimental values  $6.0 \pm 0.2$ ,  $8.7 \pm 0.3$ ,  $10.1 \pm 0.3$ , and  $11.7 \pm 0.3 \mu\text{m}$ ). If this isotropic estimation grasps the good tendency, an anisotropic model is required for quantitative analysis. The same FDTD simulations are performed, modifying only  $\sigma_x$  to  $\sigma_x = 2 \mu\text{m}$  compared to Figure 3g in the above study. The simulated pseudocolor plot and the corresponding profiles are displayed in Figure 5g,h, respectively. The calculated radii of the different rings amount to 6.0  $\mu\text{m}$ , 8.5, 10.3, and 11.7  $\mu\text{m}$ , in excellent agreement with the experimental radii. The spatial separation effectively decreases between two successive rings from 2.5 to 1.8  $\mu\text{m}$  and finally to 1.4  $\mu\text{m}$ . The FDTD simulations clearly evidence the elastic anisotropy by the fact the concentric rings structures are not perfectly circular. It has to be differentiated from the shape anisotropy resulting from the elongated source. As a last physical insight, the shape anisotropy is quantified *in silico*. The simulation is undergone with  $\sigma_y$  varying from 100 nm to 2  $\mu\text{m}$ . A plot similar to Figure 5h is obtained and the ratio between the oscillation amplitude along the orange line and the blue line is extracted. As this ratio can be in principle extracted from experimental images, it could be a possible way to estimate  $\sigma_y$  and thus to give some insight on the surface contact between the nanowire and substrate, which is a challenging field of study.<sup>38</sup> However, below 1  $\mu\text{m}$ , a variation of the surface of adhesion of  $\sim 100$  nm leads to a relative variation of the ratio inferior to 1%, which is not distinguishable owing to the level of noise in our experiments.

To conclude, 400 and 120 nm diameter electrochemically grown copper nanowires have been used to generate 8 to 27 GHz, monochromatic and longitudinal acoustic phonons with submicronic lateral dimensions. Following a standard time-resolved pump–probe spectroscopy experiment in reflectivity to assign the acoustic frequencies to the radial breathing mode of the nanowires, picosecond laser ultrasonic experiments have been performed in transmission on silicon membranes. The as-

generated acoustic waves produced by the vibrating nanowires have been imaged in transmission in both time and space domains. The transmitted acoustic field exhibits a strong geometric anisotropy due to the high aspect ratio of the nanowires. The propagation of these gigahertz acoustic phonons generated by the copper nanowires has been modeled using FDTD simulations, which gives a good agreement with the experimental data. The transmission of the acoustic waves of the nanowire through a 10  $\mu\text{m}$  silicon substrate definitely shows the good adhesion of nanometric objects simply dropped on their substrate, producing a strong dissipative channel for the nanowire mechanical oscillator. Furthermore, this technique may be used to quantify the surface contact between nanowires and silicon substrates if stronger signal-to-noise ratios are achieved. Further investigations could also imply the modification of the substrate-wire coupling in order to exalt or inhibit the reported tunable emission of acoustic waves by a nanowire. This demonstration of nanometric longitudinal wave acoustic transducers could also be useful for improved lateral resolution of acoustic microscopy using, for instance, synthetic aperture focusing techniques.<sup>39</sup> The implementation of such a nanometric transducer on a sweeping device is now needed to pave the way to acoustic microscopy with nanometric lateral resolution.

## ■ ASSOCIATED CONTENT

### 5 Supporting Information

The Supporting Information is available free of charge on the ACS Publications website at DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b03260.

Full description of the nanowires' fabrication, the silicon membranes' fabrication, and the optical setup; detailed presentation of the isotropic model (PDF)

Evolution in time of the acoustic pattern of Figure 3d (MPG)

Evolution in time of the acoustic pattern of Figure 3a (MPG)

## ■ AUTHOR INFORMATION

### Corresponding Author

\*E-mail: cyril.jean@insp.upmc.fr.

### Notes

The authors declare no competing financial interest.

## ■ ACKNOWLEDGMENTS

M.E.T. and M.C. thank the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) for financial support within the priority program SPP 1386.

## ■ REFERENCES

- (1) Thomsen, C.; Grahm, H. T.; Maris, H. J.; Tauc, J. *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **1986**, *34*, 4129–4138.
- (2) Huynh, A.; Perrin, B.; Jusserand, B.; Lemaître, A. *Appl. Phys. Lett.* **2011**, *99*, 191908.
- (3) Dehoux, T.; Ghanem, M. A.; Zouani, O. F.; Rampnoux, J.-M.; Guillet, Y.; Dilhaire, S.; Durrieu, M.-C.; Audoin, B. *Sci. Rep.* **2015**, *5*, 8650.
- (4) Pérez-Cota, F.; Smith, R. J.; Moradi, E.; Marques, L.; Webb, K. F.; Clark, M. *Appl. Opt.* **2015**, *54*, 8388–8398.
- (5) Fainstein, A.; Lanzillotti-Kimura, N. D.; Jusserand, B.; Perrin, B. *Phys. Rev. Lett.* **2013**, *110*, 1–5.
- (6) Péronne, E.; Perrin, B. *Ultrasonics* **2006**, *44*, 1203–1207.

- (7) Vertikov, A.; Kuball, M.; Nurmikko, A. V.; Maris, H. J. *Appl. Phys. Lett.* **1996**, *69*, 2465.
- (8) Siry, P.; Belliard, L.; Perrin, B. *Acta Acust. United Ac.* **2003**, *89*, 925–929.
- (9) Maris, H.; Nurmikko, A. Enhanced Ultra-High Resolution Acoustic Microscope. US Patent US8,302,480, 2012.
- (10) Maris, H. J.; Nurmikko, A. V. Opto-Acoustic Methods and Apparatus for Performing High Resolution Acoustic Imaging and other Sample Probing and Modification Operations. US Patent US8,567,253, 2013.
- (11) Lin, K.-H.; Lai, C.-M.; Pan, C.-C.; Chyi, J.-I.; Shi, J.-W.; Sun, S.-Z.; Chang, C.-F.; Sun, C.-K. *Nat. Nanotechnol.* **2007**, *2*, 704–8.
- (12) Yang, S.-C.; Wei, P.-K.; Hsiao, H.-H.; Mante, P.-A.; Huang, Y.-R.; Chen, I.-J.; Chang, H.-C.; Sun, C.-K. *Appl. Phys. Lett.* **2014**, *105*, 211103.
- (13) van Dijk, M.; Lippitz, M.; Orrit, M. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, *95*, 267406.
- (14) Crut, A.; Maioli, P.; Fatti, N. D.; Vallée, F. *Phys. Rep.* **2014**, *549*, 1–43.
- (15) Marty, R.; Arbouet, A.; Girard, C.; Mlayah, A.; Paillard, V.; Lin, V. K.; Teo, S. L.; Tripathy, S. *Nano Lett.* **2011**, *11*, 3301–6.
- (16) Bonacina, L.; Callegari, A.; Bonati, C.; Mourik, F. V. *Nano Lett.* **2006**, 18–21.
- (17) Zijlstra, P.; Tchegotareva, A. L.; Chon, J. W.; Gu, M.; Orrit, M. *Nano Lett.* **2008**, *8*, 3493–3497.
- (18) Jean, C.; Belliard, L.; Cornelius, T. W.; Thomas, O.; Toimil-Molares, M. E.; Cassinelli, M.; Becerra, L.; Perrin, B. *J. Phys. Chem. Lett.* **2014**, *5*, 4100–4104.
- (19) Jean, C.; Belliard, L.; Becerra, L.; Perrin, B. *Appl. Phys. Lett.* **2015**, *107*, 193103.
- (20) Yang, S.-C.; Wu, Y.-C.; Mante, P.-A.; Chen, C.-C.; Chen, H.-P.; Chou, H.-Y.; Shih, M.-H.; Sun, C.-K. *Appl. Phys. Lett.* **2014**, *105*, 243101.
- (21) Mante, P.-A.; Wu, Y.-C.; Lin, Y.-T.; Ho, C.-Y.; Tu, L.-W.; Sun, C.-K. *Nano Lett.* **2013**, *13*, 1139–44.
- (22) Amziane, A.; Belliard, L.; Decremps, F.; Perrin, B. *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **2011**, *83*, 014102.
- (23) Molares, M. T.; Buschmann, V.; Dobrev, D.; Neumann, R.; Scholz, R.; Schuchert, I. U.; Vetter, J. *Adv. Mater.* **2001**, *13*, 62–65.
- (24) Belliard, L.; Cornelius, T. W.; Perrin, B.; Kacemi, N.; Becerra, L.; Thomas, O.; Eugenia Toimil-Molares, M.; Cassinelli, M. *J. Appl. Phys.* **2013**, *114*, 193509.
- (25) Yu, K.; Major, T. A.; Chakraborty, D.; Devadas, M. S.; Sader, J. E.; Hartland, G. V. *Nano Lett.* **2015**, *15*, 3964–3970.
- (26) Major, T. A.; Crut, A.; Gao, B.; Lo, S. S.; Del Fatti, N.; Vallée, F.; Hartland, G. V. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2013**, *15*, 4169–76.
- (27) Major, T. A.; Lo, S. S.; Yu, K.; Hartland, G. V. *J. Phys. Chem. Lett.* **2014**, *5*, 866–874.
- (28) Juvé, V.; Crut, A.; Maioli, P.; Pellarin, M.; Broyer, M.; Del Fatti, N.; Vallée, F. *Nano Lett.* **2010**, *10*, 1853–8.
- (29) Bienville, T.; Robillard, J. F.; Belliard, L.; Roch-Jeune, I.; Devos, A.; Perrin, B. *Ultrasonics* **2006**, *44*, e1289–94.
- (30) Muskens, O. L.; Del Fatti, N.; Vallée, F. *Nano Lett.* **2006**, *6*, 552–556.
- (31) Hodak, J. H.; Henglein, A.; Hartland, G. V. *J. Phys. Chem. B* **2000**, *104*, 9954–9965.
- (32) Voisin, C.; Del Fatti, N.; Christofilos, D.; Vallée, F. *J. Phys. Chem. B* **2001**, *105*, 2264–2280.
- (33) Ledbetter, H.; Naimon, E. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **1974**, *3*, 897–935.
- (34) Zhang, S.; Péronne, E.; Belliard, L.; Vincent, S.; Perrin, B. *J. Appl. Phys.* **2011**, *109*, 033507.
- (35) Decremps, F.; Belliard, L.; Gauthier, M.; Perrin, B. *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **2010**, *82*, 104119.
- (36) Guillet, Y.; Audoin, B.; Ferrié, M.; Ravaine, S. *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* **2012**, *86*, 035456.
- (37) Staleva, H.; Hartland, G. V. *Adv. Funct. Mater.* **2008**, *18*, 3809–3817.
- (38) Chang, W.-S.; Wen, F.; Chakraborty, D.; Su, M.-N.; Zhang, Y.; Shuang, B.; Nordlander, P.; Sader, J. E.; Halas, N. J.; Link, S. *Nat. Commun.* **2015**, *6*, 7022.
- (39) Jensen, J. A.; Nikolov, S. I.; Gammelmark, K. L.; Pedersen, M. H. *Ultrasonics* **2006**, *44*, e5–e15.

