



HAL
open science

Étude vibrationnelle de nanostructures : vers le développement de nouvelles techniques d'imagerie acoustique à l'échelle nanométrique

Ronan Delalande

► **To cite this version:**

Ronan Delalande. Étude vibrationnelle de nanostructures : vers le développement de nouvelles techniques d'imagerie acoustique à l'échelle nanométrique. Acoustique [physics.class-ph]. Sorbonne Université, 2021. Français. NNT : 2021SORUS261 . tel-03963045

HAL Id: tel-03963045

<https://theses.hal.science/tel-03963045>

Submitted on 30 Jan 2023

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.

Sorbonne Université

École Doctorale 391 SMAER

Sciences Mécaniques, Acoustique, Electronique et Robotique de Paris

Thèse de doctorat réalisée à l'Institut des Nanosciences de Paris

Etude vibrationnelle de nanostructures : vers le développement de nouvelles techniques d'imagerie acoustique à l'échelle nanométrique

Ronan Delalande

Soutenance le 10 décembre 2021

Devant le jury composé de :

<i>Rapporteur</i>	Aurélien CRUT	Maître de Conférence	Université Claude Bernard Lyon 1 institut Lumière Matière
<i>Rapporteur</i>	Philippe DJEMIA	Professeur des Universités	Université Sorbonne Paris Nord Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux
<i>Examineur</i>	Régis MARCHIANO	Professeur des Universités	Sorbonne Université Institut Jean Le Rond d'Alembert
<i>Examineur</i>	Pierre-Adrien MANTE	Chercheur	Lund University Division of Chemical Physics
<i>Directeur de thèse</i>	Laurent BELLARD	Professeur des Universités	Sorbonne Université Institut des Nanosciences de Paris

Remerciements

Il y a fort longtemps que le mythe du savant pratiquement fou travaillant seul dans sa tour est dépassé. Les travaux de recherche comme ceux présentés au cours de ce manuscrit sont le fruit de la collaboration et de la participation de nombreuses personnes qu'il convient bien sûr de remercier.

Mes premiers remerciements sont évidemment adressés à Laurent Belliard, Professeur des Universités à Sorbonne Université, pour avoir proposé et encadré cette thèse. Notre rencontre il y a presque quatre ans maintenant ne m'avait donné qu'une envie : décrocher cette bourse de l'école doctorale pour venir travailler avec toi. Après ces trois années, je peux honnêtement dire que je ne regrette pas ce choix. Ton enthousiasme, ta curiosité sont sans aucun doute contagieux et tes grandes qualités humaines ont fait de cette thèse une aventure que je ne suis pas prêt d'oublier.

Je tiens ensuite à remercier Philippe Djemia, Professeur des Universités à l'Université Sorbonne Paris Nord, et Aurélien Crut, Maître de Conférence à l'Université Claude Bernard Lyon 1, pour avoir accepté de lire cette thèse. À l'heure tardive où j'écris ces lignes, j'espère que ce manuscrit saura vous convaincre et que vos avis soient favorables. Mes remerciements vont également à Régis Marchiano, Professeur des Universités à Sorbonne Université, et Pierre-Adrien Mante, Chercheur à Lunden Univeristy en Suède, pour avoir accepté de compléter le jury et d'examiné le travail réalisé. J'ai hâte de pouvoir discuter et commenter ces travaux avec vous quatre.

Qui dit acoustique picoseconde et pompe-sonde dit bien évidemment lasers, ligne à retard, photodiodes, ... et tout une myriade d'éléments optiques. Pour m'avoir aidé à installer, régler et comprendre ce qui peut sembler pour un néophyte comme un sacré bazar sur la table optique, je remercie profondément Eric Charron, Ingénieur d'Etude à Sorbonne Université. S'il a fallu de temps en temps passer des journées régler des éléments à la main à quelques micromètres près, heureusement que la plupart du temps l'électronique fait tout pour nous. Pour ça, je remercie Serge Vincent, Ingénieur de Recherche au CNRS, pour avoir installé et maintenir tout cela en état de fonctionnement.

Je remercie aussi Daniel Garcia-Sanchez pour le travail réalisé sur les simulations par éléments finis ainsi que pour avoir pris du temps pour répondre aux multiples questions que je pouvais avoir. L'un des intérêts d'utiliser des techniques pompe-sonde est d'être dispensé d'utiliser des éléments piézoélectriques. Je remercie Olga Boyko-Kazymyrenko, Maître de Conférence à Sorbonne Université, pour m'avoir permis de travailler sur des nanofils de nitrure de gallium et donc de ré-insérer des matériaux piézoélectriques

dans cette thèse. L'un comme l'autre, j'ai hâte de pouvoir lire la suite de vos travaux sur les simulations et les fils.

En plus de tous ceux cités jusqu'ici, il y aussi tous les autres membres de l'équipe ACOUST avec qui j'aurai eu le plaisir de discuter ces trois dernières années de bavarder parfois d'acoustique, d'enseignement et de recherche ... souvent d'autres choses. Bernard Perrin, Directeur de Recherche Emérite au C.N.R.S., je ne regrette que de n'avoir pas pu discuter plus souvent avec toi à cause de cette pandémie. Agnès Huynh, Maître de Conférence à Sorbonne Université, bon courage pour ton H.D.R., hâte de lire ça. Pauline Rovillain, Maître de Conférence à Sorbonne Université, promis si tu me re-explique tes travaux je ne regarderai plus dans le vide! Jean-Louis Thomas et Bernard Bonello, Directeurs de Recherche au C.N.R.S, merci pour les discussions matinales autour de la machine à café. Danièle Fournier, Professeur des Universités Émérite à Sorbonne Université, ta bonne humeur contagieuse faisait souvent du bien pour oublier les manip' qui n'ont pas fonctionné. Jean-Yves Duquesne et Jean-Yves Prieur, Chercheur bénévole à Sorbonne Université et Professeur invité au C.N.R.S., je regrette de ne pas avoir pu discuter plus souvent avec vous.

Au sein de l'équipe, il y avait bien évidemment les doctorants, post-doc et autres stagiaires. Qu'ils soient présents ou passés. Merci donc à Sarah, Thibault, Dan, Wei, Sophie, Linyun, Jonas, Maryam, Roneï pour les bons moments passer ces trois années. Merci plus encore à Camille Lagoin, alors Doctorante au sein de l'équipe, et Jérémy Bonhomme, PostDoc au C.N.R.S., pour avoir pris le temps de répondre à mes questions, des plus stupides aux moins idiotes. Bon courage à Louis et Marie qui se lancent à leur tour dans l'aventure du doctorat.

Je voudrais aussi remercier tous les autres doctorants, post-doc et stagiaires du laboratoire avec lesquels j'ai pu discuter et échanger, souvent le mercredi midi : Mathis, Audrey, Medhi, Pedro, Charlie, Richard, Samuel, Thibaut, Adrien, Marine, Angus, Oliviero, Violette, Bertille, Clément, Angeline, Thomas, Medhi, Niccolò.

Merci également à Bruno Gallas, Chargé de Recherche au C.N.R.S. , mon parrain à l'INSP pour avoir veiller régulièrement à ce que tout se passe bien au cours de cette thèse.

Je souhaite remercier également les membres du groupe 'Climactions' de l'INSP : Marine, Christophe, Laurent, Dominique, Cécile, Fabio, Catherine, Jacques, Yves, Corinne, Martino et Maxime. Les discussions et les échanges auront été à l'origine de nombreuses réflexions concernant le futur de la recherche,

le rôle du chercheur dans la société et sur l'évolution de celle-ci même plus généralement.

Les doctorants de l'INSP m'ont fait l'honneur d'être leur représentant au sein du conseil du laboratoire de l'INSP pendant deux ans. Cette expérience aura été incroyablement enrichissante sur le monde de la recherche et son fonctionnement dans l'ombre des publications et des expériences. Je souhaite donc remercier à ce titre à la fois les doctorants pour m'avoir fait confiance et surtout l'intégralité des membres du Conseil.

J'ai eu l'occasion au cours de cette thèse de réaliser une mission d'enseignement au sein de la licence de mécanique de Sorbonne Université. Cela aura été une expérience particulièrement enrichissante, d'autant plus à la suite des événements de cette dernière année et demi. Pour cela, j'aimerais remercier tous les enseignants et doctorants avec lesquels j'ai pu travailler et en particulier Laurent Martin Witkowski, Maître de Conférence à Sorbonne Université, pour la grande confiance et l'autonomie accordée. Je n'imaginai pas me retrouver à pouvoir proposer des sujets d'examens au début de ma mission, et pourtant cela aura sans doute été plus formateur en terme de pédagogie que tout le reste de ma mission.

Enfin, il y a toutes ces personnes qui, à défaut d'avoir participées directement à cette thèse auront au moins permis sa réalisation par leur présence et leur soutien. A ma famille (non, il y a longtemps que je n'écoute plus les poissons discuter). A mes amis (un jour je te montrerai une salle de manip' Erwan). A une petite Pat, pour s'être assurée tous les matins et à coup de dents si nécessaire que je me lève bien pour aller ~~lui donner à manger~~ travailler. Et puis surtout, à Sophie qui, si elle m'aura bien perturbé lors de ma première année de thèse, n'aura été que soutien et support depuis. J'espère être à la hauteur à mon tour pour te soutenir lors de ta thèse et je suis sûr que l'on vivra encore beaucoup d'autres aventures ensemble.

Table des matières

1	Introduction	1
1.1	Nanotechnologie et nanoparticules	1
1.2	L'acoustique picoseconde	2
1.3	Imagerie acoustique	4
1.4	Etudes des nanoparticules par acoustique picoseconde	5
1.5	Plan de lecture	6
2	Évaluation des propriétés élastiques d'un nanofil unique	9
2.1	Intérêt des nanofils	9
2.2	Un nanofil : un guide d'ondes cylindrique	11
2.2.1	Le tenseur des contraintes	11
2.2.2	Le tenseur des déformations	13
2.2.3	La loi de Hooke	14
2.2.4	Équation de Navier-Lamé	17
2.2.5	Guide d'onde cylindrique	18
2.3	Processus de synthétisation des nanofils étudiés	24
2.3.1	Fabrication des nanofils d'or et d'argent utilisés	24
2.3.2	Utilisation de substrats pré-structurés	26
2.4	Montage expérimental utilisé	27

2.5	Méthode inverse d'identification des propriétés élastiques : exemple idéal d'un nanofil d'or	29
2.6	Applications à des hétérostructures	34
2.6.1	Suivi des propriétés mécaniques d'alliage argent - or	34
2.6.2	Évaluation des propriétés mécaniques de nanofils d'or poreux	38
2.7	Utilisation d'une couverture d'aluminium	39
2.7.1	Application à un nanofil d'or	40
2.7.2	Couche protectrice d'un nanofil de bismuth	44
2.7.3	Étude des modes propres d'un nanofil de nitrure de gallium	46
2.8	Conclusion	49
3	Etude vibrationnelle d'un disque d'or	51
3.1	Intérêt des disques pour étudier l'interaction substrat-particule	51
3.2	Synthétisation des disques d'or	52
3.2.1	Fabrication des disques	52
3.2.2	Sous-gravure des disques	54
3.3	Montages expérimentaux	55
3.4	Étude d'un mode d'épaisseur	57
3.4.1	Identification du mode	57
3.4.2	Dépendance spatiale du mode	60
3.4.3	Influence du substrat	61
3.4.4	Comparaison avec une membrane d'or	65
3.4.5	Détermination de r_G à partir de Q	69
3.4.6	Calcul du coefficient de réflexion R	70
3.4.7	Génération d'ondes dans le substrat	71
3.5	Étude des modes radiaux	75
3.5.1	Modes radiaux d'un disque non sous-gravé	75

3.5.2	Etude numérique des modes radiaux	78
3.5.3	Comparaison des résultats numériques et expérimentaux	85
3.5.4	Excitation du disque par le substrat	94
3.6	Conclusion	98
4	Utilisation de sondes A.F.M. pour l'imagerie acoustique résolue en temps	101
4.1	Introduction	101
4.2	Etude de cônes de silicium	102
4.2.1	Echantillon étudié	102
4.2.2	Montage expérimental	104
4.2.3	Résultats expérimentaux	104
4.2.4	Limitations	108
4.3	Echantillons et montages expérimentaux	109
4.3.1	Pointes AFM utilisées	109
4.3.2	Montages expérimentaux	110
4.4	Generation acoustique dans une pointe AFM	111
4.4.1	Propagation dans le cantilever	111
4.4.2	Variation d'épaisseur du cantilever	112
4.4.3	Propagation dans la pointe	113
4.4.4	Influence de la géométrie de la pointe	114
4.4.5	Observation de l'anisotropie du silicium	116
4.4.6	Etude numérique de la propagation dans la pointe	117
4.4.7	Mesures désaxées du centre de la pointe	121
4.5	Mise en contact pointe - échantillon	123
4.5.1	Sensibilité au contact	123
4.5.2	Transmission acoustique	126
4.5.3	Imagerie de surface	129

4.6 Conclusion	132
5 Conclusion générale	135
Annexes	141
A Suivi des propriétés élastiques de l'or en fonction de la température	143
B Propriétés mécaniques	161
C Propriétés optiques	163

Chapitre 1

Introduction

1.1 Nanotechnologie et nanoparticules

A la fin des années 1950, le physicien Richard Feynman se passionne pour les possibilités qu'offrirait la manipulation individuelle d'atomes. Il invite alors la communauté scientifique à s'intéresser à un nouveau domaine jusqu'alors quasiment inexploré : celui du faramineusement petit [1]. Ce nouveau champ de recherche, intitulé nanotechnologie [2], connaîtra finalement son essor au cours des années 1980. Ce développement est notamment permis par l'invention des microscopes à effet tunnel (STM pour *Scanning Tunneling Microscope* en anglais) [3] et à force atomique (AFM pour *Atomic Force Microscope* en anglais) [4] permettant d'observer le monde à l'échelle nanométrique.

Aux progrès en observation, se sont suivis ceux en manipulation et synthétisation. La finesse de gravure de processeurs a atteint la barre symbolique de 1 μm en 1987 par exemple. Un grand intérêt s'est ainsi développé pour des particules dont les dimensions caractéristiques sont comprises entre quelques nanomètres et quelques centaines de nanomètres : les nanoparticules. A partir des années 1990, une part importante des recherches en nanotechnologie concerne la synthétisation de ces particules et leurs caractérisations.

Si leurs tailles rendent les nanoparticules particulièrement intéressantes pour la miniaturisation, cela n'est pas l'unique raison expliquant le développement d'intérêt pour celles-ci. Les nanoparticules ont en effet la particularité de pouvoir présenter des propriétés uniques : elles peuvent présenter des effets de confinement modifiant les propriétés des matériaux les constituant.

Un exemple communément utilisé est le changement de couleurs de poudres solides ou de solutions colloïdales de nanoparticules faites d'un même matériau et présentant des formes similaires mais ayant des tailles différentes. Le confinement n'impacte néanmoins pas uniquement les propriétés optiques. Les propriétés quantiques, plasmoniques ou encore élastiques des nanoparticules peuvent être affectées.

Les progrès réalisés ces dernières décennies en nanotechnologie permettent aujourd'hui de synthétiser des nanoparticules dans une très grande diversité de matériaux. On trouve ainsi de nombreuses particules formées d'un ou plusieurs matériaux métalliques, isolants mais aussi organiques. Ces développements permettent également une maîtrise importante de la taille mais aussi de la forme de ces particules. On peut ainsi distinguer différentes formes de nanoparticules : nanosphère, nanofil, nanoplaquette, nanodisque, nanocube, ... Pour chacune de ces formes, une particule peut présenter une ou plusieurs dimensions nanométriques. Cela permet notamment de moduler les effets de confinement seulement selon certains axes et certaines orientations cristallines.