# Bibliographie

- [1] Optical Glass, Data Sheets. [http://www.schott.com/d/advanced\\_optics/ac85c64c-60a0-4113-a9df-23ee1be20428/1.0/schott-optical-glass-collection-datasheets-july-2015-eng.pdf](http://www.schott.com/d/advanced_optics/ac85c64c-60a0-4113-a9df-23ee1be20428/1.0/schott-optical-glass-collection-datasheets-july-2015-eng.pdf). Accessed : 2017-02-20. (Cited on page 130)
- [2] 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) :7831–43, 2014. doi:10.1364/OE.22.007831. (Cited on pages 2 and 62)
- [3] B. P. Abbott et al. Observation of Gravitational Waves from a Binary Black Hole Merger. *Phys. Rev. Lett.*, 116(6) :1–16, 2016. doi:10.1103/PhysRevLett.116.061102. (Cited on page 1)
- [4] M. Abramowitz and I. A. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions : with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*, volume 55. National Bureau of Standards : Applied Mathematics Series, 1964. ISBN 0-486-61272-4. (Cited on page 22)
- [5] J. D. Achenbach. *Wave Propagation in Elastic Solids*. Elsevier, 2012. ISBN 0720403251. (Cited on page 7)
- [6] 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(1) :014102, 2011. doi:10.1103/PhysRevB.83.014102. (Cited on pages 26, 91, 99, and 124)
- [7] A. Arbouet, N. Del Fatti, and F. Vallee. Optical Control of the Coherent Acoustic Vibration of Metal Nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 124(14), 2006. doi:10.1063/1.2185631. (Cited on page 69)
- [8] M. Aspelmeyer, T. J. Kippenberg, and F. Marquardt. Cavity Optomechanics. *Rev. Mod. Phys.*, 86(4) :1391, 2014. doi:10.1103/RevModPhys.86.1391. (Cited on page 2)
- [9] N. Bannov, V. Aristov, V. Mitin, and M. A. Stroschio. Electron Relaxation Times Due to the Deformation-Potential Interaction of Electrons with Confined Acoustic Phonons in a Free-Standing Quantum Well. *Phys. Rev. B*, 51 :9930–9942, 1995. doi:10.1103/PhysRevB.51.9930. (Cited on page 4)
- [10] D. Baresch, J. L. Thomas, and R. Marchiano. Observation of a Single-Beam Gradient Force Acoustical Trap for Elastic Particles : Acoustical Tweezers. *Phys. Rev. Lett.*, 116(2) :1–6, 2016. doi:10.1103/PhysRevLett.116.024301. (Cited on page 2)

- [11] J. Barral and P. Martin. The Physical Basis of Active Mechanosensitivity by the Hair-Cell Bundle. *Curr. Opin. Otolaryngol. Head Neck Surg.*, 19 :369–375, 2011. doi:10.1097/MOO.0b013e32834a8c33. (Cited on page 1)
- [12] A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, and K. Köhler. Coherent Zone-Folded Longitudinal Acoustic Phonons in Semiconductor Superlattices : Excitation and Detection. *Phys. Rev. Lett.*, 82(5) :1044–1047, 1999. doi:10.1103/PhysRevLett.82.1044. (Cited on pages 4 and 84)
- [13] E. Barthel. Adhesive Elastic Contacts : JKR and More. *J Phys. D Appl. Phys.*, 41(16) :163001, 2008. doi:10.1088/0022-3727/40/4/021. (Cited on page 30)
- [14] K. J. Bath. *Finite Element Procedures*. Klaus-Jurgen Bathe, 2007. ISBN 097900490X. (Cited on page 141)
- [15] L. Belliard, T. W. Cornelius, B. Perrin, N. Kacemi, L. Becerra, O. Thomas, M. Toimil-Molares, and M. Cassinelli. Vibrational Response of Free Standing Single Copper Nanowire through Transient Reflectivity Microscopy. *J. Appl. Phys.*, 114(19) :193509, 2013. doi:10.1063/1.4831957. (Cited on pages 26, 27, 31, 33, 35, 35, 48, 75, 100, 100, 105, and 114)
- [16] J. Biener, A. M. Hodge, A. V. Hamza, L. M. Hsiung, and J. H. Satcher. Nanoporous Au : a High Yield Strength Material. *J. Appl. Phys.*, 97(2) :1–5, 2005. doi:10.1063/1.1832742. (Cited on pages 37, 38, and 47)
- [17] T. Bienville, L. Belliard, P. Siry, and B. Perrin. Photothermal Experiments in the Time and Frequency Domains Using an Optical Near Field Microscope. *Superlattices Microst.*, 35(3-6) :363–374, 2004. doi:10.1016/j.spmi.2003.11.007. (Cited on pages 98 and 124)
- [18] 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 Suppl 1 :e1289–94, 2006. doi:10.1016/j.ultras.2006.05.179. (Cited on page 26)
- [19] T. Bienville, P. Siry, L. Belliard, and B. Perrin. Picosecond Acoustics with Very High Lateral Resolution. *Proceedings of the 5th World Congress on Ultrasonics*, pages 809–8012, 2003. (Cited on pages 98, 99, and 124)
- [20] G. Binnig and C. F. Quate. Atomic Force Microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 56(9) :930–933, 1986. doi:10.1103/PhysRevLett.56.930. (Cited on page 127)
- [21] E. S. Blakelock. Never Judge A Gold Object by Its Surface Analysis : A Study of Surface Phenomena in a Selection of Gold Objects From the Staffordshire Hoard. *Archaeometry*, 58(6) :912–929, 2016. doi:10.1111/arcm.12209. (Cited on page 37)
- [22] L. Bonacina, A. Callegari, C. Bonati, F. Van Mourik, and M. Chergui. Time-resolved Photodynamics of Triangular-Shaped Silver Nanoplates. *Nano Lett.*, 6(1) :7–10, 2006. doi:10.1021/nl052131+. (Cited on page 26)

- [23] B. Bonello, L. Belliard, J. Pierre, J. O. Vasseur, B. Perrin, and O. Boyko. Negative Refraction of Surface Acoustic Waves in the Subgigahertz Range. *Phys. Rev. B*, 82(10) :104109, 2010. doi:10.1103/PhysRevB.82.104109. (Cited on page 76)
- [24] E. Borch, S. De Gennaro, R. Macii, and M. Zoli. Elastic Moduli of Polycrystalline Si and Ge. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 21(8) :1304, 1988. doi:10.1088/0022-3727/21/8/011. (Cited on page 50)
- [25] A. I. Boukai, Y. Bunimovich, J. Tahir-Kheli, J.-K. Yu, W. A. Goddard, and J. R. Heath. Silicon Nanowires as Efficient Thermoelectric Materials. *Nature*, 451(7175) :168–71, 2008. doi:10.1038/nature06458. (Cited on page 4)
- [26] S. Bramhavar, C. Prada, A. A. Maznev, A. G. Every, T. B. Norris, and T. W. Murray. Negative Refraction and Focusing of Elastic Lamb Waves at an Interface. *Phys. Rev. B*, 83(1) :014106, 2011. doi:10.1103/PhysRevB.83.014106. (Cited on page 76)
- [27] T. Brunet, A. Merlin, B. Mascaró, K. Zimny, J. Leng, O. Poncelet, C. Aristégui, and O. Mondain-Monval. Soft 3D acoustic metamaterial with negative index. *Nat. Mater.*, 14(4) :384–388, 2015. doi:10.1038/nmat4164. (Cited on page 76)
- [28] J. Bryner, J. Vollmann, L. Aebi, and J. Dual. Wave Propagation in Pyramidal Tip-Like Structures With Cubic Material Properties. *Wave Motion*, 47(1) :33–44, 2010. doi:10.1016/j.wavemoti.2009.07.003. (Cited on pages 60, 124, and 125)
- [29] J. Burgin, P. Langot, N. Del Fatti, F. Vallée, W. Huang, and M. A. El-Sayed. Time-Resolved Investigation of the Acoustic Vibration of a Single Gold Nanoprism Pair. *J. Phys. Chem. C*, 112(30) :11231–11235, 2008. doi:10.1021/jp802365s. (Cited on pages 26 and 48)
- [30] J. Burgin, P. Langot, N. Del Fatti, F. Vallée, W. Huang, and M. A. El-Sayed. Time-Resolved Investigation of the Acoustic Vibration of a Single Gold Nanoprism Pair. *J. Phys. Chem. C*, 112(30) :11231–11235, 2008. doi:10.1021/jp802365s. (Cited on page 26)
- [31] L. Burr. *Ion-track Technology Based Synthesis and Characterization of Gold and Gold Alloys Nanowires and Nanocones*. Ph.D. thesis, Technische Universität Darmstadt, 2016. (Cited on pages 38, 39, and 40)
- [32] P. Calmon, A. Lhémercy, I. Lecœur-Taibi, R. Raillon, and L. Paradis. Models for the Computation of Ultrasonic Fields and their Interaction with Defects in Realistic NDT Configurations. *Nuclear Engineering and Design*, 180(3) :271–283, 1998. doi:10.1016/S0029-5493(97)00299-9. (Cited on page 2)