L'importante diversité de nanoparticules qu'il est possible de fabriquer et les propriétés uniques qu'elles peuvent présenter permet le développement de nombreuses applications à partir de celles-ci. Néanmoins, cela implique également la nécessité de pouvoir les caractériser. Il existe ainsi un besoin important dans le développement de techniques permettant de définir de façon fiable les propriétés de nanoparticules. On peut par exemple citer le projet de l'association européenne des laboratoires nationaux de métrologie, ou EURAMET, s'intéressant à la mesure fiable des propriétés mécaniques de nano-objets [5].

1.2 L'acoustique picoseconde

Nouvel élément découvert en 1817 par les chimistes suédois Jöns Jacob Berzelius et Johan Gottlieb Gahn, le sélénium aura intrigué un grand nombre de scientifiques tout au long du 19^{ième} siècle. En effet, ce matériau a la particularité de présenter des propriétés électriques différentes lorsqu'il est éclairé du fait de sa photoconductivité [6]. Parmi les scientifiques s'intéressant au sélénium et à ce phénomène, on trouve Alexander Graham Bell, qui vient d'inventer quelques années auparavant le téléphone.

Il propose justement d'utiliser cet appareil, sensible aux variations de courant électrique, afin d'écouter les effets que la lumière provoque au moment où un morceau de sélénium passe de l'ombre à la lumière [7]. Les travaux qu'il mènera avec Summer Tainter mèneront à l'invention du Photophone, renommé à posteriori Radiophone, appareil similaire au téléphone à ceci près que le fil conducteur entre émetteur et récepteur est remplacé par un flux lumineux modulé.

A cette époque, il est connu qu'un son audible peut être produit par un morceau de fer exposé à un champ magnétique résultant d'un courant électrique intermittent [8]. Inspiré par cet effet dû à la magnétostriction, A.G. Bell propose d'exposer directement du sélénium à un flux lumineux intermittent. Il décrit alors pouvoir entendre distinctement un son audible sans avoir recours au téléphone, découvrant ainsi l'effet photo-acoustique.

A la suite de cette découverte, cet effet sera étudié et observé pour un grand nombre d'autres solides mais également de gaz [9, 10] et de liquides. Malgré l'intérêt porté pour ce phénomène après sa découverte, il est resté une curiosité sans applications concrètes pendant plusieurs décennies. Le développement du premier laser en 1960 par Maiman [11] provoque un bouleversement expérimental. Ce nouveau type de sources optiques donne en effet accès à un faisceau directionnel à la fois de haute énergie et focalisable sur de petites surfaces. Dès 1962 [12], les premières sources laser pulsées sont introduites, permettant d'avoir accès à des puissances encore bien plus grandes.

Très vite, il est mis en évidence que ce nouveau type de sources peut être utilisé pour la génération d'ondes élastiques [13, 14, 15, 16]. Les progrès technologiques réalisés sur les lasers ont permis des études plus approfondies sur la génération de ces ondes [17]. Le développement des sources laser femtosecondes en particulier amèneront à la naissance de l'acoustique picoseconde.

Au milieu des années 1980, l'équipe de C. Thomsen et H. Marris propose en effet d'utiliser ce nouveau type de laser afin de générer, mais aussi de détecter des ondes acoustiques [18]. Pour cela, ils utilisent un système dit pompe-sonde. Une première impulsion laser de forte intensité vient exciter le matériau afin de générer l'onde par une brusque dilatation thermique. Une seconde impulsion, décalée dans le temps, est utilisée pour mesurer les propriétés optiques du matériau. Sous l'effet de l'onde acoustique, ces dernières sont modifiées. En réalisant un suivi dans le temps de ces modifications, il est possible de suivre l'onde acoustique.

1.3 Imagerie acoustique

L'histoire de l'imagerie acoustique prend son origine dans le destin tragique du Titanic. Son naufrage en 1912 a en effet mis en évidence le besoin de pouvoir détecter, identifier et surtout localiser des objets ne pouvant être vus, tel qu'un iceberg sous la surface de l'eau par exemple. Différentes installations utilisant des ondes acoustiques dans ce but ont été brevetées peu après : en 1912 en Angleterre par le météorologiste Lewis Fry Richardson, ou encore en Allemagne en 1913 par le physicien Alexander Behm par exemple. En France, le physicien Paul Langevin propose en 1915 d'utiliser les propriétés piézoélectriques du quartz, étudiées par les frères Pierre et Jacques Curie quelques décennies auparavant, afin de développer un dispositif d'écolocalisation, l'ancêtre des sonars.

Il faudra toutefois attendre les années 1940 pour voir le développement des premiers systèmes d'imagerie acoustique dans les solides. Floyd Firestone propose en effet un appareil basé sur des ultrasons générés à l'aide de cristaux piézoélectriques pour détecter les possibles défauts que peuvent présenter des moulures métalliques [19]. Aujourd'hui, ce type de systèmes est largement utilisé dans l'industrie - bâtiments, aéronautique, ... - dans le cadre d'évaluation et de contrôle non destructifs.

La taille des défauts détectés étant directement liée à la longueur d'onde acoustique employée, la miniaturisation notamment aura nécessité d'employer des fréquences beaucoup plus élevées pour réaliser des contrôles avec la résolution nécessaire. Les techniques d'acoustique picoseconde, permettant de générer des ondes acoustiques avec des fréquences dans le domaine des gigahertz, se trouvent être les candidats idéaux pour réaliser des images acoustiques avec la résolution nécessaire.

Toutefois, celles-ci présentent tout de même différentes limites. Il est notamment nécessaire que les matériaux sur lesquels les faisceaux laser sont focalisés interagissent avec les rayonnements électromagnétiques auxquels ils sont exposés. Le faisceau pompe doit être absorbé pour générer des ondes tandis que le faisceau sonde doit être réfléchi. En l'absence de cette interaction lumière-matière, il est commun d'utiliser une fine couche métallique. Ce dépôt n'est pas toujours possible et les structures pouvant être imagées sont donc limitées. A l'échelle nanométrique, la taille des faisceaux employés est également une limitation qui impacte le contenu fréquentiel du champ acoustique émis.

Ces limitations sont les principales raisons pour lesquelles des travaux de recherche sont aujourd'hui conduits pour développer de nouvelles stratégies pour la génération et la détection d'ondes acoustiques. Parmi les alternatives les plus prometteuses et étudiées, on trouve notamment l'utilisation de nanoparticules métalliques comme sources acoustiques [20].

1.4 Etudes des nanoparticules par acoustique picoseconde

La possibilité d'étudier les vibrations de nanoparticules en utilisant des techniques d'acoustique picoseconde a été mise en avant au début des années 2000 [21, 22]. La signature vibrationnelle d'une nanoparticule d'or unique par une telle technique est ainsi réalisée en 2005 [23].

L'étude des vibrations de nanoparticules est particulièrement intéressante tant d'un point de vue fondamental qu'applicatif. En effet, elle permet d'une part de déterminer les propriétés thermiques ou encore élastiques des nanoparticules, et d'autre part d'étudier les phénomènes mis en jeu à l'échelle nanométrique, tels que le confinement et ses impacts. Les nanoparticules métalliques en particulier sont largement étudiées, notamment par des techniques pompe-sonde d'acoustique picoseconde. Du fait de leurs propriétés plasmoniques, elles présentent un fort couplage avec la lumière. Elles s'avèrent donc être les candidates idéales pour de telles études.

Ainsi, ces deux dernières décennies, les vibrations de nanoparticules présentant une très large diversité de tailles ou encore de formes ont pu être étudiées. Ne serait-ce que pour l'or, on peut recenser des études sur des nanofils [24, 25, 26, 27], des nanosphères [23, 28, 29, 30], des nanoplaquettes [31, 32] ou encore des nano-octahédres [33] et des nanocuboctaèdres [33]. Les résultats obtenus sur des nanoparticules de quelques nanomètres seulement ont notamment permis de vérifier que les lois de la mécanique des milieux continus sont encore applicables à cette échelle.

L'impact de l'environnement d'une nanoparticule sur ses vibrations a été le sujet de nombreux travaux [26, 34]. La génération d'ondes acoustiques dans un substrat après excitation de la particule par une impulsion du faisceau pompe a ainsi été mise en évidence pour différentes formes de nanoparticules constituées de différents matériaux [31, 35, 30, 36]. La conception de nanoparticules permet de moduler les ondes émises. Toutefois, la possibilité de détecter des ondes acoustiques en utilisant des nanoparticules n'a encore fait l'objet que de peu d'études.

1.5 Plan de lecture

L'émission d'ondes acoustiques par un nanofil unique excité préalablement par une impulsion laser a pu être mise en évidence au cours d'une étude réalisée précédemment au sein de l'équipe 'Acoustique pour les nanosciences' de l'Institut des NanoSciences de Paris, où s'est déroulée cette thèse [35]. Les ondes émises ont été associées à l'un des modes de vibrations du nanofil : son mode de respiration radial. Par conséquent, la fréquence des ondes émises est principalement contrôlée par le diamètre du nanofil et les propriétés du matériau composant le nanofil. Si l'on se limite à l'utilisation de nanofils métalliques, pour une taille de nanofil donnée, seules quelques fréquences sont accessibles. Réciproquement, si l'on souhaite émettre un champ à une certaine fréquence, seules quelques tailles de nanofils peuvent être employées. Cette contrainte peut fortement limiter l'emploi de nanofils comme sources d'ondes acoustiques GHz. L'utilisation de nanofils présentant des hétérostructures peut permettre de passer outre cette limitation mais nécessite de pouvoir déterminer au préalable les propriétés élastiques de ces nanofils. Au cours du chapitre 2 de cette thèse, une méthode inverse permettant de réaliser l'évaluation élastique complète d'un nanofil unique métallique à section circulaire est présentée. Celle-ci est décrite au travers d'une application à des nanofils d'or. Elle est ensuite utilisée pour déterminer les propriétés élastiques d'un alliage d'or et d'argent pour différentes compositions de ces métaux. Enfin, on montre que le recouvrement partiel d'un nanofil par une couche d'aluminium permet d'utiliser cette technique pour des matériaux fragiles ou n'interagissant pas avec la lumière dans le domaine accessible par nos sources laser.

Si le champ émis par un nanofil métallique peut être modulé en jouant sur sa taille et ses propriétés, on ne contrôle pas sa position sur un échantillon donné. Par conséquent, cela limite fortement leur emploi. Au cours du chapitre 3, on s'intéresse à une structure basée sur un disque d'or d'épaisseur nanométrique. Celle-ci est fabriquée directement sur l'échantillon souhaité et sa position est donc parfaitement maîtrisée. Au cours de cette étude, on s'est notamment intéressé à l'impact du contact entre le disque et son substrat sur la réponse vibrationnelle de la particule métallique. En s'intéressant à son facteur de qualité, une forte sensibilité du mode d'épaisseur au contact avec le substrat de silicium a pu être mise en évidence. Il a également été montré une forte influence de la zone de contact sur les fréquences des modes radiaux du disque. Cet effet a été retrouvé à l'aide de simulations. La réponse vibrationnelle de ce dernier est donc directement liée à ce contact. Une étude numérique a retrouvé cette tendance observée expérimentalement et permis de l'étudier plus globalement.

L'émission d'ondes acoustiques avec une fréquence identique à celle du mode d'épaisseur a également été observée. Or, la fréquence de ce mode est déterminée par l'épaisseur et le matériau du disque. Le champ acoustique émis peut donc être facilement modulé par une conception précise. L'utilisation d'une telle structure permet donc d'avoir une source acoustique dont la position et le champ émis sont contrôlables. L'excitation du disque et de ses modes par une onde acoustique se propageant dans le substrat est également mise en évidence. Cela ouvre la porte à la détection d'ondes par une nanoparticule, un mode de détection quasiment inédit dans la littérature. De plus, le contenu fréquentiel de la réponse vibrationnelle pour cette excitation s'avère différente de celles obtenues par une excitation laser. Cette observation peut s'avérer particulièrement intéressante pour la détermination de propriétés élastiques du matériau à partir de l'identification des fréquences de différents modes.

Au cours du chapitre 4, on étudie dans un premier temps la structure de silicium sur laquelle reposent les disques au cours du chapitre 3. On s'intéresse notamment à la possibilité de modifier la directivité de la source acoustique en jouant sur la géométrie de cette structure. Finalement, on propose d'utiliser des sondes AFM comme sources acoustiques. Dans ce cas, le champ acoustique est émis dans la sonde AFM par photoélasticité suite à l'absorption d'une impulsion laser. La transmission de ce champ depuis la sonde AFM vers un échantillon donné après contact au bout de la pointe est aussi démontrée. Un effet de filtrage hautes fréquences est également observé, celui-ci pouvant être lié à un phénomène de diffraction dû à la très faible dimension de la pointe à son extrémité. Au préalable, la propagation acoustique au sein de la sonde AFM a été étudiée. L'impact de la géométrie de la pointe sur les ondes réfléchies au bout de la pointe est également relevé. Des premiers résultats démontrant la sensibilité du champ acoustique dans la sonde à l'impédance acoustique de surface de l'échantillon sont aussi présentés. Ces résultats sont donc une première étape encourageante dans la possibilité de développer de nouvelles techniques d'imagerie acoustique basées sur l'acoustique picoseconde et l'utilisation de sondes AFM.

Cette thèse est complétée par plusieurs annexes. L'annexe A présente l'utilisation de la méthode introduite dans le chapitre 2 pour suivre l'évolution en température des propriétés élastiques de l'or. Enfin, au cours des annexes B et C, les propriétés mécaniques et optiques utilisées au cours de cette thèse sont respectivement rappelées.

Chapitre 2

Évaluation des propriétés élastiques d'un nanofil unique

2.1 Intérêt des nanofils

Parmi la diversité de nano-objets rapidement introduits au cours du chapitre 1, on distingue tout particulièrement les nanofils. On regroupe sous ce terme les nano-objets cylindriques présentant une section nanométrique. Un nanofil à section circulaire aura par exemple un rayon compris entre quelques nanomètres et quelques centaines de nanomètres. La longueur de ces objets est quant à elle plus généralement de l'ordre de quelques micromètres voire plusieurs dizaines de micromètres. Par conséquent, les nanofils se caractérisent par des rapports de forme longueur-sur-diamètre très importants.

Du fait de sa section de taille nanométrique, un nanofil est un nano-objet démontrant des effets de confinement mais uniquement selon ses dimensions radiales. Un nanofil peut ainsi présenter des propriétés différentes selon certaines de ses dimensions seulement. On peut qualifier les nanofils d'objets à une dimension ou 1D : seule l'une de ses dimensions n'est pas nanométrique et ne présente donc pas de confinement. De plus, du fait de leurs géométries, les nanofils sont des nanoparticules qui montrent également un rapport surface-sur-volume important. Ils sont donc particulièrement sensibles à tout effet de surface.

Cette sensibilité aux effets de surface ainsi que les propriétés uniques qu'elles peuvent présenter dues au confinement expliquent principalement l'intérêt porté à ces nanoparticules. On trouve ainsi des nanofils utilisés pour de très diverses applications : en optique comme sources laser [37, 38, 39], de lumière [40, 41] voire de photons uniques, au sein de panneaux solaires [42, 43, 44, 45, 46] ou encore en électronique sous forme de transistor [47]. Les nanofils sont également fréquemment utilisés pour la conception de capteurs biologiques [48, 49, 50, 51], de masse [52] ou de gaz [53] grâce à la possibilité de fonctionnaliser de telles nanoparticules [54, 51, 55]. Ils s'avèrent aussi être de bons candidats pour la réalisation de puits quantiques [56].

L'utilisation croissante des nanofils pour ces applications est à l'origine de besoins importants tant pour la synthèse que pour leur caractérisation. Le comportement élastique et mécanique des nanofils notamment est à l'origine de nombreux questionnements. Les effets de taille et la dépendance à celle-ci des propriétés d'un nanofil sont à l'origine d'études depuis plus d'un siècle par exemple. Si les premières observations seraient attribuées à Leonard de Vinci, il a été encore récemment mis en évidence le besoin de nouvelles recherches sur ce point. La prise en compte d'effets de surface ou encore l'influence d'un substrat, ou plus généralement de l'environnement, sont elles aussi des questions nécessitant de nouveaux travaux.