- [33] M. F. Cardinal, D. Mongin, A. Crut, P. Maioli, B. Rodríguez-González, J. Pérez-Juste, L. M. Liz-Marzàn, N. Del Fatti, and F. Vallée. Acoustic Vibrations in Bimetallic Au@Pd Core-Shell Nanorods. *J. Phys. Chem. Lett.*, 3(5) :613–619, 2012. doi:10.1021/jz3000992. (Cited on pages 26, 48, and 48)
- [34] G. Carlotti, L. Doucet, and M. Dupeux. Comparative Study of the Elastic Properties of Silicate Glass Films Grown by Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition. *J. Vac. Sci. Technol., B*, 14(6) :3460–3464, 1996. doi:10.1116/1.588780. (Cited on page 145)
- [35] V. Casalegno, P. Vavassori, M. Valle, M. Ferraris, M. Salvo, and G. Pintsuk. Measurement of Thermal Properties of a Ceramic/Metal Joint by Laser Flash Method. *J. Nucl. Mater.*, 407(2) :83–87, 2010. doi:10.1016/j.jnucmat.2010.09.032. (Cited on page 26)
- [36] A. L. B. Cauchy. Recherches sur l'Équilibre et le Mouvement Intérieur des Corps Solides ou Fluides, Élastiques ou non Élastiques. In *Oeuvres Complètes d'Augustin Cauchy. Série 2, tome 2*, pages 300–304. Sous La Direction Scientifique De L'Académie Des Sciences, 1882-1974. (Cited on page 1)
- [37] A. L. B. Cauchy. Sur les Diverses Méthodes à l'Aide Desquelles on Peut Établir les Équations qui Représentent les Lois d'Équilibre ou le Mouvement Intérieur des Corps Solides ou Fluides. In *Oeuvres Complètes d'Augustin Cauchy. Série 2, tome 2*, pages p.134–142. Sous La Direction Scientifique De L'Académie Des Sciences, 1882-1974. (Cited on page 1)
- [38] S. N. Cha, J. S. Seo, S. M. Kim, H. J. Kim, Y. J. Park, S. W. Kim, and J. M. Kim. Sound-Driven Piezoelectric Nanowire-Based Nanogenerators. *Adv. Mater.*, 22(42) :4726–4730, 2010. doi:10.1002/adma.201001169. (Cited on page 60)
- [39] J. Chan, T. P. M. Alegre, A. H. Safavi-Naeini, J. T. Hill, A. Krause, S. Gröblacher, M. Aspelmeyer, and O. Painter. Laser Cooling of a Nanomechanical Oscillator into its Quantum Ground State. *Nature*, 478(7367) :89–92, 2011. doi:10.1038/nature10461. (Cited on page 3)
- [40] C. W. Chang, D. Okawa, A. Majumdar, and A. Zettl. Solid-State Thermal Rectifier. *Science*, 314(5802) :1121–1124, 2006. doi:10.1126/science.1132898. (Cited on page 2)
- [41] W.-S. Chang, F. Wen, D. Chakraborty, M.-N. Su, Y. Zhang, B. Shuang, P. Nordlander, J. E. Sader, N. J. Halas, and S. Link. Tuning the Acoustic Frequency of a Gold Nanodisk through its Adhesion Layer. *Nat. Commun.*, 6 :7022, 2015. doi:10.1038/ncomms8022. (Cited on pages 56 and 106)
- [42] J. Chaste, A. Eichler, J. Moser, G. Ceballos, R. Rurali, and A. Bachtold. A Nanomechanical Mass Sensor with Yoctogram Resolution. *Nature Nanotech.*, 7(5) :301–304, 2012. doi:10.1038/nnano.2012.42. (Cited on page 2)

- [43] W. Chen, Y. Lu, H. J. Maris, and G. Xiao. Picosecond Ultrasonic Study of Localized Phonon Surface Modes in Al/Ag Superlattices. *Phys. Rev. B*, 50(19) :14506–14515, 1994. doi:10.1103/PhysRevB.50.14506. (Cited on page 84)
- [44] S. W. Cho and I. Chasiotis. Elastic Properties and Representative Volume Element of Polycrystalline Silicon for MEMS. *Exp. Mech.*, 47(1) :37–49, 2007. doi:10.1007/s11340-006-0405-7. (Cited on page 50)
- [45] D. Choi. Méthode des Éléments-Finis par l’Exemple. <http://www.math.unicaen.fr/~choi/pdf/cours-mef.pdf>. Accessed : 2016-08-12. (Cited on page 141)
- [46] C. Chree. The Equations of an Isotropic Elastic Solid in Polar and Cylindrical Coordinates, their Solutions and Applications. *Trans. Cambridge Phil. Soc.*, 14 :250, 1889. (Cited on page 67)
- [47] N. Combe and L. Saviot. Acoustic Modes in Metallic Nanoparticles : Atomistic Versus Elasticity Modeling. *Phys. Rev. B*, 80(3) :1–7, 2009. doi:10.1103/PhysRevB.80.035411. (Cited on pages 7 and 7)
- [48] Y. Couder, A. Boudaoud, S. Protière, and E. Fort. Walking Droplets, a Form of Wave-Particle Duality at Macroscopic Scale ? *Europhys. News.*, 41(1) :14–18, 2010. doi:10.1051/epn/2010101. (Cited on page 2)
- [49] A. Crut, V. Juvé, D. Mongin, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée. Vibrations of Spherical Core-Shell Nanoparticles. *Phys. Rev. B*, 83(20) :205430, 2011. doi:10.1103/PhysRevB.83.205430. (Cited on pages 11 and 83)
- [50] A. Crut, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée. Anisotropy Effects on the Time-Resolved Spectroscopy of the Acoustic Vibrations of Nano-Objects. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 11(28) :5882–5888, 2009. doi:10.1039/B902107H. (Cited on page 50)
- [51] A. Crut, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée. Acoustic Vibrations of Metal Nano-Objects : Time-Domain Investigations. *Phys. Rep.*, pages 1–43, 2014. doi:10.1016/j.physrep.2014.09.004. (Cited on pages 49, 50, 63, 63, and 98)
- [52] A. Crut, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée. Time-Domain Investigation of the Acoustic Vibrations of Metal Nanoparticles : Size and Encapsulation Effects. *Ultrasonics*, 56 :98–108, 2014. doi:10.1016/j.ultras.2014.02.013. (Cited on page 24)
- [53] J. L. R. d’Alembert. *Traité de l’Équilibre et du Mouvement des Fluides : pour Servir de Suite au Traité de Dynamique*. Culture et civilisation (Bruxelles), 1744. (Cited on page 1)
- [54] S. Danworaphong, M. Tomoda, Y. Matsumoto, O. Matsuda, T. Ohashi, H. Watanabe, M. Nagayama, K. Gohara, P. H. Otsuka, and O. B. Wright. Three-Dimensional Imaging of Biological

- Cells with Picosecond Ultrasonics. *Appl. Phys. Lett.*, 106(16), 2015. doi:10.1063/1.4918275. (Cited on page 4)
- [55] A. B. de Saint-Venant. *De la Torsion des Prismes : avec des Considérations sur leur Flexion ainsi que sur l'Équilibre des Solides Élastiques en Général et des Formules Pratiques pour le Calcul de leur Résistance À Divers Efforts s'Exerçant Simultanément*. Impr. impériale (Paris), 1855. (Cited on page 1)
- [56] F. Decremps, L. Belliard, B. Couzinet, S. Vincent, P. Munsch, G. Le Marchand, and B. Perrin. Liquid Mercury Sound Velocity Measurements under High Pressure and High Temperature by Picosecond Acoustics in a Diamond Anvils Cell. *Rev. Sci. Instrum.*, 80(7) :073902, 2009. doi:10.1063/1.3160104. (Cited on page 4)
- [57] F. Decremps, L. Belliard, M. Gauthier, and B. Perrin. Equation of State, Stability, Anisotropy and Nonlinear Elasticity of Diamond-Cubic (ZB) Silicon by Phonon Imaging at High Pressure. *Phys. Rev. B*, 82(10) :104119, 2010. doi:10.1103/PhysRevB.82.104119. (Cited on pages 4 and 107)
- [58] F. Decremps, L. Belliard, B. Perrin, and M. Gauthier. Sound Velocity and Absorption Measurements under High Pressure Using Picosecond Ultrasonics in a Diamond Anvil Cell : Application to the Stability Study of AlPdMn. *Phys. Rev. Lett.*, 100(3) :035502, 2008. doi:10.1103/PhysRevLett.100.035502. (Cited on page 4)
- [59] F. Decremps, M. Gauthier, S. Ayrinhac, L. Bove, L. Belliard, B. Perrin, M. Morand, G. Le Marchand, F. Bergame, and J. Philippe. Picosecond Acoustics Method for Measuring the Thermodynamical Properties of Solids and Liquids at High Pressure and High Temperature. *Ultrasonics*, 56 :129–40, 2015. doi:10.1016/j.ultras.2014.04.011. (Cited on page 4)
- [60] T. Dehoux, M. A. 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. doi:10.1038/srep08650. (Cited on pages 4 and 98)
- [61] N. Del Fatti, C. Voisin, F. Chevy, F. Vallée, C. Flytzanis, N. D. Fatti, , and F. Vallée. Coherent Acoustic Mode Oscillation and Damping in Silver Nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 110(23) :11484–11487, 1999. doi:10.1063/1.479089. (Cited on pages 25 and 26)
- [62] N. Del Fatti, C. Voisin, D. Christofilos, F. Vallée, and C. Flytzanis. Acoustic Vibration of Metal Films and Nanoparticles. *J. Phys. Chem. A*, 104(18) :4321—4326, 2000. doi:10.1021/jp994051y. (Cited on page 26)
- [63] D. Desbrow. On Evaluating  $\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-ax(x-2b)} dx$  by Contour Integration Round a Parallelogram. *Am. Math. Mon.*, pages 726–731, 1998. doi:10.2307/2588989. (Cited on page 63)

- [64] A. Devos and R. Côte. Strong Oscillations Detected by Picosecond Ultrasonics in Silicon : Evidence for an Electronic-Structure Effect. *Phys. Rev. B*, 70(12) :1–6, 2004. doi:10.1103/PhysRevB.70.125208. (Cited on page 118)
- [65] L. Ding, C. Baker, P. Senellart, A. Lemaître, S. Ducci, G. Leo, and I. Favero. Wavelength-Sized GaAs Optomechanical Resonators with Gigahertz Frequency. *Appl. Phys. Lett.*, 98(11) :113108, 2011. doi:10.1063/1.3563711. (Cited on page 2)
- [66] Y. Ding, M. Chen, and J. Erlebacher. Metallic Mesoporous Nanocomposites for Electrocatalysis. *J. Am. Chem. Soc.*, 126(22) :6876–6877, 2004. doi:10.1021/ja0320119. (Cited on page 37)
- [67] G. Dodane, S. Euphrasie, D. Teyssieux, S. Salman, P. Vairac, H. Baida, J. M. Rampnoux, S. Dilhaire, F. Bertin, A. Chabli, and P. Rigail. Femtosecond Heterodyne Pump Probe Platform. *European Frequency and Time Forum*, pages 79–82, 2015. doi:10.1109/EFTF.2014.7331431. (Cited on pages 98 and 124)
- [68] A. R. Duggal, J. A. Rogers, K. A. Nelson, and M. Rothschild. Real-Time Characterization of Acoustic Modes of Polyimide Thin-Film Coatings Using Impulsive Stimulated Thermal Scattering. *Appl. Phys. Lett.*, 60(6) :692–694, 1992. doi:10.1063/1.106539. (Cited on page 84)
- [69] 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(13) :134205, 2003. doi:10.1103/PhysRevB.68.134205. (Cited on page 101)
- [70] P. Emery and A. Devos. Menapic. Test of Thin Film Adhesion. <http://menapic.com/>. Accessed : 2017-02-16. (Cited on page 4)
- [71] J. Erlebacher. Kinetic Monte Carlo Simulation of Dealloying in Ag-Au. [http://karlsieradzki.faculty.asu.edu/images/website\\_dissolution.flv](http://karlsieradzki.faculty.asu.edu/images/website_dissolution.flv). Accessed : 2017-02-27. (Cited on page 37)
- [72] J. Erlebacher, M. J. Aziz, A. Karma, N. Dimitrov, and K. Sieradzki. Evolution of Nanoporosity in Dealloying. *Nature*, 410(6827) :450–453, 2001. doi:10.1038/35068529. (Cited on pages 37 and 37)
- [73] A. Fainstein, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, and B. Perrin. Strong Optical-Mechanical Coupling in a Vertical GaAs/AlAs Microcavity for Subterahertz Phonons and Near-Infrared Light. *Phys. Rev. Lett.*, 110(3) :1–5, 2013. doi:10.1103/PhysRevLett.110.037403. (Cited on page 98)
- [74] T. Faust, P. Krenn, S. Manus, J. P. Kotthaus, and E. M. Weig. Microwave Cavity-Enhanced Transduction for Plug and Play Nanomechanics at Room Temperature. *Nat. Commun.*, 3 :728, 2012. doi:10.1038/ncomms1723. (Cited on page 24)