Pour répondre à ces questions, un nombre important de techniques ont été proposées afin d'étudier expérimentalement les nanofils. On distingue notamment deux grandes familles de techniques selon qu'elles soient basées sur i) des MEMS (pour *MicroElectroMechanical System* en anglais, ou système microélectromécanique en français) [57] ou ii) des AFM [58, 59]. Chacune de ces familles présente néanmoins des limites. Dans le cas de la première famille, l'utilisation de MEMS requiert la synthèse de ceux-ci. De plus, cela nécessite l'installation des nanofils après leur fabrication au sein du système, souvent à une position très précise. Une manipulation qui peut s'avérer invasive, voire destructive. Les techniques faisant usage d'AFM présentent également leurs propres limites. L'interaction entre la pointe AFM, ou le nanomanipulateur, et un nanofil est souvent la principale source d'imprécisions. Certaines techniques nécessitant des dépôts métalliques pour l'installation de nanofils peuvent aussi faire preuve des mêmes problèmes d'invasivité que les techniques basées sur les MEMS. Enfin, un certain nombre de ces méthodes ne permettent pas de réaliser une évaluation élastique complète [58, 57, 59], sont destructives pour la particule [57] et/ou ne permettent pas de travailler sur une particule unique. Ces travaux sont complétés par des études numériques [60].

Au cours des deux dernières décennies, il a été démontré que les techniques pompe-sonde d'acoustique picoseconde peuvent être utilisées pour l'étude élastique de nanofils [25]. Celles-ci permettent en effet de s'intéresser non seulement à la propagation acoustique le long de nanofils [61] mais surtout aux modes propres d'un nanofil unique [62, 24, 63, 26, 64]. En étudiant les fréquences de ces modes ainsi que les facteurs de qualité associés, il est alors possible de déterminer la structure d'un nanofil [62, 64] ou encore d'évaluer le couplage entre un nanofil et son environnement [24, 63, 26].

Au cours de ce premier chapitre, on montre que l'étude des modes propres d'un nanofil, principalement de ses modes de respirations, permet de réaliser une évaluation élastique complète d'un nanofil unique métallique à section circulaire. Dans un premier temps, on présente la façon d'obtenir l'équation de Pochhammer-Chree décrivant les modes de respiration d'un cylindre circulaire. La technique de synthèse des nanofils est présentée dans une seconde partie. Le montage expérimental utilisé est introduit dans une troisième partie avant de présenter la technique en elle-même dans un quatrième temps. Deux exemples d'applications de cette technique sur des nanofils à structure plus complexes sont détaillés. Une dernière partie met en évidence que la métallisation de la surface de nanofils permet d'utiliser cette technique sur une large diversité de matériaux. On présente enfin en annexe, A, l'utilisation de cette technique pour le suivi des propriétés élastiques de nanofils d'or en fonction de la température.

2.2 Un nanofil : un guide d'ondes cylindrique

2.2.1 Le tenseur des contraintes

Un solide peut se voir appliquer deux types de forces. Une force du premier type est la conséquence d'un champ, e.g. un champ électromagnétique, et agit sur l'ensemble du volume du solide. On qualifie ce type de forces de volumiques. Le second type de forces ne s'exerce qu'à la surface du solide, on parle alors de forces surfaciques. Les forces de Coriolis ou de friction sont des exemples de forces surfaciques.

On considère un solide de volume V que l'on imagine divisé arbitrairement en deux parties V_1 et V_2 par une surface imaginaire S . Soit un point M situé sur cette surface S . Ce solide est représenté sur la figure 2.1.

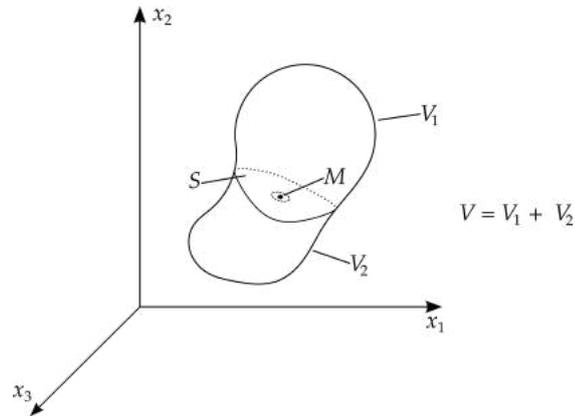


FIGURE 2.1 – Volume V séparé en deux parties V_1 et V_2 par une surface S sur laquelle est présent un point M .

Sur un petit élément de surface identifié comme ΔS contenant le point M et caractérisé par un vecteur normal \mathbf{n} s'expriment une force de contact $\Delta \mathbf{F}$ ainsi qu'un moment surfacique $\Delta \mathbf{M}$ du fait du contact mécanique entre les volumes V_2 et V_1 . En posant $\mathbf{T}(M, \mathbf{n})$ comme vecteur de contrainte, il est possible d'exprimer la force de contact comme

$$\Delta \mathbf{F} = \mathbf{T}(M, \mathbf{n}) \Delta S . \quad (2.1)$$

Puisque l'on s'intéresse à l'élément de surface ΔS , seules les forces surfaciques doivent être considérées. En prenant ΔS comme tendant vers zéro, le rapport $\Delta \mathbf{F} / \Delta S$ devient $d\mathbf{F} / dS$ que l'on appelle vecteur de contrainte et l'on peut exprimer

$$\mathbf{T}(M, \mathbf{n}) = \frac{d\mathbf{F}}{dS} . \quad (2.2)$$

Ce vecteur ainsi défini peut être décomposé en deux composantes : une composante σ normale à la surface, colinéaire à \mathbf{n} , appelée contrainte normale et une composante θ parallèle au plan S , désignée sous le terme de contrainte tangentielle. On peut alors exprimer

$$\mathbf{T}(M, \mathbf{n}) = \sigma \mathbf{n} + \theta \mathbf{k} . \quad (2.3)$$

La séparation de V en V_1 et V_2 ayant été réalisée de manière arbitraire, il existe un nombre infini de plans contenant le point M ainsi qu'un nombre infini de vecteurs de contrainte $\mathbf{T}(M, \mathbf{n})$. L'état de contrainte au point M est donc défini à partir de l'ensemble de ces vecteurs. Néanmoins, le théorème de la contrainte de Cauchy affirme qu'il est suffisant de connaître trois vecteurs de contraintes appartenant à trois plans perpendiculaires entre eux. En effet, chacun des autres vecteurs peut être exprimé à partir de ces 3 vecteurs à l'aide des équations de transformations des coordonnées. Il est donc possible de décomposer n'importe lequel des vecteurs de contraintes comme

$$\mathbf{T}(M, \mathbf{n}) = \sum_{j=1}^3 \mathbf{n}_j \mathbf{T}(M, \mathbf{e}_j) = \sum_{i,j=1}^3 \sigma_{ij} \mathbf{n}_j \mathbf{e}_i \quad (2.4)$$

introduisant les neuf coefficients σ_{ij} du tenseur des contraintes de Cauchy $\bar{\sigma}$. Ce tenseur définit intégralement l'état de contrainte du point M . Les trois composantes vérifiant $i = j$ correspondent aux contraintes normales tandis que les six autres composantes correspondent aux contraintes tangentielles. Le premier indice i de chacune de ces composantes indique que la contrainte agit sur un plan normal à l'axe x_i quand le second indice j indique la direction x_j dans laquelle cette contrainte agit.

2.2.2 Le tenseur des déformations

On considère, tels que représentés sur la figure 2.2, deux points voisins $M(\mathbf{x})$ et $N(\mathbf{x} + \mathbf{dx})$ appartenant à un solide quelconque au repos. Sous l'effet de forces extérieures, ce solide est déformé et ses particules sont déplacées. Les deux points se retrouvent ainsi bougés respectivement en $M'(\mathbf{x} + \mathbf{u}(\mathbf{x}))$ et $N'(\mathbf{x} + \mathbf{dx} + \mathbf{u}(\mathbf{x} + \mathbf{dx}))$ où \mathbf{u} est le vecteur caractérisant le déplacement. Ce dernier n'est pas nécessairement le même pour les deux points, d'où la distinction entre $\mathbf{u}(\mathbf{x})$ et $\mathbf{u}(\mathbf{x} + \mathbf{dx})$.

Le déplacement du point N peut être exprimé à partir du déplacement du point M auquel on ajoute un déplacement additionnel. Cela s'exprime

$$\mathbf{u}(\mathbf{x} + \mathbf{dx}) = \mathbf{u} + (\nabla \cdot \mathbf{u}) \cdot \mathbf{dx} = \mathbf{u} + \mathbf{du} \quad (2.5)$$

avec

$$\mathbf{du} = (\nabla \cdot \mathbf{u}) \cdot \mathbf{dx} \quad (2.6)$$

ce qui permet d'introduire un tenseur du second ordre \bar{D} que l'on appelle le tenseur des déformations s'exprimant

$$\bar{D} = \nabla \cdot \mathbf{u}. \quad (2.7)$$

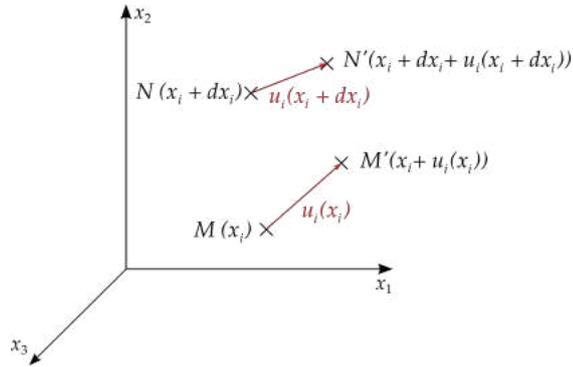


FIGURE 2.2 – Deux points M et N d'un solide déplacés en M' et N' sous l'effet de forces appliquées à celui-ci.

Ce tenseur s'avère être antisymétrique et peut être décomposé en deux tenseurs

$$\bar{\bar{D}} = \bar{\bar{E}} + \bar{\bar{G}} \quad (2.8)$$

où $\bar{\bar{E}}$ est un tenseur symétrique décrivant la déformation pure tandis que $\bar{\bar{G}}$ est un tenseur antisymétrique exprimant la rotation pure. Leurs composantes s'expriment respectivement

$$\gamma_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.9)$$

et

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.10)$$

On ne considère que le tenseur $\bar{\bar{E}}$ puisqu'il est le seul des deux à contribuer à la déformation locale du solide.

2.2.3 La loi de Hooke

Un solide se déforme sous l'action de forces extérieures. Cette déformation peut être exprimée à l'aide du tenseur des déformations $\bar{\bar{D}}$ tandis que les forces extérieures peuvent être définies grâce au tenseur des contraintes $\bar{\bar{\sigma}}$. Ces deux tenseurs sont liés et, dans le plus simple des cas, cette relation s'exprime à l'aide de la loi de Hooke

$$\bar{\bar{\sigma}} = \bar{\bar{C}} \bar{\bar{E}} \quad (2.11)$$

où $\bar{\bar{C}}$ est un tenseur du quatrième ordre appelé tenseur des rigidités. La relation peut également être inversée, s'exprimant alors

$$\bar{E} = \bar{\bar{S}}\bar{\sigma} \quad (2.12)$$

où cette fois $\bar{\bar{S}}$ correspond au tenseur des souplesses. La loi de Hooke révèle ainsi une relation linéaire entre contrainte et déformation. Des termes supplémentaires peuvent être ajoutés pour prendre en compte les effets piézo-électrique ou thermo-élastique. Les matériaux étudiés lors de cette thèse, principalement des métaux de transitions, ne nécessitent pas la prise en compte de ces termes additionnels.

Étant un tenseur du quatrième ordre, le tenseur $\bar{\bar{C}}$ comprend $3^4 = 81$ composantes notées c_{ijkl} . Le tenseur des contraintes mais aussi le tenseur des déformations sont symétriques, ce qui implique que le tenseur des rigidités est également symétrique. S'exprimant $c_{ijkl} = c_{jikl}$ et $c_{ijkl} = c_{ijlk}$, le nombre de composantes indépendantes est ainsi réduit de 81 à 36. Celles-ci peuvent être identifiées par six combinaisons pour les indices ij et six pour les indices kl . Il est donc possible de simplifier la loi de Hooke 2.11 sous la forme indicielle

$$\sigma_\alpha = c_{\alpha\beta} \epsilon_\beta. \quad (2.13)$$

Les relations entre les indices $ijkl$ et $\alpha\beta$ sont détaillées dans le tableau 2.1. Par exemple, on écrira c_{1122} sous la forme c_{12} .

ij ou kl	11	22	33	23 or 32	13 or 31	12 or 21
α ou β	1	2	3	4	5	6

TABLE 2.1 – Équivalence entre les indices $\alpha\beta$ et $ijkl$.

Enfin, il est nécessaire de prendre en compte les propriétés cristallographiques du matériau étudié. En effet, le nombre de constantes indépendantes peut être diminué si le cristal présente lui aussi des éléments de symétries. Dans le cas particulier des cristaux cubiques, dont font parties les métaux de transitions utilisés lors de cette étude, le nombre de constantes peut être

réduit à 3. Finalement, le tenseur des rigidités s'exprime

$$\bar{\bar{C}} = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{12} & c_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} \end{pmatrix}. \quad (2.14)$$

L'hypothèse d'un matériau isotropique implique que le tenseur $\bar{\bar{C}}$ est invariant par n'importe quel plan de symétrie ou rotation, ce qui amène à

$$c_{44} = \frac{c_{11} - c_{12}}{2}. \quad (2.15)$$

Cela permet de changer la loi de Hooke en

$$\bar{\bar{\sigma}} = \lambda \nabla \cdot \mathbf{u} + \mu (\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^\dagger) \quad (2.16)$$

où $\lambda = c_{12}$ et $\mu = c_{44}$ sont respectivement le premier et le second paramètre de Lamé tandis que $\nabla \mathbf{u}^\dagger$ est la transposée conjuguée de $\nabla \mathbf{u}$.

2.2.4 Équation de Navier-Lamé

Dans le cadre du principe fondamental de la dynamique, l'ensemble des forces, surfaciques et volumiques, doit être pris en compte. Néanmoins, dans le cadre de cette étude, seules les forces surfaciques agissent. La résultante des forces peut alors être exprimée

$$\mathbf{F} = \iint_S \mathbf{T}(P).d\mathbf{S} \quad (2.17)$$

que l'on peut modifier à l'aide du théorème de Green-Ostrogradsky, aussi appelé théorème de la divergence, en

$$\mathbf{F} = \iiint_V \nabla \cdot \bar{\sigma} dV . \quad (2.18)$$

Ainsi, la seconde loi de Newton permet d'arriver à l'équation

$$\iiint_V \left(\nabla \cdot \bar{\sigma} - \rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} \right) . dV = 0 \quad (2.19)$$

qui peut être également simplifiée

$$\nabla \cdot \bar{\sigma} - \rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.20)$$

En utilisant les équations 2.16 et 2.20, le tenseur des contraintes peut être remplacé par son expression en fonction du déplacement pour obtenir l'équation

$$\rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = (\lambda + \mu) \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}) + \mu \nabla^2 \mathbf{u} \quad (2.21)$$

qui est appelée l'équation de Navier-Lamé.

2.2.5 Guide d'onde cylindrique

Le théorème de Helmholtz-Hodge stipule qu'un champ vectoriel peut être décomposé comme la somme du gradient d'un champ scalaire et du rotationnel d'un champ vectoriel. Le champ de déplacement peut alors être ré-écrit comme la somme

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}_C + \mathbf{u}_D \quad (2.22)$$

où \mathbf{u}_C est défini comme le gradient d'un champ scalaire Φ

$$\mathbf{u}_C = \nabla\Phi \quad (2.23)$$

et \mathbf{u}_D correspond au rotationnel d'un champ vectoriel $\vec{\Psi}$

$$\mathbf{u}_D = \nabla \wedge \vec{\Psi} \quad (2.24)$$

ce qui implique également les propriétés $\nabla \cdot \mathbf{u}_D = 0$ et $\nabla \wedge \mathbf{u}_C = \mathbf{0}$. L'équation de Navier-Lamé 2.21 peut alors être décomposée en un système de deux équations pouvant être résolues indépendamment

$$\nabla^2 \mathbf{u}_C - \frac{\rho}{2\mu + \lambda} \frac{\partial^2 \mathbf{u}_C}{\partial t^2} = 0 \quad (2.25)$$

et

$$\nabla^2 \mathbf{u}_D - \frac{\rho}{\mu} \frac{\partial^2 \mathbf{u}_D}{\partial t^2} = 0. \quad (2.26)$$

On peut également transformer ce système pour faire apparaître directement les potentiels scalaire et vectoriel Φ et $\vec{\Psi}$

$$\nabla^2 \Phi - \frac{1}{c_L^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial t^2} = 0 \quad (2.27)$$

et

$$\nabla^2 \vec{\Psi} - \frac{1}{c_T^2} \frac{\partial^2 \vec{\Psi}}{\partial t^2} = 0. \quad (2.28)$$

où $c_L = \sqrt{(2\mu + \lambda)/\rho}$ et $c_T = \sqrt{\mu/\rho}$ sont respectivement les vitesses des ondes acoustiques longitudinales et transverses dans le milieu.

Ces équations mettent ainsi en évidence qu'il existe deux types d'ondes pouvant se propager à travers le milieu. Le premier type se propage à la vitesse c_L et provoque une déformation parallèle à la direction de propagation. Le second type quant à lui provoque une déformation orthogonale à la direction de propagation en se propageant à la vitesse c_T . Considérant les constantes élastiques c_{11} et c_{44} comme indépendantes de la fréquence, les vitesses le sont donc également, ce qui revient à considérer le milieu comme non dispersif.

Dans le but de résoudre les équations 2.27 et 2.28 et obtenir une expression décrivant la propagation d'ondes acoustiques dans un nanofil, on choisit d'utiliser la méthode de séparation des variables, aussi appelée méthode de Fourier. La géométrie du problème implique l'utilisation d'un système de coordonnées cylindriques. Ainsi, la solution pour le champ scalaire en fonction du temps et de l'espace se trouve être sous la forme

$$\Phi(r, \theta, z, t) = f(r)g(\theta)e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.29)$$

où ω et k sont respectivement la fréquence angulaire et le nombre d'onde du champ acoustique. Cette forme de solution permet de séparer l'équation 2.27 en

$$\frac{d^2 g(\theta)}{d\theta^2} + n^2 g(\theta) = 0, n \text{ entier} \quad (2.30)$$

et

$$\frac{d^2 f(r)}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{df(r)}{dr} + \left(\frac{\omega^2}{c_L^2} - k^2 - \frac{n^2}{r^2} \right) f(r) = 0. \quad (2.31)$$

D'un côté, l'équation 2.30 implique une solution pour $g(\theta)$ à base de fonctions trigonométriques d'argument $n\theta$. L'axisymétrie du problème impose que n soit entier pour vérifier que g soit 2π périodique. D'un autre côté, l'équation 2.31 étant une équation différentielle de Bessel, l'expression de $f(r)$ sera composée de fonctions de Bessel. Finalement, l'expression de Φ se trouve être

$$\Phi(r, \theta, z, t) = [A_1 \cos(n\theta) + A_2 \sin(n\theta)][B_1 J_n(mr) + B_2 N_n(mr)]e^{i(\omega t - kr)} \quad (A_1, A_2, B_1, B_2) \in \mathbb{R}^4 \quad (2.32)$$

où $m^2 = \frac{\omega^2}{c_L^2} - k^2$. J_n et N_n correspondent respectivement aux fonctions de Bessel d'ordre n de première et de seconde espèce. La géométrie du problème permet de faire certaines simplifications. Tout d'abord, n doit être un entier afin de vérifier que la fonction $g(r)$ soit 2π périodique, condition imposée par l'axisymétrie du problème. De plus, la fonction de Bessel du second type N_n tend vers l'infini pour un argument nul.

Or, les tenseurs de déformations et des contraintes devant être finis, cela implique que $B_2 = 0$. Finalement, l'expression simplifiée de Φ s'écrit

$$\Phi(r, \theta, z, t) = [C_1 \cos(n\theta) + C_2 \sin(n\theta)] J_n(mr) e^{i(\omega t - kr)} \quad (C_1, C_2) \in \mathbb{R}^2. \quad (2.33)$$

En ce qui concerne le vecteur potentiel, ces trois composantes tendent vers trois équations indépendantes

$$\nabla^2 \Psi_z(r, \theta, z, t) + \frac{\omega^2}{c_T^2} \Psi_z(r, \theta, z, t) = 0 \quad (2.34)$$

$$\nabla^2 \Psi_r(r, \theta, z, t) - \frac{\Psi_r(r, \theta, z, t)}{r^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial \Psi_\theta(r, \theta, z, t)}{\partial \theta} - \frac{\omega^2}{c_T^2} \Psi_r(r, \theta, z, t) = 0 \quad (2.35)$$

$$\nabla^2 \Psi_\theta(r, \theta, z, t) - \frac{\Psi_\theta(r, \theta, z, t)}{r^2} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial \Psi_r(r, \theta, z, t)}{\partial \theta} - \frac{\omega^2}{c_T^2} \Psi_\theta(r, \theta, z, t) = 0 \quad (2.36)$$

où chacune des composantes s'exprime à l'aide de la méthode de Fourier

$$\Psi_i(r, \theta, z, t) = \psi_{i,r}(r) \psi_{i,\theta}(\theta) e^{i(\omega t - kz)}. \quad (2.37)$$

L'équation 2.34 selon la composante Ψ_z ayant une forme similaire à celle de l'équation 2.27, il est possible de directement fournir la solution

$$\Psi_z(r, \theta, z, t) = [D_1 \cos(n\theta) + D_2 \sin(n\theta)] J_n(lr) e^{i(\omega t - kz)} \quad (D_1, D_2) \in \mathbb{R}^2. \quad (2.38)$$

où $l^2 = \frac{\omega^2}{c_T^2} - k^2$.

La géométrie du problème ajoutée à la différence de signe entre les équations 2.35 et 2.36 pour les composantes Ψ_r et Ψ_θ permet de supposer des solutions présentant les formes

$$\Psi_r(r, \theta, z, t) = \psi_r(r) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.39)$$

et

$$\Psi_\theta(r, \theta, z, t) = \psi_r(r) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)}. \quad (2.40)$$

Les équations 2.35 et 2.36 deviennent alors

$$\frac{d\psi_r}{dr} + \frac{1}{r} \frac{d\psi_r}{dr} + \frac{1}{r^2} ({}^2_n \psi_r + 2n\psi_\theta - \psi_r) - k^2 \psi_r + \frac{\omega^2}{c_T^2} \psi_r = 0 \quad (2.41)$$

$$\frac{d\psi_\theta}{dr} + \frac{1}{r} \frac{d\psi_\theta}{dr} + \frac{1}{r^2} ({}^2_n \psi_\theta + 2n\psi_\theta - \psi_\theta) - k^2 \psi_\theta + \frac{\omega^2}{c_T^2} \psi_\theta = 0 \quad (2.42)$$

reconnaissables comme des équations de Bessel d'ordre $(n + 1)$ et $(n - 1)$. Les solutions sont donc alors

$$\psi_r = E_1 J_{n-1}(lr) + E_2 J_{n+1}(lr) \quad (2.43)$$

$$\psi_\theta = E_2 J_{n+1}(lr) - E_1 J_{n-1}(lr) \quad (2.44)$$

$$(2.45)$$

Les conditions limites impliquent que $C_2 = 0$, $D_1 = 0$ et $E_2 = 0$. Afin de simplifier les équations, on considère également que $C_1 = C$, $D_2 = D$ et $E_1 = E$. Les différentes composantes de $\bar{\Psi}$ sont alors

$$\Psi_r = E J_{n+1}(lr) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.46)$$

$$\Psi_\theta = -E J_{n+1}(lr) \cos(n\theta) e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.47)$$

$$\Psi_z = D J_n(lr) \sin(n\theta) e^{i(\omega t - kz)}. \quad (2.48)$$

Au cours de cette étude, on s'intéresse particulièrement aux composantes radiales σ_{rr} , $\sigma_{r\theta}$ et σ_{rz} du tenseur des contraintes. Celles-ci peuvent être exprimées comme des fonctions du déplacement, permettant d'arriver aux équations

$$\sigma_{rr} = \lambda \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Phi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} \right] + 2\mu \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial \Phi}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_z}{\partial \theta} - \frac{\partial \Psi_\theta}{\partial z} \right) \quad (2.49)$$

$$\sigma_{r\theta} = \mu \left[\frac{1}{r} \left(\frac{\partial}{\partial \theta} \left(2 \frac{\partial \Phi}{\partial r} - \frac{\Phi}{r} \right) - \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \theta \partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial \Psi_r}{\partial r} - \frac{\Psi_r}{r} \right) - \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial \Psi_z}{\partial r} + \frac{\Psi_z}{r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \theta^2} \right] \quad (2.50)$$

$$\sigma_{rz} = \mu \left[\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial \Phi}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_z}{\partial \theta} - \frac{\partial \Psi_\theta}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial \Phi}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial r \Psi_\theta}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_r}{\partial \theta} \right) \right] \quad (2.51)$$

Si on considère le cas de modes purement radiaux, cela implique les conditions

$$\mathbf{u}_\theta(r, \theta, z, t) = 0 \quad \forall (r, \theta, z, t) \quad (2.52)$$

qui mènent à l'expression des composantes du déplacement

$$\Psi_r = 0 \quad (2.53)$$

$$\Psi_z = 0 \quad (2.54)$$

$$\Psi_\theta = -EJ_1(lr)e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.55)$$

Les composantes du déplacement peuvent alors être exprimées

$$u_r = -\left(CmJ_1(mr) + iEkJ_1(lr)\right)e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.56)$$

$$u_\theta = 0 \quad (2.57)$$

$$u_z = -\left(ikCJ_0(mr) + EIJ_0(lr)\right)e^{i(\omega t - kz)}. \quad (2.58)$$

alors que les composantes du tenseurs des contraintes sont données par

$$\begin{aligned} \sigma_{rr}(r, \theta, z, t)e^{-i(\omega t - kz)} &= \left[\left(-\lambda(m^2 + k^2) - 2\mu m^2 \right) J_0(mr) + 2\mu \frac{m}{a} J_1(mr) \right] C \\ &+ \left[2\mu jk \left(-I J_0(lr) + \frac{1}{r} J_1(lr) \right) \right] E \end{aligned} \quad (2.59)$$

et

$$\sigma_{rz}(r, \theta, z, t)e^{-i(\omega t - kz)} = -2\mu ikmJ_1(mr)C - \mu(l^2 - k^2)J_1(lr)E. \quad (2.60)$$

La condition limite libre à la surface implique également les conditions sur les contraintes

$$\sigma_{rr}(r = a, \theta, z, t) = 0 \quad (2.61)$$

$$\sigma_{rz}(r = a, \theta, z, t) = 0. \quad (2.62)$$

Les équations 2.59 et 2.60 peuvent alors être insérées dans les conditions aux limites 2.61 et 2.62. Ce système peut être ré-écrit sous formalisme matriciel. Les équations sont vérifiées si et seulement si le déterminant des coefficients est nul

$$\frac{2m}{a}(l^2 + k^2)J_1(ma)J_1(la) - (l^2 - k^2)^2J_0(ma)J_1(la) - 4k^2mlJ_1(ma)J_0(la) = 0. \quad (2.63)$$

L'équation 2.63 est connue sous le nom de l'équation de dispersion de Pochhammer-Chree. Celle-ci relie les modes propres du guide d'onde au rayon de celui-ci ainsi qu'aux propriétés du matériau le composant au travers des vitesses c_L et c_T . On peut considérer le cas des grandes longueurs d'ondes, soit $k = 0$. L'équation 2.63 peut être simplifiée sous la forme

$$\left(\frac{2m}{a}J_1(ma) - l^2J_0(ma)\right)J_1(la) = 0. \quad (2.64)$$

De cette équation 2.64, deux familles de modes peuvent être identifiées. D'une part, les racines de la fonction $J_1(la)$ sont à l'origine de modes purement longitudinaux, le champ de déplacement ne présente une composante que selon l'axe du nanofil. On ne s'intéresse pas à ces modes lors de cette étude. D'autre part, les solutions de l'équation

$$\frac{2m}{a}J_1(ma) - l^2J_0(ma) = 0 \quad (2.65)$$

ou, en gardant $k = 0$ mais en remplaçant m et l par leur expressions respectives, équivaut à

$$2J_1\left(\frac{\omega_n a}{c_L}\right) - \omega_n a \frac{c_L}{c_T^2} J_0\left(\frac{\omega_n a}{c_L}\right) = 0 \quad (2.66)$$

correspondent à des modes pour lesquels le champ de déplacement ne présente qu'une composante radiale. Ces modes, appelés modes de respirations, sont les modes principaux auxquels on s'intéresse dans ce chapitre.

2.3 Processus de synthèse des nanofils étudiés

2.3.1 Fabrication des nanofils d'or et d'argent utilisés

Les principaux nanofils étudiés au cours de cette étude sont composés d'or, d'argent ou d'un alliage de ces deux métaux. Ceux-ci ont été synthétisés au GSI Helmholtz en utilisant une technique de moulage, ou *template method*.

Pour réaliser cette technique, une fine membrane de polycarbonate Makrofol N et commercialisée par Bayer AG est utilisée afin de former le moule dans lequel les nanofils seront synthétisés. Cette membrane, d'une épaisseur de l'ordre de quelques dizaines de micromètres, est irradiée par des ions d'or préalablement accélérés jusqu'à posséder une énergie de 2 GeV. Cette opération est réalisée à l'accélérateur linéaire UNILAC du GSI Helmholtz Center.

Au fur et à mesure que l'un de ces ions rapides traverse le polymère, il perd de l'énergie à cause des chocs avec les atomes de la membrane. Cela a pour conséquence un transfert d'énergie vers les atomes de la membrane provoquant leur ionisation, soit en faisant passer un de ses électrons à un niveau d'énergie supérieur, soit en arrachant complètement un électron de son orbite. Les électrons alors libérés peuvent à leur tour ioniser et exciter d'autres atomes. Cette réaction en chaîne conduit à la formation d'une zone cylindrique autour du chemin de l'ion où le polymère est endommagé, appelée trace de l'ion. Le choix du polymère est fait en fonction de la sensibilité aux rayonnements et de la facilité à obtenir ces zones de dommages irréversibles. L'énergie du faisceau incident garantit également que les ions d'or sont capables d'altérer n'importe quelle liaison chimique.

La membrane, alors localement endommagée au niveau des traces, est plongée entière pendant 30 s dans une solution d'hydroxyde de sodium 2M NaOH chauffée à 50 °C. La solution attaque chimiquement l'intégralité de la membrane mais avec une vitesse de réaction beaucoup plus importante au niveau des zones altérées par le passage des ions. Afin d'accentuer cette différence de vitesses de réaction, la membrane est préalablement exposée pendant une heure à une lumière ultraviolette. Cette exposition provoque en effet une photo-dégradation des zones de la membrane déjà endommagées par les ions. Une fois le bain de NaOH terminé, les zones de passage des ions sont complètement dissoutes. On se retrouve alors avec une membrane de polycarbonate légèrement plus fine mais qui surtout présente des canaux en place des zones cylindriques endommagées par les ions.

Le moule des nanofils obtenu, la fabrication à proprement dit de ceux-ci peut être réalisée par électrodéposition de métal, ou galvanoplastie. Pour cela, une épaisse couche d'or est déposée par pulvérisation cathodique sur l'une des surfaces de la membrane. Elle est également renforcée par une seconde couche d'or déposée cette fois-ci par électrodéposition. Cette couche double d'or sert de cathode au cours de la galvanoplastie. Une bobine de platine est utilisée comme anode et est plongée avec la membrane dans une solution aqueuse de $\text{KAu}(\text{CN})_2$ et/ou $\text{KAg}(\text{CN})_2$. Le choix de la solution est décidé en fonction des nanofils, d'or ou d'argent ou un alliage, que l'on veut obtenir. Un potentiel approprié entre les deux électrodes, la cathode et l'anode, provoque alors une déposition de matière sur la cathode par réduction des ions métalliques de la solution. Une oxydation se produit également au niveau de l'anode. Des atomes d'or et/ou d'argent se déposent donc sur la couche d'or attachée à la membrane sur ses parties libres mais aussi dans les canaux percés de la membrane.