- [75] T. Faust, J. Rieger, M. J. Seitner, P. Krenn, J. P. Kotthaus, and E. M. Weig. Nonadiabatic Dynamics of Two Strongly Coupled Nanomechanical Resonator Modes. *Phys. Rev. Lett.*, 109(3) :1–4, 2012. doi:10.1103/PhysRevLett.109.037205. (Cited on page 24)
- [76] X. L. Feng, R. He, P. Yang, and M. L. Roukes. Very High Frequency Silicon Nanowire Electromechanical Resonators. *Nano Lett.*, 7(7) :1953–1959, 2007. doi:10.1021/nl0706695. (Cited on pages 4 and 33)
- [77] A. Gambetta, C. Manzoni, E. Menna, M. Meneghetti, G. Cerullo, G. Lanzani, S. Tretiak, A. Piryatinski, A. Saxena, R. L. Martin, and A. R. Bishop. Real-Time Observation of Nonlinear Coherent Phonon Dynamics in Single-Walled Carbon Nanotubes. *Nat. Phys.*, 2(8) :515–520, 2006. doi:10.1038/nphys345. (Cited on page 26)
- [78] B. Gao, G. V. Hartland, and L. Huang. Transient Absorption Spectroscopy of Excitons in an Individual Suspended Metallic Carbon Nanotube. *J. Phys. Chem. Lett.*, 4(18) :3050–3055, 2013. doi:10.1021/jz401497n. (Cited on page 33)
- [79] L. J. Gibson and M. F. Ashby. *Cellular Solids : Structure and Properties*. Cambridge university press, 1999. (Cited on pages 37, 46, 46, and 47)
- [80] A. Gillespie and F. Raab. Thermally Excited Vibrations of the Mirrors of Laser Interferometer Gravitational-Wave Detectors. *Phys. Rev. D*, 52(2), 1995. doi:10.1103/PhysRevD.52.577. (Cited on page 24)
- [81] I. A. Goldthorpe, A. F. Marshall, and P. C. McIntyre. Synthesis and Strain Relaxation of Ge-core/Si-shell Nanowire Arrays. *Nano Lett.*, 8(11) :4081–4086, 2008. doi:10.1021/nl802408y. (Cited on page 51)
- [82] G. Green. On the Motion of Waves in a variable Canal of small Depth and Width. *Transactions of the Cambridge Philosophical Society*, 6 :457, 1838. (Cited on page 1)
- [83] M. A. Green and M. J. Keevers. Optical Properties of Intrinsic Silicon at 300 K. *Progress in Photovoltaics : Research and Applications*, 3(3) :189–192, 1995. doi:10.1002/pip.4670030303. (Cited on pages 109, 118, and 120)
- [84] M. Grossmann, O. Ristow, M. Hettich, C. He, R. Waitz, E. Scheer, V. Gusev, T. Dekorsy, and M. Schubert. Time-Resolved Detection of Propagating Lamb Waves in Thin Silicon Membranes with Frequencies up to 197 GHz. *Appl. Phys. Lett.*, 106(17) :171904, 2015. doi:10.1063/1.4919132. (Cited on pages 84 and 85)
- [85] Y. Guillet, B. Audoin, M. Ferrié, and S. Ravaine. All-optical Ultrafast Spectroscopy of a Single Nanoparticle-Substrate Contact. *Phys. Rev. B*, 86(3) :035456, 2012. doi:10.1103/PhysRevB.86.035456. (Cited on pages 30, 80, 114, and 120)

- [86] C. Guillon, P. Langot, N. Del Fatti, F. Vallée, A. S. Kirakosyan, T. V. Shahbazyan, T. Cardinal, and M. Treguer. Coherent Acoustic Vibration of Metal Nanoshells. *Nano Lett.*, 7(1) :138–142, 2007. doi:10.1021/nl062380d. (Cited on page 48)
- [87] M. Hakamada and M. Mabuchi. Mechanical Strength of Nanoporous Gold Fabricated by Dealloying. *Scr. Mater.*, 56(11) :1003–1006, 2007. doi:10.1016/j.scriptamat.2007.01.046. (Cited on pages 37 and 37)
- [88] J. J. Hall. Electronic Effects in the Elastic Constants of n-Type Silicon. *Phys. Rev.*, 161(1961) :756–761, 1967. doi:10.1103/PhysRev.161.756. (Cited on pages 107 and 145)
- [89] H.-Y. Hao and H. J. Maris. Dispersion of the Long-Wavelength Phonons in Ge, Si, GaAs, Quartz, and Sapphire. *Phys. Rev. B*, 63(22) :1–10, 2001. doi:10.1103/PhysRevB.63.224301. (Cited on page 101)
- [90] H.-Y. Hao and H. J. Maris. Experiments with Acoustic Solitons in Crystalline Solids. *Phys. Rev. B*, 64(6) :064302, 2001. doi:10.1103/PhysRevB.64.064302. (Cited on page 4)
- [91] Z. Hao and F. Ayazi. Support Loss in the Radial Bulk-Mode Vibrations of Center-Supported Micromechanical Disk Resonators. *Sensor Actuat. A-Phys.*, 134(2) :582–593, 2007. doi:10.1016/j.sna.2006.05.020. (Cited on page 33)
- [92] A. Hernández-Mínguez, M. Möller, S. Breuer, C. Pfüller, C. Somaschini, S. Lazić, O. Brandt, A. García-Cristóbal, M. M. de Lima Jr, A. Cantarero, L. Geelhaar, H. Riechert, and P. V. Santos. Acoustically Driven Photon Antibunching in Nanowires. *Nano Lett.*, 12(1) :252–258, 2011. doi:10.1021/nl203461m. (Cited on page 48)
- [93] A. I. Hochbaum, R. Chen, R. D. Delgado, W. Liang, E. C. Garnett, M. Najarian, A. Majumdar, and P. Yang. Enhanced Thermoelectric Performance of Rough Silicon Nanowires. *Nature*, 451(7175) :163–167, 2008. doi:10.1038/nature06381. (Cited on page 48)
- [94] J. H. Hodak, A. Henglein, and G. V. Hartland. Coherent Excitation of Acoustic Breathing Modes in Bimetallic Core-Shell Nanoparticles. *J. Phys. Chem. B*, 104(21) :5053–5055, 2000. doi:10.1021/jp000578v. (Cited on pages 26, 26, and 48)
- [95] R. Hooke. *Lectiones Cutlerianæ, or, A Collection of Lectures, Physical, Mechanical, Geographical, & Astronomical*. London : Printed for John Martyn, printer to the Royal Society, at the Bell in S. Pauls Church-Yard, 1678. (Cited on page 10)
- [96] P. E. Hopkins, P. M. Norris, L. M. Phinney, S. A. Policastro, and R. G. Kelly. Thermal Conductivity in Nanoporous Gold Films during Electron-Phonon Nonequilibrium. *J. Nanomater.*, 2008 :22, 2008. doi:10.1155/2008/418050. (Cited on pages 42 and 42)

- [97] M. Hu, K. P. Giapis, J. V. Goicochea, X. Zhang, and D. Poulikakos. Significant Reduction of Thermal Conductivity in Si/Ge Core-Shell Nanowires. *Nano Lett.*, 11(2) :618–623, 2011. doi:10.1021/nl103718a. (Cited on page 48)
- [98] M. Hu, P. Hillyard, G. V. Hartland, T. Kosel, J. Perez-Juste, and P. Mulvaney. Determination of the Elastic Constants of Gold Nanorods Produced by Seed Mediated Growth. *Nano Lett.*, 4(12) :2493–2497, 2004. doi:10.1021/nl048483i. (Cited on page 26)
- [99] M. Hu, X. Wang, G. V. Hartland, P. Mulvaney, J. P. Juste, and J. E. Sader. Vibrational Response of Nanorods to Ultrafast Laser Induced Heating : Theoretical and Experimental Analysis. *J. Am. Chem. Soc.*, 125(48) :14925–33, 2003. doi:10.1021/ja037443y. (Cited on page 83)
- [100] W. Huang, W. Qian, and M. A. El-Sayed. Coherent Vibrational Oscillation in Gold Prismatic Monolayer Periodic Nanoparticle Arrays. *Nano Lett.*, 4(9) :1741–1747, 2004. doi:10.1021/nl048875p. (Cited on page 26)
- [101] A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M. F. Pascual-Winter, E. Peronne, and A. Lemaître. Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities. *Phys. Rev. Lett.*, 97(11) :115502, 2006. doi:10.1103/PhysRevLett.97.115502. (Cited on page 4)
- [102] A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, and A. Lemaître. Terahertz Coherent Acoustic Experiments with Semiconductor Superlattices. *Appl. Phys. Lett.*, 99(19) :191908, 2011. doi:10.1063/1.3658458. (Cited on page 98)
- [103] A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein, and A. Lemaître. Subterahertz monochromatic acoustic wave propagation using semiconductor superlattices as transducers. *Phys. Rev. B*, 78(23) :233302, 2008. doi:10.1103/PhysRevB.78.233302. (Cited on page 4)
- [104] A. Huynh, B. Perrin, and A. Lemaître. Semiconductor Superlattices : A tool for Terahertz Acoustics. *Ultrasonics*, 56 :66–79, 2015. doi:10.1016/j.ultras.2014.07.009. (Cited on page 85)
- [105] M. Imboden and P. Mohanty. Dissipation in Nanoelectromechanical Systems. *Phys. Rep.*, 534(3) :89–146, 2014. doi:10.1016/j.physrep.2013.09.003. (Cited on pages 75 and 75)
- [106] P. M. Jais, D. B. Murray, R. Merlin, and A. V. Bragas. Metal Nanoparticle Ensembles : Tunable Laser Pulses Distinguish Monomer from Dimer Vibrations. *Nano Lett.*, 11(9) :3685–3689, 2011. doi:10.1021/nl201648e. (Cited on page 26)
- [107] C. Jean, L. Belliard, L. Becerra, and B. Perrin. Backward Propagating Acoustic Waves in Single Gold Nanobeams. *Appl. Phys. Lett.*, 107(19) :193103, 2015. doi:10.1063/1.4935351. (Cited on pages 65, 75, and 99)