Une fois les canaux suffisamment remplis, la galvanoplastie est arrêtée et la membrane qui présente maintenant une couche d'or épaisse et des canaux remplis de métal est plongée dans un bain de dichlorométhane CH_2Cl_2 . Celui-ci a pour effet de complètement dissoudre le polymère composant la membrane. Il ne reste alors plus que la double couche d'or à laquelle sont attachés à leur base des fils d'or et/ou d'argent. Ces fils sont détachés grâce à une rapide sonication dans une solution propre de CH_2Cl_2 , permettant ainsi d'obtenir une solution dans laquelle flottent les nanofils. Afin de placer les nanofils sur un substrat, une goutte de cette solution est prélevée et déposée sur le substrat voulu puis laissée sécher à l'air.



FIGURE 2.3 – Image optique d'un nanofil auto-suspendu au-dessus de tranchées (zones noires) creusées dans le silicium

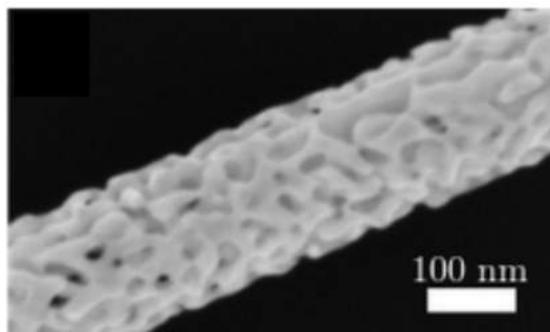


FIGURE 2.4 – Image obtenue au microscope électronique à balayage d'un nanofil d'or poreux.

2.3.2 Utilisation de substrats pré-structurés

L'étude des vibrations de nano-objets a une limite importante : l'influence du substrat sur lequel ces objets reposent. Afin de limiter l'impact de celui-ci, on cherche à obtenir des objets auto-suspendus. La manière classique d'obtenir des nano-objets auto-suspendus est d'utiliser des substrats pré-structurés afin de limiter le contact.

Afin d'obtenir des nanofils auto-suspendus, on utilise lors de cette étude des disques, ou *wafer*, de silicium orienté [001] selon la normale à son plan dans lequel des tranchées ont été préalablement chimiquement creusées. Pour cela, le wafer est tout d'abord oxydé thermiquement. On obtient ainsi une fine couche de dioxyde de silicium SiO_2 de quelques centaines de nanomètres sur toute la surface supérieure du wafer. Ensuite, une couche d'apprêt, ou *primer*, est déposée sur le SiO_2 par enduction centrifuge, ou *spin coating*. Une couche de résine est appliquée au dessus de la même façon. Un premier recuit du wafer ainsi recouvert permet d'éliminer les restes de solvant et de sécher la résine.

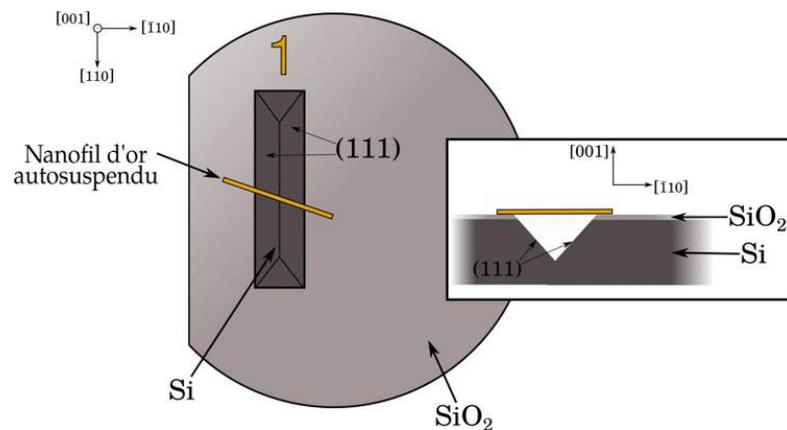


FIGURE 2.5 – Schéma d'un wafer de Silicium gravé utilisé pour cette étude.

Le wafer est exposé à une source de rayonnement ultraviolet par lithographie laser à l'exception des zones où l'on souhaite creuser le silicium pour obtenir les tranchées. Après un second recuit, la partie de la résine non-exposée à la lumière peut être retirée chimiquement. Le wafer est ensuite plongé dans une solution d'acide fluorhydrique HF. Cet acide attaque la couche de dioxyde de silicium mais uniquement aux endroits où elle n'est plus protégée par la résine. Le silicium sous le SiO_2 n'est quant à lui pas affecté par le bain d'acide. Le bain d'acide terminé, le reste de la résine peut être retiré.

Le wafer est ensuite plongé dans un bain de d'hydroxyde de potassium KOH. Cette solution laisse le SiO_2 intact mais attaque chimiquement le Si. Le dioxyde de silicium protège ainsi le silicium et seule la partie du silicium exposée est gravée. Toutefois, l'hydroxyde de potassium ne grave pas le silicium de manière isotrope. La vitesse de gravure selon l'axe [100] est ainsi beaucoup plus importante que selon l'axe [111]. Le silicium est donc principalement gravé selon l'épaisseur du wafer. On s'assure simplement que les tranchées soient orientées selon l'axe [110]. De cette manière, les faces de normal [111] sont directement exposées sur les bords des tranchées et il n'y a pas de gravure du silicium sous la couche de SiO_2 . On obtient des tranchées dont la largeur est maîtrisée.

La largeur de ces tranchées est choisie de manière à être moins importante que la longueur des nanofils. Ainsi, même s'il n'est pas possible de contrôler précisément la position des nanofils sur le substrat, une grande concentration de nanofils dans la solution de CH_2Cl_2 permet de s'assurer qu'un nombre suffisant d'entre eux se retrouveront en travers des tranchées une fois la solution séchée. L'intérêt de ces tranchées est de supprimer l'énergie de relaxation des nanofils vers le substrat. On s'assure donc dans le même temps que la largeur des tranchées soit grande devant la tâche focale. Lorsque étudiés au niveau des tranchées, les nanofils peuvent alors présenter des oscillations avec des temps de vie beaucoup plus importants.

Afin d'obtenir des nanofils d'or poreux, une étape supplémentaire est nécessaire. Une technique commune pour obtenir un milieu poreux fait d'un métal est de réaliser l'objet voulu à partir d'un alliage métallique puis de retirer chimiquement le métal non désiré. Dans le cas présent, on obtient des nanofils d'or poreux à partir de nanofils faits d'un alliage d'or et d'argent auxquels on retire l'argent. Cela est réalisé en trempant le substrat avec les nanofils dans un bain d'acide nitrique HNO_3 pendant trois heures. Il est ensuite rincé plusieurs fois à l'aide d'eau déminéralisée, fournie par MilliQ, et laissé sécher à l'air.

2.4 Montage expérimental utilisé

Le montage expérimental utilisé pour étudier les modes de vibrations des nanofils est schématisé sur la figure 2.6. On utilise une source laser ultrarapide Ti :Sapphire, MAI-TAI Spectra, qui émet un faisceau à une longueur d'onde de 800 nm avec un taux de répétition de 78.8 MHz. La durée des impulsions est inférieure à 100 fs au niveau de la sortie du laser.

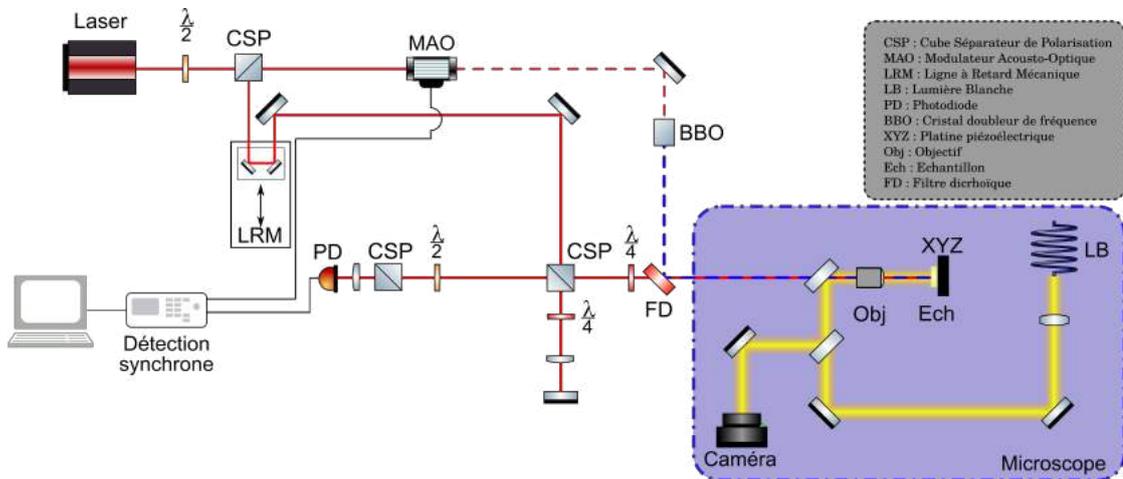


FIGURE 2.6 – Schéma du système optique utilisé pour mesurer les vibrations d'un nanofil unique.

Un premier cube séparateur de polarisation permet de diviser le faisceau laser initial. La divergence aura été au préalable réglée à l'aide d'un télescope non représenté. Une lame demi-onde est placée en amont de ce cube et permet de régler la répartition énergétique entre les deux faisceaux en jouant sur l'état de polarisation du faisceau initial venant du laser.

Le premier faisceau, le faisceau pompe, traverse tout d'abord un modulateur acousto-optique le modulant à 1.8 MHz. Cette modulation permet par la suite l'utilisation d'une détection synchrone. La longueur d'onde du faisceau lumineux est ensuite divisée par deux grâce à un cristal composé de Bêta-borate de baryum pour obtenir un faisceau de 400 nm de longueur d'onde. Ce faisceau traverse ensuite un objectif de grossissement 100 et d'ouverture numérique 0.9 afin d'être focalisé sur l'échantillon. La tâche focale ainsi obtenue est de l'ordre de 1 μ m.

Le second faisceau, le faisceau sonde, est quant à lui réfléchi par un jeu de miroirs placés sur une ligne à retard motorisée avant d'être orienté vers l'échantillon en passant au travers du même objectif que le faisceau pompe. La superposition des deux faisceaux dans l'objectif et sur l'échantillon se fait notamment à l'aide d'un filtre dichroïque placé juste avant l'objectif. Un second cube séparateur en polarisation associé à une lame quart d'onde placée avant ce filtre permet de récupérer seulement la partie du faisceau sonde qui est réfléchi par l'échantillon.

Ce faisceau est enfin mesuré à l'aide d'une photodiode à avalanche, les puissances des faisceaux pompe et sonde étant limitées à environ 300 μW et 50 μW . Les miroirs montés sur la ligne à retard peuvent être déplacés afin de créer une différence de chemin optique entre les faisceaux pompe et sonde. On peut ainsi obtenir une différence jusqu'à 0.6 m impliquant un retard de 12 ns entre l'excitation et la mesure.

L'échantillon est monté au sein d'un microscope inversé Olympus. Grâce à une caméra et une source de lumière blanche, il est possible d'observer l'échantillon en l'absence des faisceaux lasers. On peut ainsi facilement localiser un nanofil unique placé tel qu'on le souhaite au-dessus d'une tranchée. Le logiciel associé à la caméra permet également de photographier l'échantillon et d'obtenir des images des nanofils telle que celle présentée sur la figure 2.3.

2.5 Méthode inverse d'identification des propriétés élastiques : exemple idéal d'un nanofil d'or

On présente ici la méthode d'évaluation des propriétés élastiques d'un nanofil unique dans le cas simplifié d'un nanofil composé uniquement d'or.

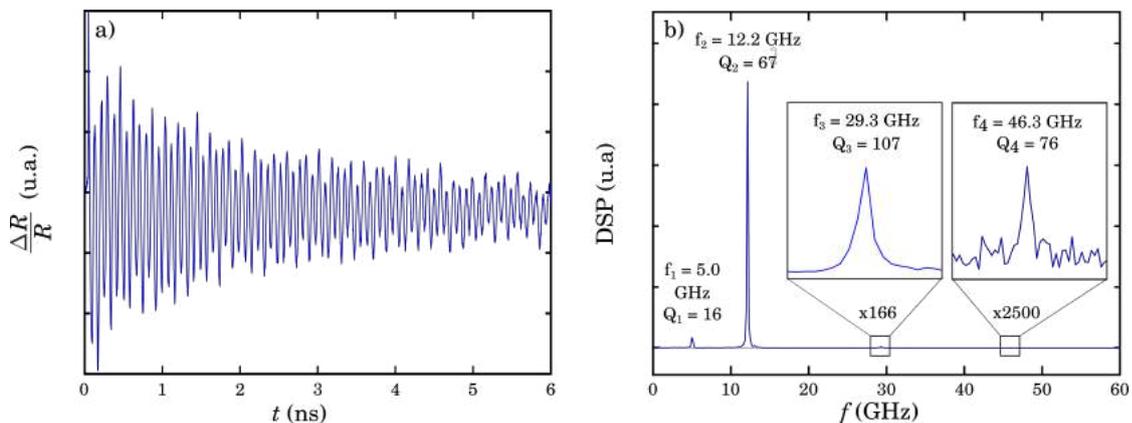


FIGURE 2.7 – a) Variation de réflectivité mesurée sur un nanofil d'or de 200.1 nm placé au-dessus d'une tranchée. b) Densité spectrale de puissance des oscillations du signal a) présentant quatre composantes à $f_1 = 5.0$, $f_2 = 12.2$, $f_3 = 29.3$ et $f_4 = 46.3$ GHz et de facteurs de qualité $Q_1 = 16$, $Q_2 = 67$, $Q_3 = 107$ et $Q_4 = 76$.

Le signal de réflectivité résolu en temps mesuré sur un nanofil d'or de diamètre de 200 nm placé au-dessus d'une tranchée est représenté sur la figure 2.7 a). On y observe un signal présentant plusieurs composantes qui décroissent au fur et à mesure du temps. Ces oscillations durent plusieurs nanosecondes, on s'assure néanmoins que celles-ci durent moins que 12 ns pour éviter qu'une mesure ne perturbe la suivante.

La densité spectrale de puissance de ce signal est représentée sur la figure 2.7 b). Ce spectre présente 4 composantes à $f_1 = 5.0$, $f_2 = 12.2$, $f_3 = 29.3$ et $f_4 = 46.3$ GHz. Chacune de ces composantes correspond à un mode de vibration du nanofil d'or. En particulier, les composantes f_2 , f_3 et f_4 peuvent être associées aux modes de respiration du nanofil. Les déformées modales de ces modes purement radiaux obtenues à l'aide du logiciel Comsol sont représentées sur la figure 2.8.

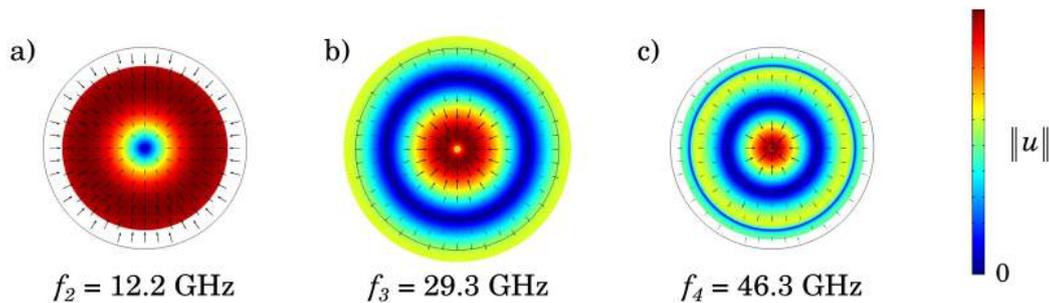


FIGURE 2.8 – Déformées modales des modes de respiration d'ordre a) 1 b) 2 et c) 3 d'un nanofil représentées en valeur absolue de la composante radiale du champ de déplacement.