- [108] C. Jean, L. Belliard, T. W. Cornelius, O. Thomas, Y. Pennec, M. Cassinelli, M. E. Toimil-Molares, and B. Perrin. Spatiotemporal Imaging of the Acoustic Field Emitted by a Single Copper Nanowire. *Nano Lett.*, 16(10) :6592–6598, 2016. doi:10.1021/acs.nanolett.6b03260. (Cited on pages 98 and 109)
- [109] C. Jean, L. Belliard, T. W. Cornelius, O. Thomas, M. E. Toimil-molares, M. Cassinelli, 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. doi:10.1021/jz502170j. (Cited on pages 65, 75, 99, 100, and 111)
- [110] J. A. Jensen, S. I. Nikolov, K. L. Gammelmark, and M. H. Pedersen. Synthetic Aperture Ultrasound Imaging. *Ultrasonics*, 44 :e5–e15, 2006. doi:10.1016/j.ultras.2006.07.017. (Cited on page 121)
- [111] V. Juvé, A. Crut, P. Maioli, M. Pellarin, M. Broyer, N. Del Fatti, and F. Vallée. Probing Elasticity at the Nanoscale : Terahertz Acoustic Vibration of Small Metal Nanoparticles. *Nano Lett.*, 10(5) :1853–1858, 2010. doi:10.1021/nl100604r. (Cited on pages 4, 24, 24, and 48)
- [112] A. Katunin, K. Dragan, and M. Dziendzikowski. Damage Identification in Aircraft Composite Structures : a Case Study Using Various Non-Destructive Testing Techniques. *Composite Structures*, 127 :1–9, 2015. doi:10.1016/j.compstruct.2015.02.080. (Cited on page 2)
- [113] T. A. Kelf, Y. Tanaka, O. Matsuda, E. M. Larsson, D. S. Sutherland, and O. B. Wright. Ultrafast Vibrations of Gold Nanorings. *Nano Lett.*, 11(9) :3893–3898, 2011. doi:10.1021/nl202045z. (Cited on page 26)
- [114] J. E. Kennedy. High-Intensity Focused Ultrasound in the Treatment of Solid Tumours. *Nat. Rev. Cancer*, 5(4) :321–327, 2005. (Cited on page 2)
- [115] H. Khelifa, D. Mounier, C. Poilâne, and P. Picart. Détermination Expérimentale des Courbes de Dispersion des Modes Guidés se Propageant le Long d’une Fibre Cylindrique Micrométrique. *14ème Congrès Français d’Acoustique*, pages 1225–1231, 2014. (Cited on page 65)
- [116] J.-W. Kim, O. Kovalenko, Y. Liu, and J.-Y. Bigot. Exploring the Angstrom Excursion of Au Nanoparticles Excited away from a Metal Surface by an Impulsive Acoustic Perturbation. *ACS Nano*, page acsnano.6b05196, 2016. doi:10.1021/acsnano.6b05196. (Cited on page 120)
- [117] C. Kloeffer, M. Trif, and D. Loss. Acoustic Phonons and Strain in Core/Shell Nanowires. *Phys. Rev. B*, 90(11) :115419, 2014. doi:10.1103/PhysRevB.90.115419. (Cited on page 48)
- [118] A. Koka and H. A. Sodano. High-Sensitivity Accelerometer Composed of Ultra-Long Vertically Aligned Barium Titanate Nanowire Arrays. *Nature communications*, 4 :2682, 2013. doi:10.1038/ncomms3682. (Cited on page 4)

- [119] D. Kramer, R. N. Viswanath, and J. Weissmüller. Surface-Stress Induced Macroscopic Bending of Nanoporous Gold Cantilevers. *Nano Letters*, 4(5) :793–796, 2004. (Cited on page 37)
- [120] T. D. Krauss and F. W. Wise. Coherent Acoustic Phonons in a Semiconductor Quantum Dot. *Phys. Rev. Lett.*, 79(25) :5102–5105, 1997. doi:10.1103/PhysRevLett.79.5102. (Cited on pages 26 and 48)
- [121] S. O. Kucheyev, J. R. Hayes, J. Biener, T. Huser, C. E. Talley, and A. V. Hamza. Surface-Enhanced Raman Scattering on Nanoporous Au. *Appl. Phys. Lett.*, 89(5), 2006. doi:10.1063/1.2260828. (Cited on page 37)
- [122] H. Lamb. On Group - Velocity. *Proc. London Math. Soc.*, 2(473), 1904. doi:10.1112/plms/s2-1.1.473. (Cited on page 76)
- [123] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Theory of Elasticity, Third Edition : Volume 7 (Course of Theoretical Physics)*. Butterworth-Heinemann, 1986. ISBN 075062633X. (Cited on pages 7 and 24)
- [124] N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Lemàtre, and B. Jusserand. Nanowave Devices for Terahertz Acoustic Phonons. *Appl. Phys. Lett.*, 88(8), 2006. doi:10.1063/1.2178415. (Cited on page 4)
- [125] N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Perrin, B. Jusserand, O. Mauguin, L. Largeau, and A. Lemaître. Bloch Oscillations of THz Acoustic Phonons in Coupled Nanocavity Structures. *Phys. Rev. Lett.*, 104(19) :1–4, 2010. doi:10.1103/PhysRevLett.104.197402. (Cited on page 4)
- [126] C. Larmat, J. P. Montagner, M. Fink, Y. Capdeville, A. Tourin, and E. Clévéde. Time-Reversal Imaging of Seismic Sources and Application to the Great Sumatra Earthquake. *Geophys. Res. Lett.*, 33(19) :2–5, 2006. doi:10.1029/2006GL026336. (Cited on page 2)
- [127] L. J. Lauhon, M. S. Gudiksen, D. Wang, and C. M. Lieber. Epitaxial Core-Shell and Core-Multishell Nanowire Heterostructures. *Nature*, 420(2001) :57–61, 2002. (Cited on pages 48, 57, and 58)
- [128] H. M. Ledbetter and E. R. Naimon. Elastic Properties of Metals and Alloys. II. Copper, 1974. doi:10.1063/1.3253150. (Cited on page 30)
- [129] H. M. Ledbetter and E. R. Naimon. Elastic Properties of Metals and Alloys. II. Copper. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 3(4) :897–935, 1974. doi:10.1063/1.3253150. (Cited on pages 68, 70, 106, and 145)
- [130] D. Lee, X. Wei, X. Chen, M. Zhao, S. C. Jun, J. Hone, E. G. Herbert, W. C. Oliver, and J. W. Kysar. Microfabrication and Mechanical Properties of Nanoporous Gold at the Nanoscale.

- Scr. Mater.*, 56(5) :437–440, 2007. doi:10.1016/j.scriptamat.2006.08.069. (Cited on pages 37, 38, and 47)
- [131] Q. Li, K. Hoogeboom-Pot, D. Nardi, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, M. E. Siemens, E. H. Anderson, O. Hellwig, E. Dobisz, B. Gurney, R. Yang, and K. A. Nelson. Generation and Control of Ultrashort-Wavelength Two-Dimensional Surface Acoustic Waves at Nanoscale Interfaces. *Phys. Rev. B*, 85(19) :1–8, 2012. doi:10.1103/PhysRevB.85.195431. (Cited on page 84)
- [132] H. Liang, M. Upmanyu, and H. Huang. Size-Dependent Elasticity of Nanowires : Nonlinear Effects. *Phys. Rev. B*, 71 :241403, 2005. doi:10.1103/PhysRevB.71.241403. (Cited on page 4)
- [133] K.-H. Lin, C.-M. Lai, C.-C. Pan, J.-I. Chyi, J.-W. Shi, S.-Z. Sun, C.-F. Chang, and C.-K. Sun. Spatial Manipulation of Nanoacoustic Waves with Nanoscale Spot Sizes. *Nature Nanotech.*, 2(11) :704–8, 2007. doi:10.1038/nnano.2007.319. (Cited on pages 98 and 124)
- [134] K.-H. Lin, C.-T. Yu, S.-Z. Sun, H.-P. Chen, C.-C. Pan, J.-I. Chyi, S.-W. Huang, P.-C. Li, and C.-K. Sun. Two-Dimensional Nanoultrasonic Imaging by Using Acoustic Nanowaves. *Appl. Phys. Lett.*, 89(4) :043106, 2006. doi:10.1063/1.2234723. (Cited on page 65)
- [135] A. Lindenberg, I. Kang, S. Johnson, T. Missalla, P. Heimann, Z. Chang, J. Larsson, P. Bucksbaum, H. Kapteyn, H. Padmore, R. Lee, J. Wark, and R. Falcone. Time-Resolved X-Ray Diffraction from Coherent Phonons during a Laser-Induced Phase Transition. *Phys. Rev. Lett.*, 84(1) :111–114, 2000. doi:10.1103/PhysRevLett.84.111. (Cited on page 2)
- [136] J. R. Lindner. Microbubbles in Medical Imaging : Current Applications and Future Directions. *Nat. Rev. Drug Discov.*, 3(6) :527–32, 2004. doi:10.1038/nrd1417. (Cited on page 2)
- [137] Z. Liu and P. C. Searson. Single Nanoporous Gold Nanowire Sensors. *J. Phys. Chem. B*, 110(9) :4318–4322, 2006. doi:10.1021/jp056940t. (Cited on page 39)
- [138] D. Maier-Schneider, A. Koprululu, S. Ballhausen Holm, and E. Obermeier. Elastic Properties and Microstructure of LPCVD Polysilicon Films. *J. Micromech. Microeng.*, 6 :436–446, 1996. doi:10.1088/0960-1317/6/4/011. (Cited on page 50)
- [139] T. A. Major, A. Crut, B. Gao, S. S. Lo, N. Del Fatti, F. Vallée, and G. V. Hartland. Damping of the Acoustic Vibrations of a Suspended Gold Nanowire in Air and Water Environments. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15(12) :4169–76, 2013. doi:10.1039/C2CP43330C. (Cited on pages 11, 26, 27, 32, 33, 48, 69, 100, and 105)
- [140] T. A. Major, S. S. Lo, K. Yu, and G. V. Hartland. Time-Resolved Studies of the Acoustic Vibrational Modes of Metal and Semiconductor Nano-objects. *J. Phys. Chem. Lett.*, 5(5) :866–874, 2014. doi:10.1021/jz4027248. (Cited on page 4)