Le signal 2.7 peut être comparé à un signal mesuré sur un nanofil composé lui aussi d'or et de diamètre nominal de 200 nm mais posé directement sur le substrat de silicium. Un tel signal est présenté sur la figure 2.9 a). Comme pour le nanofil auto-suspendu, ce signal présente des oscillations. Néanmoins, ces oscillations ne correspondent qu'à une seule et unique composante et de moins bon facteur de qualité.

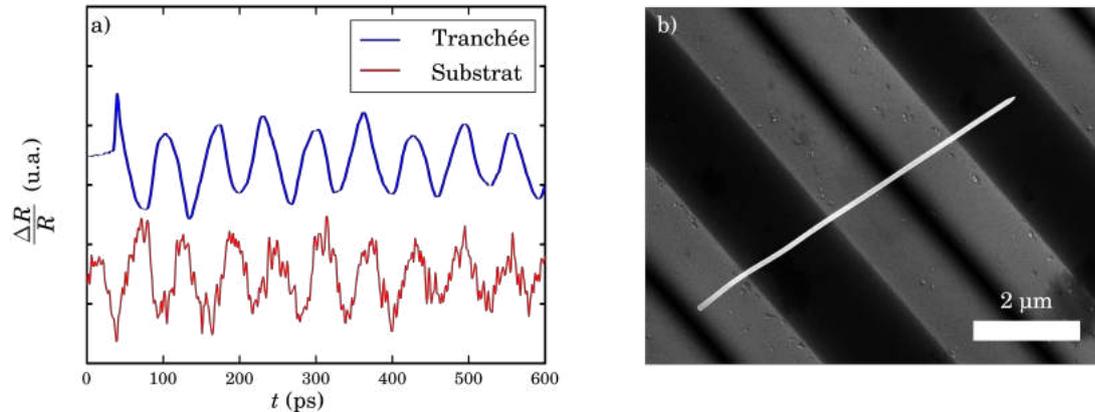


FIGURE 2.9 – a) Comparaison des variations de réflectivité mesurées sur un nanofil d'or placé sur un substrat de silicium et au dessus d'une tranchée. b) Image obtenue au MEB d'un nanofil d'or de diamètre 200.1 nm auto-suspendu sur une tranchée.

On réécrit ici l'équation 2.66 de Pochhammer-Chree

$$2 \frac{v_T}{v_L} J_1\left(\frac{\omega_n a}{v_L}\right) - \frac{\omega_n a}{v_T} J_0\left(\frac{\omega_n a}{v_L}\right) = 0 \quad (2.67)$$

où on rappelle que a est le rayon du fil, J_0 et J_1 correspondent aux fonctions de Bessel d'ordre 0 et 1, $\omega_n = 2\pi f_n$ est la fréquence angulaire du mode n tandis que v_L et v_T sont respectivement les vitesses longitudinales et transverses dans l'or. Cette équation présente trois inconnues que sont a et v_L et v_T et ne peut donc pas être résolue dans l'état. Pour pouvoir la résoudre, le diamètre des fils est mesuré avec précision à l'aide d'images réalisées au Microscope électronique à Balayage, ou M.E.B., dont un exemple est montré sur la figure 2.9 b). Des numéros en aluminium déposés par lithographie à proximité des tranchées permettent de s'assurer que l'on mesure le diamètre du même fil que celui dont on a relevé les fréquences. Une fois ce diamètre mesuré, valant ici $2a = 200.1$ nm, il devient possible de calculer tous les couples de vitesses (v_L, v_T) permettant de résoudre l'équation 2.67 pour un nanofil unique. Cette résolution se fait pour chaque mode, donc chaque ω_n ou f_n , indépendamment. Graphiquement, on obtient pour chaque mode de respiration une courbe donnant l'ensemble des couples de vitesses solutions. Dans cet exemple, trois modes ayant été identifiés sur le spectre 2.7 b), on obtient donc trois courbes dans le plan des vitesses représenté sur la figure 2.10 a).

Le matériau n'ayant qu'une seule vitesse longitudinale et une vitesse transverse, le couple de vitesses solution de l'équation 2.67 correspond à un point d'intersection des différentes courbes.

Du fait des fonctions de Bessel présentes dans l'équation 2.67, on peut trouver plusieurs points d'intersection. Néanmoins, il est possible de se limiter à des intervalles de vitesses raisonnables en considérant que le matériau étudié est un métal de transition.

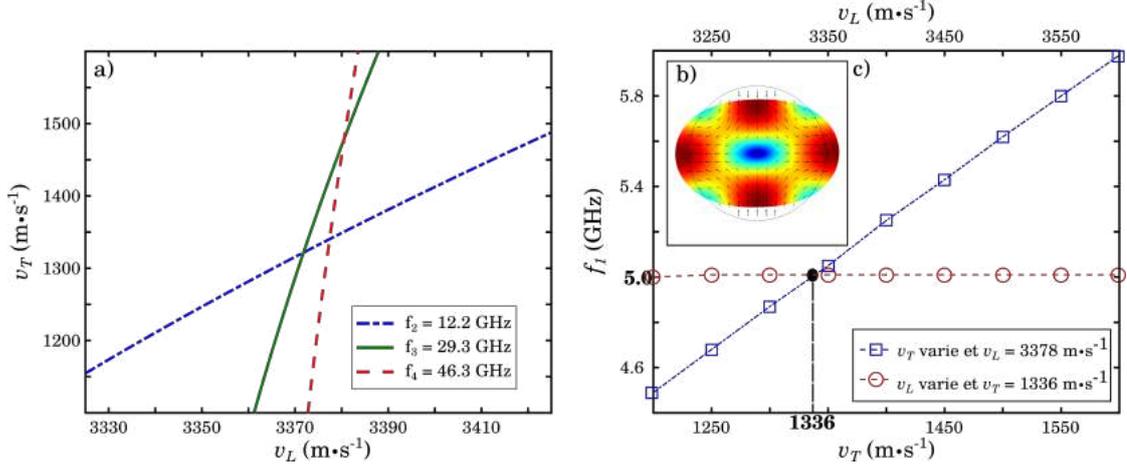


FIGURE 2.10 – a) Plan des vitesses présentant les courbes des couples de vitesses solutions de l'équation de Pochhammer-Chree. b) Déformée modale du mode quadripolaire identifié comme f_1 , obtenue à 4.5 GHz pour un fil d'or de 100 nm de rayon. c) Evolution de f_1 pour différentes valeurs de v_T avec $v_L = 3378 \text{ m s}^{-1}$ et pour différentes valeurs de v_L avec $v_T = 1336 \text{ m s}^{-1}$.

Comme montré sur la figure 2.10 a), dans notre cas on n'obtient pas un unique point d'intersection par lequel passe les trois courbes. Néanmoins, les trois points d'intersection des courbes unes-à-unes se retrouvent dans des intervalles de vitesses restreints. Les coordonnées des points d'intersection sont données dans le tableau 2.2. On en déduit les valeurs moyennes et les écart-types associés à l'aide des fonctions mean() et std() du logiciel Matlab que l'on peut comparer aux valeurs que l'on peut trouver dans la littérature. Finalement, on peut ainsi déterminer les vitesses $v_L = 3378 \pm 4 \text{ m s}^{-1}$ et $v_T = 1380 \pm 86 \text{ m s}^{-1}$.

$v_L \text{ (m s}^{-1}\text{)}$	3381	3372	3377
$v_T \text{ (m s}^{-1}\text{)}$	1479	1322	1340

TABLE 2.2 – Couples de vitesses des points d'intersections permettant de déterminer $v_L = 3378 \pm 4$ et $v_T = 1380 \pm 86$

On observe que la précision est bien meilleure sur la mesure de la vitesse longitudinale que sur la vitesse transverse. Cette observation est cohérente avec l'étude [65] qui met en avant que les modes de respiration d'un nanofil sont moins sensibles à la vitesse transverse à mesure que l'ordre du mode croît. On retrouve graphiquement cet aspect dans le plan (v_L, v_T) tel que sur la figure 2.10 a) : la pente des courbes augmente avec l'ordre du mode. Par conséquent, s'il est nécessaire de mesurer la fréquence de plusieurs modes de respiration pour remonter aux vitesses du matériau, avoir un très grand nombre de fréquences ne permet pas d'améliorer grandement la précision des mesures en reprenant la valeur du rayon déterminée au MEB.

Sur le spectre 2.7 b), une fréquence additionnelle f_1 est détectée. Celle-ci correspond également à la fréquence propre d'un mode de vibration du nanofil mais pas d'un mode de respiration. Pour identifier ce mode, une simulation par éléments finis a été réalisée en utilisant le logiciel Comsol. On retrouve alors un mode quadripolaire dont la déformée modale est représentée sur la figure 2.10 b) à une fréquence proche de celle mesurée expérimentalement.

La connaissance de la fréquence de ce mode additionnel est utilisée afin d'améliorer la précision sur la détermination de la vitesse transverse. L'incertitude sur l'onde longitudinale étant faible, on conserve la valeur déterminée de $v_L = 3378 \text{ m s}^{-1}$. On réalise alors plusieurs simulations pour un nanofil de 200.1 nm de diamètre mais en faisant varier la vitesse des ondes transverses dans le matériau le composant. Pour chacune des vitesses considérées, la fréquence du mode quadripolaire est relevée. Ainsi que représenté sur la figure 2.10 c), on retrouve la valeur de $f_1 = 5.0 \text{ GHz}$ obtenue expérimentalement pour une vitesse transverse de $v_T = 1336 \text{ m s}^{-1}$. Cette nouvelle valeur est bien comprise dans l'intervalle d'incertitude déterminée à partir des valeurs du tableau 2.2.

De nouvelles simulations sont réalisées pour ce même nanofil mais en fixant cette fois la valeur de la vitesse transverse à $v_T = 1336 \text{ m s}^{-1}$ et en faisant varier celle de la valeur longitudinale. On observe sur la figure 2.10 c) que la fréquence du mode ne varie que très peu dans ce cas. Par conséquent, l'incertitude sur la vitesse transverse provient de l'incertitude expérimentale sur la fréquence du mode et non de celle sur la vitesse longitudinale. Considérer une incertitude de 0.1 GHz sur la fréquence du mode quadripolaire implique ainsi une vitesse transverse de $v_T = 1336 \pm 18 \text{ m s}^{-1}$. L'incertitude sur la valeur de cette vitesse est donc beaucoup moins importante. Toutefois, cela nécessite de mesurer la fréquence ce mode quadripolaire en plus de celles d'au moins deux modes de respiration.

En mesurant les vibrations d'un nanofil unique pendant plusieurs nanosecondes par une technique pompe-sonde, les fréquences de plusieurs modes de respiration de ce nanofil sont mesurées. En mesurant également le diamètre de ce même nanofil en l'observant au M.E.B., il est possible de remonter aux vitesses longitudinales et transverses du matériau composant le nanofil par méthode inverse depuis l'équation de Pochhammer-Chree. La mesure de fréquences de modes différents supplémentaires permet d'améliorer la précision de mesure de la vitesse transverse.

2.6 Applications à des hétérostructures

Comme précisé en 2.1, un intérêt tout particulier est porté aux nanofils présentant des hétérostructures. En effet, combiner différents matériaux selon différentes géométries permet d'obtenir des nanofils avec de nouvelles propriétés optiques, plasmoniques ou encore acoustiques. On rapporte ici l'application de la méthode présentée dans la partie 2.5 à deux types de nanofils présentant des hétérostructures : des nanofils faits d'un alliage or-argent et des nanofils composés d'or poreux.

2.6.1 Suivi des propriétés mécaniques d'alliage argent - or

Le premier type de nanofils présentant des hétérostructures auxquels on s'intéresse sont des nanofils faits d'un alliage d'or et d'argent. Il a été montré qu'il est possible de moduler les propriétés plasmoniques de cet alliage en modifiant les proportions de ces composants [66]. On souhaite ici connaître l'influence de ces variations sur les propriétés mécaniques de nanofils composés de cet alliage.

Comme les nanofils d'or présentés dans la partie 2.5, ces nanofils ont été fabriqués au GSI Helmholtz suivant le processus de synthèse détaillé dans la partie 2.3. La seule modification apportée à ce processus est à l'étape de la galvanoplastie : la solution contient à la fois $\text{KAu}(\text{CN})_2$ et $\text{KAu}(\text{CN})_2$. En changeant les proportions de chacun de ces composés, il est possible de modifier la proportion des métaux dans les nanofils synthétisés.

Concentration d'or	100%	60%	40%	30%	0%
Concentration d'argent	0%	40%	60%	70%	100%

TABLE 2.3 – Différentes proportions d'or et d'argent considérées

Les différentes compositions auxquelles on s'intéresse sont données dans le tableau 2.3. Pour chacune d'entre elles, plusieurs nanofils sont étudiés selon la méthode détaillée dans la partie 2.5. Pour chacun des fils, lorsque deux modes de respiration sont détectés, il est ainsi possible d'obtenir une vitesse longitudinale ainsi qu'une vitesse transverse du milieu que l'on considère comme homogène, et donc de l'alliage. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2.11 a). Les vitesses déterminées sur des nanofils composés uniquement d'or ou d'argent sont également présentées. Il est ainsi possible de comparer les nanofils bi-phasiques et mono-phasiques. Il est à noter que la mesure faite sur nanofil d'argent a été réalisée après la publication des résultats [27] sur un banc de mesure différent mais similaire à celui présenté en 2.4 sur un nouvel échantillon de nanofils d'argent de diamètre nominal 180 nm. Néanmoins le résultat obtenu est aussi en accord avec la littérature. De plus, cette mesure ayant été réalisée sur un banc différent par un expérimentateur différent conforte l'idée de reproductibilité de la méthode ici présentée. On notera également que seulement deux modes de respirations ont été utilisés pour ces résultats, le troisième n'étant pas toujours détectable. Les valeurs moyennes des facteurs de qualité sont également présentées sur la figure 2.11 b).

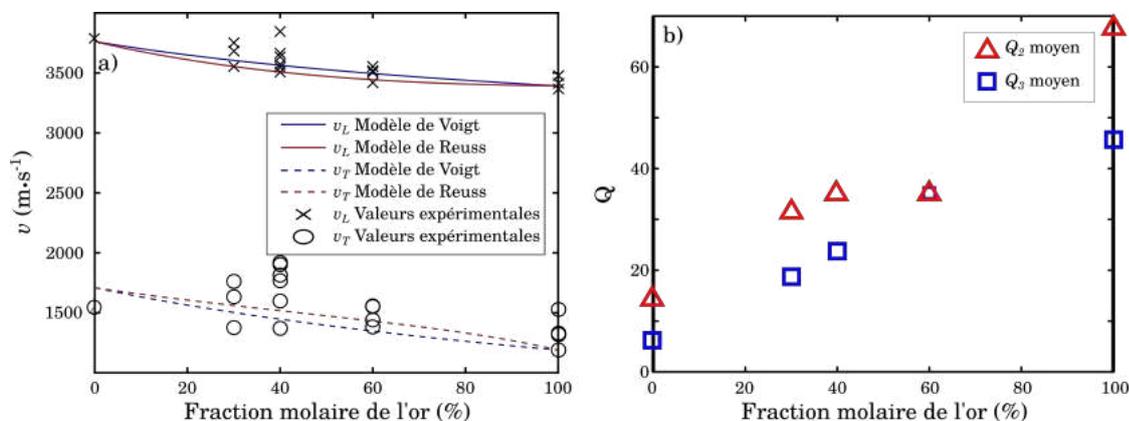


FIGURE 2.11 – a) Vitesses longitudinales et transverses mesurées pour différents nanofils présentant différentes concentrations d'or et comparées aux modèles de Reuss et Voigt b) Facteurs de qualité moyens des mesures

On observe sur la figure 2.11 a) que tant la vitesse longitudinale que la vitesse transverse semblent plus importantes pour des concentrations plus faibles en or. Des nanofils présentant une concentration importante de l'un des deux métaux de transition présentent des propriétés proches de celle de ce métal. On remarque sur la figure 2.11 b) que les facteurs de qualité décroissent à mesure que la concentration molaire des nanofils en argent augmente. Les facteurs de qualité du second mode de respiration restent néanmoins plus élevés que ceux du premier mode.