- [141] M. Maldovan. Sound and Heat Revolutions in Phononics. *Nature*, 503(7475) :209–17, 2013. doi:10.1038/nature12608. (Cited on pages 1 and 1)
- [142] P.-A. Mante, Y.-C. Wu, Y.-T. Lin, C.-Y. Ho, L.-W. Tu, and C.-K. Sun. Gigahertz Coherent Guided Acoustic Phonons in AlN/GaN Nanowire Superlattices. *Nano Lett.*, 13(3) :1139–1144, 2013. doi:10.1021/nl3044986. (Cited on pages 65, 66, 98, 99, and 124)
- [143] H. J. Maris and A. V. Nurmikko. Enhanced Ultra-High Resolution Acoustic Microscope, 2012. US Patent 8,302,480. (Cited on pages 98 and 124)
- [144] H. J. Maris and A. V. Nurmikko. Opto-Acoustic Methods and Apparatus for Performing High Resolution Acoustic Imaging and other Sample Probing and Modification Operations, 2013. US Patent 8,567,253. (Cited on pages 98, 99, and 124)
- [145] D. Martínez-Gutiérrez and V. R. Velasco. Acoustic Breathing Mode Frequencies in Cylinders, Cylindrical Shells and Composite Cylinders of General Anisotropic Crystals : Application to Nanowires. *Physica E*, 54 :86–92, 2013. doi:10.1016/j.physe.2013.05.025. (Cited on pages 48 and 49)
- [146] 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(8) :3301–6, 2011. doi:10.1021/nl201668t. (Cited on pages 26 and 98)
- [147] A. Mathur and J. Erlebacher. Size Dependence of Effective Young’s Modulus of Nanoporous Gold. *Appl. Phys. Lett.*, 90(6) :2005–2008, 2007. doi:10.1063/1.2436718. (Cited on page 38)
- [148] O. Matsuda, M. Cristina, R. Li, and O. B. Wright. Fundamentals of Picosecond Laser Ultrasonics. *Ultrasonics*, 56 :3–20, 2015. doi:10.1016/j.ultras.2014.06.005. (Cited on page 3)
- [149] O. Matsuda, M. C. Larciprete, R. L. Voti, and O. B. Wright. Fundamentals of Picosecond Laser Ultrasonics. *Ultrasonics*, 56 :3–20, 2015. doi:10.1016/j.ultras.2014.06.005. (Cited on pages 32 and 80)
- [150] A. A. Maznev and A. G. Every. Surface Acoustic Waves with Negative Group Velocity in a Thin Film Structure on Silicon. *Appl. Phys. Lett.*, 95(1) :011903, 2009. doi:10.1063/1.3168509. (Cited on page 76)
- [151] A. A. Maznev, K. A. Nelson, and J. A. Rogers. Optical Heterodyne Detection of Laser-Induced Gratings. *Optics Lett.*, 23(16) :1319–21, 1998. doi:10.1364/OL.23.001319. (Cited on page 84)
- [152] D. A. Mazurenko, X. Shan, J. C. P. Stiefelhagen, C. M. Graf, A. van Blaaderen, and J. I. Dijkhuis. Coherent Vibrations of Submicron Spherical Gold Shells in a Photonic Crystal. *Phys. Rev. B*, 75 :161102, 2007. doi:10.1103/PhysRevB.75.161102. (Cited on page 48)

- [153] A. H. Meitzler. Backward Wave Transmission of Stress Pulses in Elastic Cylinders and Plates. *J. Acoust. Soc. Am*, 38(5) :835–842, 1965. doi:10.1121/1.1909812. (Cited on page 76)
- [154] M. A. Meyers and K. K. Chawla. *Mechanical Behavior of Materials*, volume 2. Cambridge University Press Cambridge, 2009. doi:10.1017/CBO9780511810930. (Cited on pages 79 and 145)
- [155] S. Mezil, P. H. Otsuka, S. Kaneko, O. B. Wright, M. Tomoda, and O. Matsuda. Imaging Arbitrary Acoustic Whispering-Gallery Modes in the Gigahertz Range with Ultrashort Light Pulses. *Opt. Lett.*, 40(10) :2157, 2015. doi:10.1364/OL.40.002157. (Cited on page 62)
- [156] N. Mingo, L. Yang, D. Li, and A. Majumdar. Predicting the Thermal Conductivity of Si and Ge Nanowires. *Nano Lett.*, 3(12) :1713–1716, 2003. doi:10.1021/nl034721i. (Cited on page 4)
- [157] L. Mirsky. The Probability Integral. *Math. Gaz.*, 279(33), 1949. doi:10.2307/3611303. (Cited on page 63)
- [158] K. Mizoguchi, M. Hase, S. Nakashima, and M. Nakayama. Observation of Coherent Folded Acoustic Phonons Propagating in a GaAs/AlAs Superlattice by Two-Color Pump-Probe Spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 60(11) :8262–8266, 1999. doi:10.1103/PhysRevB.60.8262. (Cited on page 84)
- [159] D. Mongin, V. Juvé, P. Maioli, A. Crut, N. Del Fatti, F. Vallée, A. Sánchez-Iglesias, I. Pastoriza-Santos, and L. M. Liz-Marzán. Acoustic Vibrations of Metal-Dielectric Core-Shell Nanoparticles. *Nano Lett.*, 11(7) :3016–3021, 2011. doi:10.1021/nl201672k. (Cited on pages 26, 48, and 48)
- [160] D. Mounier, C. Poilâne, H. Khelifa, and P. Picart. Sub-Gigahertz Laser Resonant Ultrasound Spectroscopy for the Evaluation of Elastic Properties of Micrometric Fibers. *Ultrasonics*, 54(1) :259–267, 2014. doi:10.1016/j.ultras.2013.06.014. (Cited on pages 24 and 65)
- [161] D. B. Murray and L. Saviot. Damping by Bulk and Shear Viscosity for Confined Acoustic Phonons for Nanostructures in Aqueous Solution. *J. Phys. Chem. C*, 111 :7457–7461, 2007. doi:10.1021/jp071765x. (Cited on page 11)
- [162] O. L. Muskens, N. Del Fatti, and F. Vallée. Femtosecond Response of a Single Metal Nanoparticle. *Nano Lett.*, 6(3) :552–556, 2006. doi:10.1021/nl0524086. (Cited on page 26)
- [163] nanoScience Instruments. Aspire Conical AFM Tips. [http://aspiretips.com/store/pc/catalog/download/Conical-AFM-Tips\\_Aspire.pdf](http://aspiretips.com/store/pc/catalog/download/Conical-AFM-Tips_Aspire.pdf). Accessed : 2017-02-09. (Cited on pages 125 and 125)
- [164] V. Narayanamurti, H. L. Störmer, M. A. Chin, A. C. Gossard, and W. Wiegmann. Selective Transmission of High-Frequency Phonons by a Superlattice : The “Dielectric” Phonon Filter. *Phys. Rev. Lett.*, 43(27) :2012–2016, 1979. doi:10.1103/PhysRevLett.43.2012. (Cited on page 84)

- [165] C. L. M. H. Navier. *Mémoire sur les Lois de l'Équilibre et du Mouvement des Corps Solides Élastiques*. Académie Royale des Sciences de l'Institut de France. (Cited on page 1)
- [166] D. Newey, M. A. Wilkins, and H. M. Pollock. An Ultra-Low-Load Penetration Hardness Tester. *J. Phys. E*, 15(1) :119, 1982. doi:10.1088/0022-3735/15/1/023. (Cited on page 127)
- [167] R. C. Newman and K. Sieradzki. Metallic Corrosion. *Science*, 263(5154) :1708–1710, 1994. (Cited on page 37)
- [168] D. T. Nguyen, C. Baker, W. Hease, S. Sejil, P. Senellart, A. Lemaître, S. Ducci, G. Leo, and I. Favero. Ultrahigh Q-frequency Product for Optomechanical Disk Resonators with a Mechanical Shield. *Appl. Phys. Lett.*, 103(24) :241112, 2013. doi:10.1063/1.4846515. (Cited on pages 33 and 101)
- [169] J. P. Nikolovski and D. Fournier. Lamb Wave (X, Y) Detector. *Electron. Lett*, 32(12) :1147–1148, 1996. doi:10.1049/el :19960714. (Cited on page 125)
- [170] J. P. Nikolovski and D. Fournier. 250 DPI at 1000 Hz Acquisition Rate S0 Lamb Wave Digitizing Pen. *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Control*, 60(2) :380–394, 2013. doi:10.1109/TUFFC.2013.2574. (Cited on pages 60, 124, and 125)
- [171] N. Nishiguchi, Y. Ando, and M. N. Wybourne. Acoustic Phonon Modes of Rectangular Quantum Wires. *J. Phys. Condens. Matter*, 9(27) :5751–5764, 1999. doi:10.1088/0953-8984/9/27/007. (Cited on page 81)
- [172] A. D. O'Connell, M. Hofheinz, M. Ansmann, R. C. Bialczak, M. Lenander, E. Lucero, M. Neeley, D. Sank, H. Wang, M. Weides, J. Wenner, J. M. Martinis, and A. N. Cleland. Quantum Ground State and Single-Phonon Control of a Mechanical Resonator. *Nature*, 464(7289) :697–703, 2010. doi:10.1038/nature08967. (Cited on page 3)
- [173] C. G. Parazzoli, R. B. Greigor, J. A. Nielsen, M. A. Thompson, K. Li, A. M. Vetter, M. H. Tanielian, and D. C. Vier. Performance of a Negative Index of Refraction Lens. *Appl. Phys. Lett.*, 84(17) :3232–3234, 2004. doi:10.1063/1.1728304. (Cited on page 76)
- [174] S. Parida, D. Kramer, C. A. Volkert, H. RÄP sner, J. Erlebacher, and J. WeissmÄ¼ller. Volume Change During the Formation of Nanoporous Gold by Dealloying. *Phys. Rev. Lett.*, 97(3) :4–7, 2006. doi:10.1103/PhysRevLett.97.035504. (Cited on pages 37 and 39)
- [175] M. Pelton, J. E. Sader, J. Burgin, M. Liu, P. Guyot-Sionnest, and D. Gosztola. Damping of Acoustic Vibrations in Gold Nanoparticles. *Nat. Nanotechnol.*, 4(8) :492–495, 2009. doi:10.1038/nnano.2009.192. (Cited on pages 11 and 26)
- [176] F. Pérez-Cota, R. J. Smith, E. Moradi, L. Marques, K. F. Webb, and M. Clark. Thin-film Optoacoustic Transducers for Subcellular Brillouin Oscillation Imaging of Individual Biological