Connaissant les propriétés des métaux composant l'alliage étudié, il est possible d'utiliser des modèles d'homogénéisation afin de prédire les propriétés attendues pour les différentes proportions. S'il existe dans la littérature un grand nombre de modèles permettant d'obtenir un milieu effectif en réalisant un moyennage pondéré de ces constituants, notre choix se porte dans cette étude sur les modèles d'homogénéisation de Voigt et de Reuss. Le premier considère une contrainte homogène tandis que le second se base sur une déformation homogène. Ils peuvent être considérés comme les deux cas limites et les valeurs obtenues comme les bornes de l'intervalle de valeurs possibles. Cette considération explique leur utilisation lors de cette étude.

Le modèle d'homogénéisation de Voigt permet d'exprimer simplement les coefficients de Lamé du milieu effectif comme une moyenne des coefficients des composants pondérés par leur fraction volumique. Ainsi, on obtient les coefficients de Lamé de l'alliage λ_V et μ_V à partir de ceux de l'or λ_{Au} et μ_{Au} et de l'argent λ_{Ag} et μ_{Ag} grâce aux expressions

$$\lambda_V = p_v \lambda_{Au} + (1 - p_v) \lambda_{Ag} \quad (2.68)$$

et

$$\mu_V = p_v \mu_{Au} + (1 - p_v) \mu_{Ag} \quad (2.69)$$

où p_v correspond à la fraction volumique de l'or dans l'alliage.

On peut également exprimer le coefficient de compression isostatique du milieu effectif. En effet, celui-ci est défini à partir des coefficients de Lamé par l'équation

$$K = \lambda + \frac{2}{3} \mu. \quad (2.70)$$

On obtient alors dans le cadre de la méthode de Voigt l'expression de K_V à partir de ceux de l'or K_{Au} et de l'argent K_{Ag} à l'aide de la formule

$$K_V = p_v K_{Au} + (1 - p_v) K_{Ag}. \quad (2.71)$$

Le modèle d'homogénéisation de Reuss fournit également des expressions permettant d'obtenir les coefficients de Lamé de l'alliage, λ_R et μ_R , à partir de ceux de l'or et de l'argent connaissant leurs proportions respectives. Ces expressions s'écrivent

$$\lambda_R = \frac{1}{\frac{p_v}{\lambda_{Au}} + \frac{1-p_v}{\lambda_{Ag}}} \quad (2.72)$$

et

$$K_R = \frac{1}{\frac{p_v}{K_{Au}} + \frac{1-p_v}{K_{Ag}}}. \quad (2.73)$$

On peut également calculer la masse volumique de l'alliage pour les différentes proportions en fonctions de celles de l'or et de l'argent et des concentrations.

$$\rho_{eff} = p_v \rho_{Au} + (1 - p_v) \rho_{Ag}. \quad (2.74)$$

Connaissant cette masse effective ainsi que les paramètres mécaniques de l'alliage en tant que milieu effectif, il est alors possible de calculer les vitesses longitudinales et transverses

$$v_L = \sqrt{\frac{2\mu + \lambda}{\rho}} \quad (2.75)$$

et

$$v_T = \sqrt{\frac{\mu}{\rho}} \quad (2.76)$$

Les résultats calculés pour toutes les concentrations depuis un nanofil composé uniquement d'or jusqu'à un nanofil composé uniquement d'argent sont ajoutés aux données expérimentales en figure 2.11 a). On note tout d'abord sur celle-ci que les deux modèles d'homogénéisation fournissent des valeurs similaires. Les deux modèles trouvent bien la même valeur lorsque l'alliage ne présente qu'une seule et unique composante.

On remarque également que le modèle de Voigt prédit une vitesse longitudinale plus élevée que celle fournie par le modèle de Reuss mais une vitesse transverse plus faible. Pour des concentrations plus faibles en or, on obtient des vitesses plus élevées, comme attendu au vu des vitesses dans l'argent et l'or pur. Cette observation est cohérente avec celle faite sur les valeurs expérimentales. Les valeurs expérimentales se trouvent d'ailleurs être proches de celles fournies par les modèles, notamment lorsque la concentration en or est plus élevée du fait de la dispersion moins importante des résultats. Modèles et résultats expérimentaux présentent également un meilleur accord concernant la vitesse longitudinale que la vitesse transverse pouvant s'expliquer par la sensibilité moindre à cette dernière.

2.6.2 Évaluation des propriétés mécaniques de nanofils d'or poreux

Des nanofils d'or poreux fabriqués à partir des nanofils fait de l'alliage d'or et d'argent en retirant l'argent ont également été étudiés. Profitant d'avoir des alliages avec différentes proportions, des nanofils d'or poreux avec différentes porosités sont obtenus. La porosité ϕ est définie comme la fraction volumétrique occupée par l'argent avant que celui-ci ne soit retiré. La variation de réflectivité mesurée sur un nanofil d'or poreux présentant une porosité de $\phi = 0.6$ est introduite sur la figure 2.12 a). Celle-ci est comparée au signal obtenu sur un nanofil composé d'un alliage formé à 60% d'argent et 40% d'or.

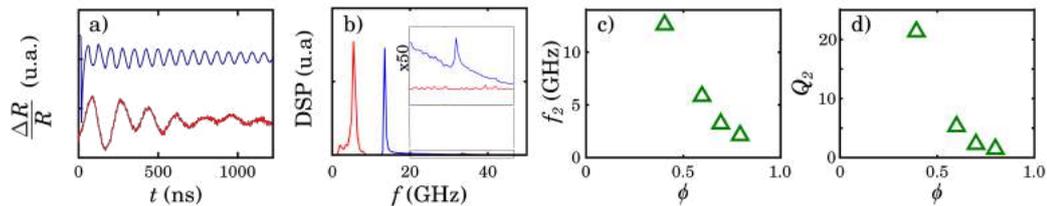


FIGURE 2.12 – a) Comparaison des signaux obtenus sur un nanofil fait d'un alliage composé à 40% d'or et 60% d'argent (bleu) et d'un nanofil poreux (rouge) présentant une porosité de $\phi = 0.6$. b) Spectres normalisés des signaux présentés en a) présentant $f_2 = 13.5$ GHz et $Q_2 = 24$ dans le cas du fil fait d'un alliage et $f_2 = 5.5$ GHz et $Q_2 = 6$ pour un nanofil poreux. c) Fréquence moyenne et d) facteur de qualité moyen du premier mode de respiration de nanofils poreux en fonction de la porosité.

On note sur la figure 2.12 a) que la variation de réflectivité mesurée sur le nanofil poreux présente des oscillations avec une période plus faible et avec une amplitude décroissant plus rapidement. Les spectres de ces signaux, présentés sur la figure 2.12 b), mettent effectivement en évidence que la fréquence du premier mode de respiration est plus faible pour le nanofil poreux, à 5.5 GHz, que sur celle mesurée pour le nanofil composé d'un alliage, 13.5 GHz. On note également que le second mode de respiration n'est pas détecté sur le nanofil poreux. Il n'est donc pas possible de déterminer les vitesses pour le milieu homogène correspondant au nanofil poreux.

On observe sur la figure 2.12 c) que la fréquence du premier mode de respiration diminue à mesure que la porosité augmente. Sachant que la masse du nanofil diminue avec une porosité qui augmente, on peut interpréter l'évolution de cette fréquence par une baisse importante de la rigidité du fil. Comme mis en évidence sur la figure 2.12 d), le facteur de qualité moyen du premier mode de respiration diminue également à mesure que la porosité augmente. La surface totale du nanofil étant plus importante pour une porosité élevée, les pertes sont plus importantes, expliquant ces facteurs de qualité bas.

2.7 Utilisation d'une couverture d'aluminium

La méthode inverse présentée au cours de ce chapitre permet de déterminer avec une bonne efficacité les propriétés élastiques d'un nanofil unique métallique avec une section circulaire. Elle présente toutefois quelques limites. Il est nécessaire que le(s) matériau(x) composant(s) le nanofil interagisse(nt) avec la lumière, que ce soit pour absorber le faisceau pompe mais aussi réfléchir le faisceau sonde. De plus, la génération, et la détection, des modes de respiration ne permet pas à elle seule de caractériser simultanément toutes les composantes élastiques de systèmes plus compliqués tels que des systèmes anisotropes présentant plus de constantes élastiques. Certains matériaux s'avèrent également particulièrement sensibles et fragiles lorsqu'ils sont directement exposés et chauffés par des faisceaux lasers. Il est alors difficile de pouvoir étudier les nanoparticules composées de ces matériaux à l'aide de techniques pompe-sonde.

Certaines de ces limites peuvent être compensées en appliquant une fine couche d'un matériau avec les propriétés appropriées à la surface du nanofil étudié. Au travers de trois exemples, on présente ici que l'application d'une fine couche d'aluminium sur des nanofils permet en effet de surpasser certaines limites et ouvre la voie à une application plus large de cette méthode.

2.7.1 Application à un nanofil d'or

On s'intéresse dans un premier temps à l'influence de la couche d'aluminium sur des nanofils d'or de diamètre nominal de 200 nm. Au cours de la partie 2.6, on a montré que la spectroscopie pompe-sonde permet d'exciter et de détecter principalement les modes de respirations de nanofils composés d'or. Si la détection de plusieurs de ces modes permet de remonter aux propriétés du matériau, la détection de modes supplémentaires permet d'améliorer les résultats comme montré dans la partie 2.5. Du fait des propriétés de l'or, en particulier de sa grande diffusivité thermique et électronique, l'excitation se produit dans toute la section. En recouvrant un nanofil d'une couche d'aluminium, on cherche à exciter le fil seulement en surface en espérant que cela permettrait d'exciter d'autres modes que les modes de respiration.

Une couche d'aluminium de 35 nm d'épaisseur est ainsi déposée sur l'intégralité d'un échantillon pré-structuré présentant des nanofils d'or. Cette épaisseur, de l'ordre de plusieurs fois la longueur de pénétration δ_p de la lumière visible dans l'aluminium, rappelée en annexe C, permet de s'assurer que les nanofils d'or ne sont excités qu'en surface. L'épaisseur de la couche d'aluminium est vérifiée expérimentalement en réalisant une mesure de temps de vol dans la couche d'aluminium.

La figure 2.13 a) présente la variation de réflectivité mesurée sur un nanofil d'or recouvert d'aluminium ainsi que la densité spectrale de puissance de ce signal en encadré. L'image obtenue au microscope électronique à balayage d'un tel fil suspendu au-dessus d'une tranchée est présentée sur la figure 2.13 b). Ce signal est similaire à ceux que l'on peut mesurer sur un nanofil sans la couverture d'aluminium : on observe, après la coïncidence identifiée à 24 ps, des oscillations qui, profitant de la pré-structuration du substrat, durent plus d'une nanoseconde. La densité spectrale de puissance de ce signal met en avant une composante principale à 12.7 GHz qu'il est possible d'identifier comme correspondant au premier mode de respiration du nanofil. En utilisant Comsol, il est également possible d'identifier le second mode de respiration à 28.7 GHz mais celui-ci sort difficilement du bruit du spectre. La valeur calculée du facteur de qualité du premier mode de respiration sur ce nanofil est de 57, soit plus faible que celles obtenues sur des nanofils non recouvert d'aluminium et ce même en profitant de l'effet des tranchées. Pour ce cas particulier de nanofils d'or, les résultats obtenus sont moins bons en l'absence de la couche d'aluminium. Cela peut s'expliquer par la différence entre les propriétés optiques des deux métaux, détaillées dans l'annexe C.

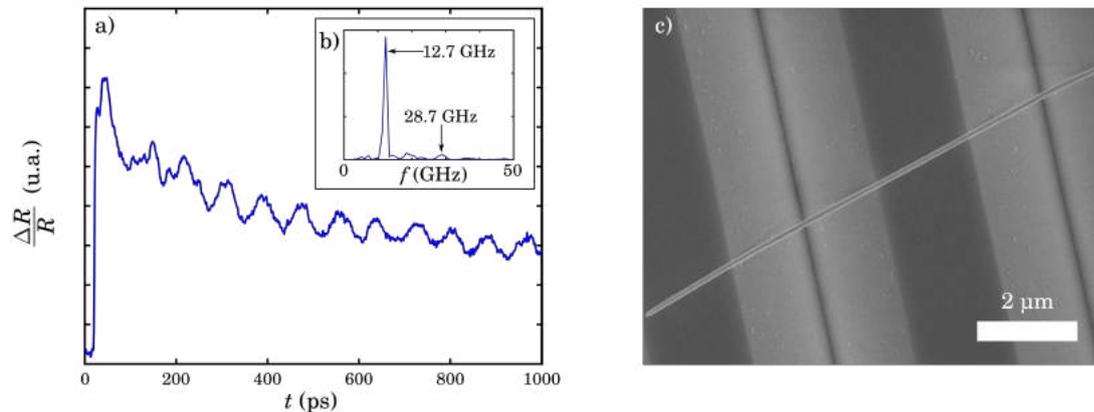


FIGURE 2.13 – a) Variation de réflectivité mesurée sur un nanofil d'or de diamètre nominal de 200 nm recouvert de 35 nm d'aluminium. b) DSP des oscillations mesurées présentant deux composantes à 12.7 et 28.7 GHz correspondant aux deux premiers modes de respiration du nanofil. c) Image obtenue au MEB d'un nanofil d'or de 200 nm de diamètre recouvert de 35 nm d'aluminium.

Si la présence d'une couche d'aluminium sur le nanofil d'or n'empêche donc pas de détecter les modes de respiration du nanofil d'or, il est important de s'intéresser à l'invasivité de celle-ci. On étudie pour cela l'impact de la couche d'aluminium sur la fréquence des modes du fil à l'aide de simulations par éléments finis en utilisant Comsol. On s'intéresse dans un premier temps à la façon dont l'aluminium se dépose sur le fil. Deux géométries sont considérées et représentées sur la figure 2.14 : soit un dépôt de hauteur uniforme h_{Al} sur la moitié supérieure du fil, soit plus graduel avec une valeur de h_{Al} uniquement au centre. À l'aide de simulations par éléments finis réalisées grâce au logiciel Comsol, on relève la fréquence du premier mode de respiration pour chacun de ces cas ainsi que pour un fil non recouvert par l'aluminium.

Si on prend le cas d'un nanofil d'or d'un rayon de 104.4 nm, en l'absence de la couche d'aluminium, on relève la fréquence du premier mode de respiration à 12.79 GHz. Néanmoins, pour les deux fils de même rayon mais recouverts par 35 nm d'aluminium, on note des fréquences de 12.69 et 12.67 GHz respectivement pour ce même mode. Pour les deux géométries, la présence d'aluminium a pour conséquence une baisse de la fréquence du premier mode de respiration. Considérant que l'on ajoute de la matière au nanofil, cette variation était attendue. Toutefois, on note au travers de ces deux exemples que la façon dont l'aluminium se dépose précisément et recouvre le fil n'a que peu d'importance. Les quantités d'aluminium ajoutées sur le nanofil

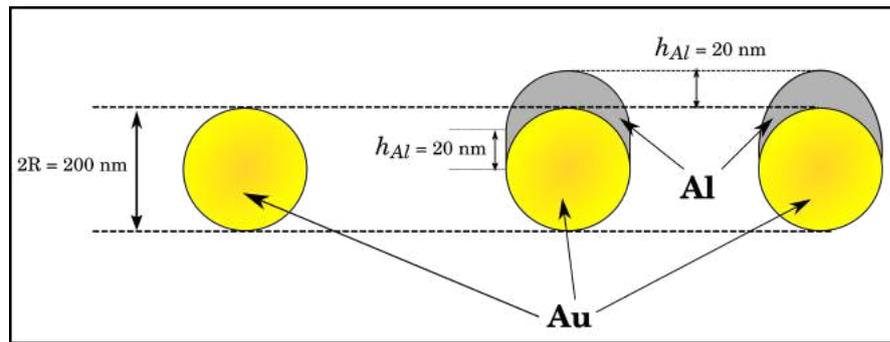


FIGURE 2.14 – Géométries des dépôts de la couche d'aluminium considérées : à gauche la section du nanofil sans couverture d'aluminium, au centre la section du nanofil recouvert d'une couche uniforme, à droite la section du nanofil recouvert d'une couche graduelle

étant peu différentes entre les deux géométries, aucun changement important n'était attendu.