- Cells. *Appl. Opt.*, 54(28) :8388–8398, 2015. doi:10.1364/AO.54.008388. (Cited on pages 4 and 98)
- [177] F. Pérez-Cota, R. J. Smith, E. Moradi, L. Marques, K. F. Webb, and M. Clark. High Resolution 3D Imaging of Living Cells with Sub-Optical Wavelength Phonons. *Sci. Rep.*, 6 :39326, 2016. doi:10.1038/srep39326. (Cited on page 98)
- [178] E. Péronne, N. Chuecos, L. Thevenard, and B. Perrin. Acoustic Solitons : A Robust Tool to Investigate the Generation and Detection of Ultrafast Acoustic Waves. *Phys. Rev. B*, 95(6) :064306, 2017. doi:10.1103/PhysRevB.95.064306. (Cited on page 4)
- [179] E. Péronne and B. Perrin. Generation and Detection of Acoustic Solitons in Crystalline Slabs by Laser Ultrasonics. *Ultrasonics*, 44 :e1203–e1207, 2006. doi:10.1016/j.ultras.2006.05.072. (Cited on pages 4 and 98)
- [180] B. Perrin, B. Bonello, J. C. Jeannet, and E. Romatet. Interferometric Detection of Hypersound Waves in Modulated Structures. *Prog. Nat. Sci. Suppl.*, S444(6), 1996. (Cited on page 4)
- [181] B. Perrin, B. Bonello, J. C. Jeannet, and E. Romatet. Picosecond Ultrasonics Study of Metallic Multilayers. *Physica B*, 219-220(1-4) :681–683, 1996. doi:10.1016/0921-4526(95)00852-7. (Cited on page 84)
- [182] B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, and J.-C. Jeannet. Interferometric Detection in Picosecond Ultrasonics. *Physica B*, 263-264 :571–573, 1999. doi:10.1016/S0921-4526(98)01479-3. (Cited on pages 80 and 104)
- [183] H. Petrova, C.-H. Lin, M. Hu, J. Chen, A. R. Siekkinen, Y. Xia, J. E. Sader, and G. V. Hartland. Vibrational Response of Au-Ag Nanoboxes and Nanocages to Ultrafast Laser-Induced Heating. *Nano lett*, 7(4) :1059–63, 2007. doi:10.1021/nl0702766. (Cited on page 48)
- [184] F. D. Philippe, T. W. Murray, and C. Prada. Focusing on Plates : Controlling Guided Waves Using Negative Refraction. *Sci. Rep.*, 5, 2015. doi:10.1038/srep11112. (Cited on page 76)
- [185] L. Pochhammer. Über die Fortpflanzungsgeschwindigkeiten kleiner Schwingungen in einem Unbegrenzten Isotropen Kreiszyylinder. *J. Reine Angew. Math.*, 81 :324, 1876. (Cited on page 67)
- [186] S. Poisson. *Traité de mécanique, Tome 1*. chez Mme veuve Courcier, Paris, 1811. (Cited on page 1)
- [187] D. M. Profunser, E. Muramoto, O. Matsuda, O. B. Wright, and U. Lang. Dynamic Visualization of Surface Acoustic Waves on a Two-Dimensional Phononic Crystal. *Phys. Rev. B*, 80(1) :1–7, 2009. doi:10.1103/PhysRevB.80.014301. (Cited on page 62)

- [188] D. M. Profunser, J. Vollmann, and J. Dual. Ultrasonic Wave Propagation in Focussing Tips With Arbitrary Geometries. *Ultrasonics*, 40(1-8) :747–752, 2002. doi:10.1016/S0041-624X(02)00205-6. (Cited on pages 60, 124, and 125)
- [189] A. D. Rakić, A. B. Djurišić, J. M. Elazar, and M. L. Majewski. Optical Properties of Metallic Films for Vertical-Cavity Optoelectronic Devices. *Appl. Opt.*, 37 :5271–5283, 1998. doi:10.1364/AO.37.005271. (Cited on pages 91 and 109)
- [190] J. N. Reddy. *An Introduction to the Finite-Element Method, Third Edition*. McGraw-Hill Education, 2005. ISBN 0072466855. (Cited on page 141)
- [191] D. W. Rees. *Mechanics of Optimal Structural Design : Minimum Weight Structures*. John Wiley & Sons, 2009. doi:10.1002/9780470749784. (Cited on pages 145, 145, 145, 145, and 145)
- [192] A. Riaud, M. Baudoin, O. Bou Matar, L. Becerra, and J.-L. Thomas. Selective Manipulation of Microscopic Particles with Precursor Swirling Rayleigh waves. *Phys. Rev. Appl.*, 024007 :2–6, 2016. doi:10.1103/PhysRevApplied.7.024007. (Cited on page 2)
- [193] J. A. Rogers, A. A. Maznev, M. J. Banet, and K. A. Nelson. Optical Generation and Characterization of Acoustic Waves in Thin Film : Fundamentals and Applications. *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 30 :117–157, 2000. doi:10.1146/annurev.matsci.30.1.117. (Cited on pages 84 and 85)
- [194] J. A. Rogers, Y. Yang, and K. A. Nelson. Elastic-Modulus and Inplane Thermal-Diffusivity Measurements in Thin Polyimide Films Using Symmetry-Selective Real-Time Impulsive Stimulated Thermal Scattering. *Appl. Phys. A*, 58(5) :523–534, 1994. doi:10.1007/Bf00332448. (Cited on page 84)
- [195] J. Rösler, O. Năth, S. Jäger, F. Schmitz, and D. Mukherji. Fabrication of Nanoporous Ni-Based Superalloy Membranes. *Acta Mater.*, 53(5) :1397–1406, 2005. doi:10.1016/j.actamat.2004.11.038. (Cited on page 37)
- [196] 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(12), 2008. doi:10.1063/1.2988470. (Cited on page 4)
- [197] D. Royer and E. Dieulesaint. *Ondes Élastiques dans les Solides, Tome 1 : Propagation Libre et Guidée*. Elsevier Masson, 1997. ISBN 222585422X. (Cited on pages 7, 20, and 68)
- [198] P. V. Ruijgrok, P. Zijlstra, A. L. Tchebotareva, and M. Orrit. Damping of Acoustic Vibrations of Single Gold Nanoparticles Optically Trapped in Water. *Nano lett.*, 12(2) :1063–9, 2012. doi:10.1021/nl204311q. (Cited on page 26)

- [199] H. E. Saucedo, D. Mongin, P. Maioli, A. Crut, M. Pellarin, N. Del Fatti, F. Vallée, and I. L. Garzón. Vibrational Properties of Metal Nanoparticles : Atomistic Simulation and Comparison with Time-Resolved Investigation. *J. Phys. Chem. C*, 116(47) :25147–25156, 2012. doi:10.1021/jp309499t. (Cited on page 7)
- [200] R. Schittny, M. Kadic, S. Guenneau, and M. Wegener. Experiments on Transformation Thermodynamics : Molding the Flow of Heat. *Phys. Rev. Lett.*, 110(19) :1–5, 2013. doi:10.1103/PhysRevLett.110.195901. (Cited on page 2)
- [201] M. Schubert, M. Grossmann, O. Ristow, M. Hettich, A. Bruchhausen, E. C. S. Barretto, E. Scheer, V. Gusev, and T. Dekorsy. Spatial-Temporally Resolved High-Frequency Surface Acoustic Waves on Silicon Investigated by Femtosecond Spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 101(1) :1–5, 2012. doi:10.1063/1.4729891. (Cited on page 84)
- [202] H. Seidel, L. Csepregi, A. Heuberger, and H. Baumgartel. Anisotropic Etching of Crystalline Silicon in Alkaline Solutions. *J. Electrochem. Soc.*, 137(11) :3612–3626, 1990. doi:10.1149/1.2086277. (Cited on page 102)
- [203] M. G. Silk and K. F. Bainton. The Propagation in Metal Tubing of Ultrasonic Wave Modes Equivalent to Lamb Waves. *Ultrasonics*, 17(1) :11–19, 1979. doi:10.1016/0041-624X(79)90006-4. (Cited on page 68)
- [204] M. G. Silk and K. F. Bainton. The Propagation in Metal Tubing of Ultrasonic Wave Modes Equivalent to Lamb Waves. *Ultrasonics*, 17(1) :11–19, 1979. doi:10.1016/0041-624X(79)90006-4. (Cited on page 20)
- [205] P. Siry, L. Belliard, and B. Perrin. Picosecond Acoustics with Very High Lateral Resolution. *Acta Acust. United Ac.*, 89(6) :925–929, 2003. (Cited on pages 98 and 124)
- [206] Y.-S. Sohn, J. Park, G. Yoon, J. Song, S.-W. Jee, J.-H. Lee, S. Na, T. Kwon, and K. Eom. Mechanical Properties of Silicon Nanowires. *Nanoscale Res. Lett.*, 5(1) :211–216, 2009. doi:10.1007/s11671-009-9467-7. (Cited on page 50)
- [207] A. C. Sparavigna. Depletion Gilding : An Ancient Method for Surface Enrichment of Gold Alloys. 2016. (Cited on page 37)
- [208] H. Staleva and G. V. Hartland. Transient Absorption Studies of Single Silver Nanocubes. *J. Phys. Chem. C*, 112(20) :7535–7539, 2008. doi:10.1021/jp801550x. (Cited on page 26)
- [209] H. Staleva and G. V. Hartland. Vibrational Dynamics of Silver Nanocubes and Nanowires Studied by Single-Particle Transient Absorption Spectroscopy. *Adv. Funct. Mater.*, 18(23) :3809–3817, 2008. doi:10.1002/adfm.200800605. (Cited on pages 26, 31, and 114)

- [210] H. Staleva, S. E. Skrabalak, C. R. Carey, T. Kosel, Y. Xia, and G. V. Hartland. Coupling to Light, and Transport and Dissipation of Energy in Silver Nanowires. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 11(28) :5889–5896, 2009. doi:10.1039/B901105F. (Cited on page 26)
- [211] S. Stapfner, L. Ost, D. Hunger, J. Reichel, I. Favero, and E. M. Weig. Cavity-Enhanced Optical Detection of Carbon Nanotube Brownian Motion. *Appl. Phys. Lett.*, 102(15), 2013. doi:10.1063/1.4802746. (Cited on pages 2 and 24)
- [212] T. Stoll, P. Maioli, A. Crut, J. Burgin, P. Langot, M. Pellarin, A. Sánchez-Iglesias, B. Rodríguez-González, L. M. Liz-Marzán, N. Del Fatti, and F. Vallée. Ultrafast Acoustic Vibrations of Bimetallic Nanoparticles. *J. Phys. Chem. C*, 119(3) :1591–1599, 2015. doi:10.1021/jp511070h. (Cited on pages 24, 44, 48, 48, and 48)
- [213] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, a. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry. Optical Ablation by High-Power Short-Pulse Lasers. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(2) :459, 1996. doi:10.1364/JOSAB.13.000459. (Cited on page 91)
- [214] T. L. Szabo. *Diagnostic Ultrasound Imaging : Inside Out. Second Edition*. Academic Press, 2013. ISBN 9780123964878. (Cited on page 2)
- [215] 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. of Sci. Instrum.*, 77(4), 2006. doi:10.1063/1.2194518. (Cited on page 4)
- [216] T. Tanimoto. The Oceanic Excitation Hypothesis for the Continuous Oscillations of the Earth. *Geophysical Journal International*, 160(1) :276–288, 2005. doi:10.1111/j.1365-246X.2004.02484.x. (Cited on page 1)
- [217] G. Tas and H. J. Maris. Electron Diffusion in Metals Studied by Picosecond Ultrasonics. *Phys. Rev. B*, 49(21) :15046, 1994. doi:10.1103/PhysRevB.49.15046. (Cited on page 26)
- [218] R. Taubert, F. Hudert, A. Bartels, F. Merkt, A. Habenicht, P. Leiderer, and T. Dekorsy. Coherent Acoustic Oscillations of Nanoscale Au Triangles and Pyramids : Influence of Size and Substrate. *New J. Phys.*, 9, 2007. doi:10.1088/1367-2630/9/10/376. (Cited on page 26)
- [219] 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. doi:10.1016/0030-4018(86)90116-1. (Cited on page 118)
- [220] 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(6) :4129–4138, 1986. doi:10.1103/PhysRevB.34.4129. (Cited on pages 3, 32, 80, and 98)

- [221] 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. doi:10.1103/PhysRevLett.53.989. (Cited on pages 2, 3, and 78)
- [222] M. E. Toimil Molares, V. Buschmann, D. Dobrev, R. Neumann, R. Scholz, I. U. Schuchert, and J. Vetter. Single-Crystalline Copper Nanowires Produced by Electrochemical Deposition in Polymeric Ion Track Membranes. *Adv. Mater*, 13(1) :62–65, 2001. doi:10/csn2j7. (Cited on pages 29 and 100)
- [223] M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg. Confinement of Acoustical Vibrations in a Semiconductor Planar Phonon Cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 89(22) :227402, 2002. doi:10.1103/PhysRevLett.89.227402. (Cited on page 2)
- [224] P. J. S. Van Capel, E. Péronne, and J. I. Dijkhuis. Nonlinear Ultrafast Acoustics at the Nano Scale. *Ultrasonics*, 56 :36–51, 2015. doi:10.1016/j.ultras.2014.09.021. (Cited on page 98)
- [225] M. van Dijk, M. Lippitz, and M. Orrit. Detection of Acoustic Oscillations of Single Gold Nanospheres by Time-Resolved Interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, 95(26) :267406, 2005. doi:10.1103/PhysRevLett.95.267406. (Cited on pages 26 and 98)
- [226] O. Varnavski, G. Ramakrishna, J. Kim, D. Lee, and T. Goodson. Optically Excited Acoustic Vibrations in Quantum-Sized Monolayer-Protected Gold Clusters. *ACS Nano*, 4(6) :3406–3412, 2010. doi:10.1021/nn1003524. (Cited on pages 24 and 26)
- [227] A. Vertikov, M. Kuball, A. V. Nurmikko, and H. J. Maris. Time-Resolved Pump-Probe Experiments with Subwavelength Lateral Resolution. *Appl. Phys. Lett.*, 69(17) :2465, 1996. doi:10.1063/1.117499. (Cited on pages 98 and 124)
- [228] V. G. Veselago. The Electrodynamics of Substances with Simultaneously Negative Values of  $\epsilon$  and  $\mu$ . *Sov. Phys. Usp.*, 10(4) :509, 1968. doi:10.1070/PU1968v010n04ABEH003699. (Cited on page 76)
- [229] V. G. Veselago and E. E. Narimanov. The left Hand of Brightness : Past, Present and Future of Negative Index Materials. *Nat. Mater.*, 5(10) :759–762, 2006. doi:10.1038/nmat1746. (Cited on page 76)
- [230] C. Voisin, N. Del Fatti, D. Christofilos, and F. Vallée. Ultrafast Electron Dynamics and Optical Nonlinearities in Metal Nanoparticles. *J. Phys. Chem. B*, 105 :2264–2280, 2001. doi:10.1021/jp0038153. (Cited on page 26)
- [231] C. A. Volkert, E. T. Lilleodden, D. Kramer, and J. Weissmüller. Approaching the Theoretical Strength in Nanoporous Au. *Appl. Phys. Lett.*, 89(6) :2004–2007, 2006. doi:10.1063/1.2240109. (Cited on page 37)

- [232] L. Wang, A. Kiya, Y. Okuno, Y. Niidome, and N. Tamai. Ultrafast Spectroscopy and Coherent Acoustic Phonons of Au–Ag Core–Shell Nanorods. *J. Chem. Phys.*, 134(5) :054501, 2011. doi:10.1063/1.3533235. (Cited on page 48)
- [233] Z. L. Wang and J. Song. Piezoelectric Nanogenerators Based on Zinc Oxide Nanowire Arrays. *Science*, 312(5771) :242–246, 2006. doi:10.1126/science.1124005. (Cited on page 60)
- [234] M. C. Wingert, Z. C. Y. Chen, E. Dechaumphai, J. Moon, J.-H. Kim, J. Xiang, and R. Chen. Thermal Conductivity of Ge and Ge-Si Core-Shell Nanowires in the Phonon Confinement Regime. *Nano Lett.*, 11(12) :5507–5513, 2011. doi:10.1021/nl203356h. (Cited on page 48)
- [235] J. P. Wolfe. *Imaging Phonons : Acoustic Wave Propagation in Solids*. Cambridge University Press, 2005. ISBN 9780521022088. (Cited on page 2)
- [236] S.-C. Yang, P.-K. Wei, H.-H. Hsiao, P.-A. Mante, Y.-R. Huang, I.-J. Chen, H.-C. Chang, and C.-K. Sun. Enhanced Detection Sensitivity of Higher-Order Vibrational Modes of Gold Nanodisks on Top of a GaN Nanorod Array through Localized Surface Plasmons. *Appl. Phys. Lett.*, 105(21) :211103, 2014. doi:10.1063/1.4902830. (Cited on pages 4, 98, 99, and 124)
- [237] S.-C. Yang, Y.-C. Wu, P.-A. Mante, C.-C. Chen, H.-P. Chen, H.-Y. Chou, M.-H. Shih, and C.-K. Sun. Efficient Excitation of Guided Acoustic Waves in Semiconductor Nanorods through External Metallic Acoustic Transducer. *Appl. Phys. Lett.*, 105(24) :243101, 2014. doi:10.1063/1.4904414. (Cited on page 99)
- [238] Y. Yang, W. Guo, K. C. Pradel, G. Zhu, Y. Zhou, Y. Zhang, Y. Hu, L. Lin, and Z. L. Wang. Pyroelectric Nanogenerators for Harvesting Thermoelectric Energy. *Nano Lett.*, 12(6) :2833–2838, 2012. doi:10.1021/nl3003039. (Cited on page 4)
- [239] K. Yu, T. A. Major, D. Chakraborty, M. S. Devadas, J. E. Sader, and G. V. Hartland. Compressible Viscoelastic Liquid Effects Generated by the Breathing Modes of Isolated Metal Nanowires. *Nano Lett.*, 15(6) :3964–3970, 2015. doi:10.1021/acs.nanolett.5b00853. (Cited on page 100)
- [240] K. Yu, J. E. Sader, P. Zijlstra, M. Hong, Q. H. Xu, and M. Orrit. Probing Silver Deposition on Single Gold Nanorods by their Acoustic Vibrations. *Nano Lett.*, 14(2) :915–922, 2014. doi:10.1021/nl404304h. (Cited on page 48)
- [241] R. Zeis, A. Mathur, G. Fritz, J. Lee, and J. Erlebacher. Platinum-Plated Nanoporous Gold : An Efficient, Low Pt Loading Electrocatalyst for PEM Fuel Cells. *J. Power Sources*, 165(1) :65–72, 2007. doi:10.1016/j.jpowsour.2006.12.007. (Cited on page 37)
- [242] S. Zhang, E. Péronne, L. Belliard, S. Vincent, and B. Perrin. Three-Dimensional Acoustic Wavefront Imaging in Anisotropic Systems by Picosecond Acoustics. *J. Appl. Phys.*, 109(3) :033507, 2011. doi:10.1063/1.3532034. (Cited on page 107)

- 
- [243] X. Zhang and Y. Ding. Unsupported nanoporous gold for heterogeneous catalysis. *Catal. Sci. Tech.*, 3(11) :2862–2868, 2013. (Cited on page 37)
- [244] O. C. Zienkiewicz, R. L. Taylor, and J. Z. Zhu. *The Finite Element Method : Its Basis and Fundamentals, Sixth Edition*. Butterworth-Heinemann, 2005. ISBN 0750663200. (Cited on page 141)
- [245] 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. doi:10.1021/nl802480q. (Cited on pages 26, 26, and 98)





---

## *Confinement élastique au sein de nanostructures : le nanofil isolé, un système modèle*

### **Résumé :**

Dans ce travail de thèse, nous étudions expérimentalement la dynamique vibrationnelle de nano-objets uniques métalliques ou semiconducteurs par des techniques pompe/sonde femtosecondes. Nous démontrons d'abord que l'observation de nanofils uniques, suspendus au-dessus de tranchées permet à la fois de s'affranchir de l'effet d'étalement inhomogène des propriétés acoustiques et d'augmenter le confinement acoustique. Grâce à l'enrichissement du paysage vibrationnel ainsi obtenu, nous explorons les propriétés élastiques de nombreux systèmes : métalliques, semiconducteurs, poreux, alliages, cœur/coquille, etc. Ensuite, nous tirons parti de l'augmentation du confinement acoustique pour observer la propagation d'ondes acoustiques gigahertz guidées le long de nanofils ou de nanopoutres. Nous montrons que la propagation de ces ondes acoustiques dans ces guides d'ondes nanométriques permet d'obtenir des informations indépendantes sur les propriétés élastiques des objets. A contrario, nous mettons en évidence que lorsque le nanofil est en contact avec un substrat, il agit comme une source acoustique monochromatique d'ondes longitudinales qui rayonne dans le substrat. Nous réalisons en transmission l'imagerie spatio-temporelle de ce champ acoustique généré et détectons acoustiquement l'orientation du nanofil sous-jacent grâce à l'anisotropie de forme du champ acoustique. Enfin, nous envisageons une preuve de concept d'un système de microscopie acoustique de résolution spatiale nanométrique en utilisant une pointe de microscopie à force atomique.

### **Mots clés :**

acoustique picoseconde, phonons, nanofils, pompe-sonde, gigahertz, éléments finis, différences finies, opto-acoustique.

---

## *Single nanowires as model systems to study acoustic confinement in nanostructures*

### **Abstract :**

Vibrational dynamics of individual nano-objects is studied experimentally using pump and probe time-resolved spectroscopy. First, suspended and individual nano-objects avoid the inhomogeneous broadening of the acoustic properties and increase the acoustics confinement inside the nano-object. Elastic properties of metallic, semiconducting, porous, alloys or core-shell nanowires are thus studied in this advantageous geometry. The increased acoustic confinement in the suspended geometry also lead us to the observation of gigahertz coherent guided acoustic phonons in single copper nanowires and gold nanobeams. We show that the observation of propagating acoustic waves in nanoscale waveguides provide additional elastic informations. Furthermore, it gives the opportunity to unambiguously discriminate which mode is excited and detected using pump and probe time-resolved spectroscopy. On the contrary, nanowires can be used as monochromatic acoustic sources of longitudinal waves when deposited on a substrate. As the acoustic source radiates longitudinal waves inside the substrate, the spatiotemporal imaging of the generated acoustic field is undergone and the nanowire's orientation is detected in transmission thanks to the acoustic field's anisotropy. Finally, as another step toward acoustic microscopy with nanoscale spatial resolutions, an atomic force microscopy tip is used as a waveguide and an acoustic transducer with nanometric spatial extension.

### **Keywords :**

picosecond ultrasonics, phonons, nanowires, pump-probe, gigahertz, finite elements, finite differences, opto-acoustics.

---