On peut également s'intéresser à l'influence de l'épaisseur de la couche d'aluminium. On réalise pour cela une analyse paramétrique au sein du module Fréquences Propres du logiciel Comsol. On considère comme variable paramétrique l'épaisseur de la couche d'aluminium h_{Al} que l'on fait varier entre 1 et 100 nm par pas de 1 nm. Les fréquences des modes propres du fil recouvert sont relevées pour chacune de ces épaisseurs. Les figures 2.15 présentent l'évolution relative des fréquences des deux premiers modes de respiration ainsi que du mode quadripolaire.

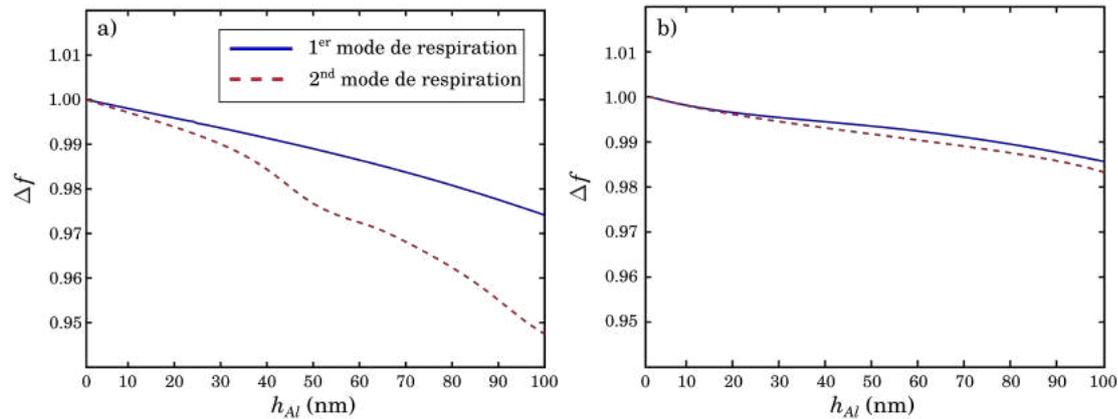


FIGURE 2.15 – Evolution relative des fréquences des modes a) de respiration et b) quadripolaire calculés par simulation par éléments finis en fonction de l'épaisseur d'une couche d'aluminium déposée sur le fil.

Dans le cas du mode quadripolaire du fil, on remarque tout d'abord la dissociation de ce mode en deux. Le dépôt de la couche d'aluminium seulement sur une partie du nanofil vient en effet briser la symétrie autour de l'axe du fil. Pour une épaisseur d'aluminium importante, deux modes peuvent alors correspondre au mode quadripolaire d'un nanofil sans aluminium. On note néanmoins que les fréquences de ces modes diminuent peu avec l'augmentation de l'épaisseur de l'aluminium, ne diminuant que d'environ 1.5%. Ces modes s'avèrent peu sensibles à la présence de la couche de métal supplémentaire. D'après la figure 2.15 a), celle-ci a néanmoins une influence un peu plus importante sur les modes de respirations. On remarque en effet, que les fréquences des deux premiers modes de respirations sont plus faibles pour des couches d'aluminium plus importantes. Le second mode de respiration semble d'ailleurs être relativement plus affecté. Les baisses des fréquences restent toutefois assez faibles puisqu'elles ne sont de l'ordre que de 3% et 5% pour une couche d'aluminium de 100 nm, soit aussi importante que le rayon du fil.

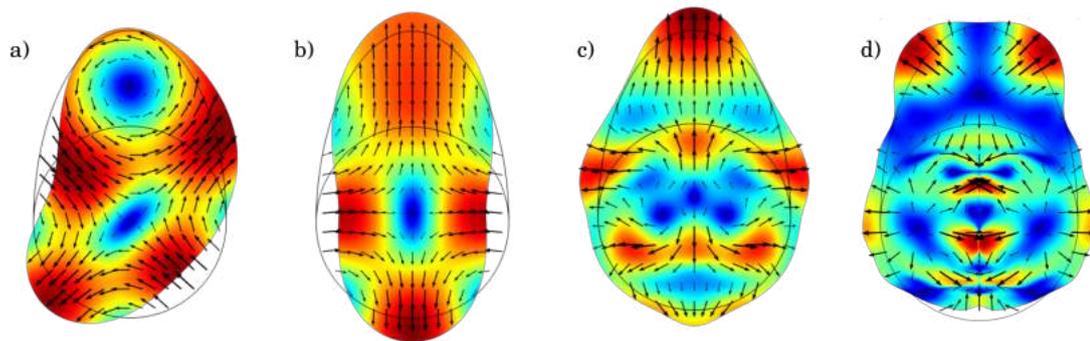


FIGURE 2.16 – Déformées modales calculées pour un nanofil d'or de 200 nm de diamètre recouvert graduellement de 100 nm d'aluminium des a) et b) deux modes quadripolaires ,c) du premier mode de respiration et d) du second mode de respiration

La présence d'une couche d'aluminium sur un nanofil d'or a pour conséquence une baisse des fréquences de ses modes de respiration. Cette baisse est néanmoins assez faible même pour des couches de hauteur importante au regard des dimensions du fil. Si l'on considère la section d'un nanofil recouvert par une couche d'aluminium de 50 nm, la surface de l'aluminium ne présente que 25% de celle de l'or. De plus, si or et aluminium présentent des propriétés élastiques (module d'Young et coefficient de Poisson) similaires, voir Annexe B, ce dernier a une masse volumique plus de sept fois inférieure au premier. Par conséquent, l'ajout d'une fine couche d'aluminium sur un nanofil d'or correspondant à un ajout de masse ramenée à celle du nanofil assez faible.

Le dépôt d'une couche d'aluminium sur un nanofil d'or n'a pas permis la génération et la détection de modes supplémentaires. Toutefois, en raison de sa faible influence sur les modes d'un nanofil, on propose de l'utiliser pour des nanofils composés d'autres matériaux.

2.7.2 Couche protectrice d'un nanofil de bismuth

Le bismuth est un métal particulièrement intéressant pour les applications en thermoélectricité [67] mais qui s'avère également être très fragile, en témoigne sa température de fusion faible de 270.1°C et sa conductivité thermique faible de 7.87 W m⁻¹ K. Pour cette raison, l'étude de nanofils de bismuth à l'aide de techniques pompe-sonde est particulièrement difficile, les nanofils pouvant être facilement abîmés. L'étude de nanofils de bismuth synthétisés de manière similaire à celle utilisée pour les nanofils d'or et d'argent présentée dans la partie 2.3 a été essayée à plusieurs reprises à l'INSP au cours des dernières années par différents opérateurs mais avec très peu de succès. Le meilleur signal mesuré sur un nanofil de bismuth est présenté sur la

figure 2.17 a).

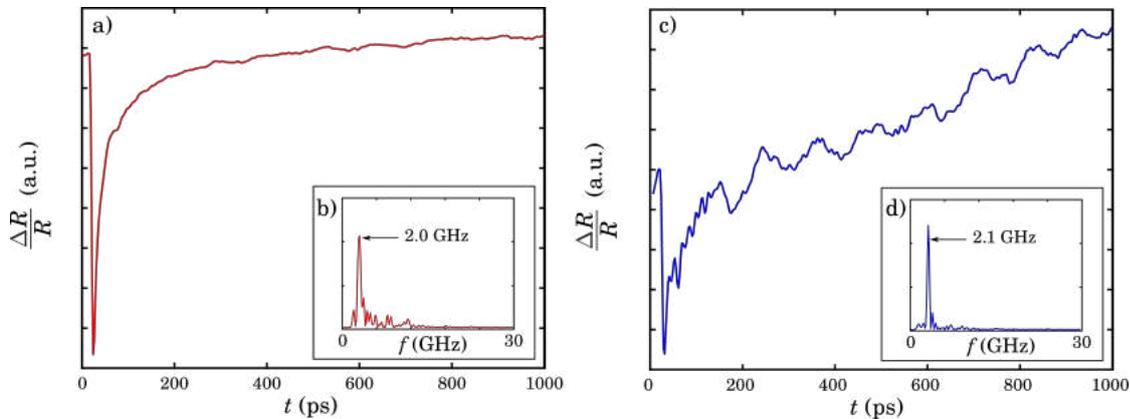


FIGURE 2.17 – Variations de réflectivité mesurées sur un nanofil de Bismuth a) seul et d) en présence d'une couverture de 40 nm d'aluminium. Les DSP des oscillations extraites des signaux a) et d) sont présentées sur les figures c) et d) mettant en avant chacun une composante respectivement à 2.0 et 2.1 GHz.

Si au premier abord, celui-ci ne semble présenter que la réponse thermique du bismuth, le traitement de ce signal permet d'extraire des oscillations d'amplitudes très faibles devant la coïncidence. Le spectre du signal traité, présenté en encadré sur la figure 2.17 a), met en évidence la présence d'une composante de fréquence 2.0 GHz et de facteur de qualité 4.86. Le signal est trop bruité pour être simplement reconstruit.

Une couche d'aluminium d'une épaisseur de 40 nm est déposée sur l'échantillon. Le signal typique qu'il est alors possible de mesurer sur un nanofil est représenté sur la figure 2.17 d). Les oscillations sont cette fois-ci clairement distinguables. Le spectre de ce signal relève une composante principale à 2.1 GHz et dont le facteur de qualité est de 7.13.

Comme pour les nanofils précédents, il est possible de s'intéresser aux modes propres de ces fils de bismuth en réalisant des simulations par éléments finis à l'aide du logiciel Comsol. Via le module Fréquence Propre, on simule les modes radiaux d'un fil de bismuth de 325 nm de rayon. On retrouve alors le premier mode de respiration du fil à 2.22 GHz. La fréquence de ce mode varie peu si l'on simule maintenant le fil partiellement recouvert d'aluminium, s'expliquant notamment par la finesse de cette couche par rapport à taille du fil. La différence entre la fréquence obtenue par simulation et celles mesurées expérimentalement s'explique par la variation de taille des différents fils. La fréquence du seconde mode respiration peut être identifiée

à 5.56 GHz. Une composante peut être devinée autour de cette fréquence sur les spectres 2.17 a) et b) mais nécessiterait une étude plus approfondie.

Pour conclure, un signal typique mesuré sur un fil de bismuth recouvert d'aluminium permet de retrouver les mêmes informations que le meilleur des signaux mesuré sans la couche d'aluminium. Néanmoins, en l'absence d'aluminium de très nombreux fils ont été abîmés pour obtenir assez peu de résultat quantitatif. L'utilisation d'une couche d'aluminium permet d'obtenir les mêmes résultats mais sans les pertes d'échantillons. Cela ouvre donc la possibilité de réaliser des études poussées sur des nanofils composés de bismuth par des techniques pompe-sonde.

2.7.3 Étude des modes propres d'un nanofil de nitrure de gallium

Le nitrure de gallium, ou GaN, est un semi-conducteur binaire qui, une fois dopé, est largement utilisé dans l'industrie. Son utilisation a notamment permis la réalisation de diodes électroluminescentes bleues. Ce composé trouve de nombreuses autres applications depuis les panneaux solaires jusqu'aux sources lasers lorsqu'il est sous la forme de nanofils.

Quelques études se sont intéressées aux propriétés mécaniques et élastiques soit d'un nanofil unique [68] soit de structures fabriquées à partir de tels nanofils [69]. Toutefois, les méthodes utilisées nécessitent des techniques difficiles et potentiellement coûteuses à mettre en place ou simplement ne permettent pas l'étude d'un nanofil unique. La technique inverse permet donc d'aller outre ces limites.

Les nanofils utilisés lors de cette étude ont été obtenus par croissance sur un substrat de saphir selon leur axe de cristallographie (0001). Ces nanofils ne présentent pas une section circulaire mais hexagonale. Comme pour les nanofils d'or et de bismuth, une fine couche d'aluminium est déposée par évaporation thermique sur toute la surface de l'échantillon. Les nanofils de GaN sont donc partiellement recouverts. Une image obtenue au microscope électronique à balayage d'un nanofil est présentée sur la figure 2.18 b).

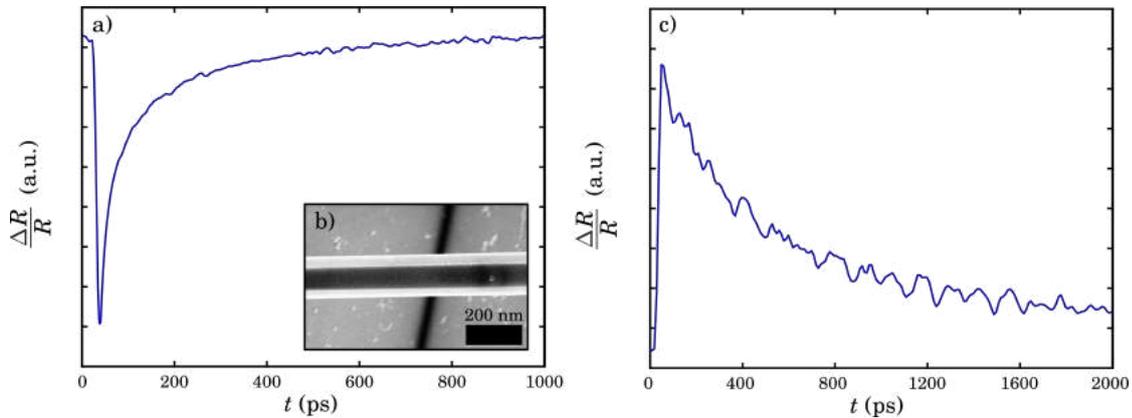


FIGURE 2.18 – Variations de réflectivité mesurées sur un nanofil de GaN a) seul et c) en présence d'une couverture de 40 nm d'aluminium. b) Image obtenue au MEB d'un nanofil de GaN d'un diamètre de 742 nm suspendu au-dessus d'une tranchée.

Une mesure réalisée sur un nanofil de GaN avant d'être recouvert d'aluminium est présentée sur la figure 2.18 a). On peut y observer une coïncidence à 36 ps ainsi qu'une décroissance d'origine thermique mais pas d'oscillation. En effet, le nitrure de gallium a la particularité d'être complètement transparent aux longueurs d'ondes du domaine visible. Ce semi-conducteur présente en effet un gap direct de 3.43 eV. Le faisceau pompe n'est donc pas absorbé et le nanofil n'est pas excité. Le faisceau sonde quant à lui n'est pas perturbé par de possibles oscillations du nanofil. Le signal observé est donc causé par le substrat de silicium au fond de la tranchée.

Néanmoins, lorsque l'on recouvre l'échantillon d'aluminium, il est possible de mesurer des oscillations dues aux vibrations du fil lui-même. La figure 2.18 c) présente en effet une mesure réalisée sur le fil visible. Cette fois, on y observe une composante thermique différente, et surtout des oscillations. Du fait de l'absorption par la couche d'aluminium du faisceau pompe, le nanofil a pu être mis en excitation par le processus opto-thermo-élastique. De plus, la couche d'aluminium réfléchit, au moins partiellement le faisceau sonde. Et comme pour les nanofils métalliques, la réflectance varie lorsque le nanofil vibre selon ses modes propres.

On observe sur le spectre du signal 2.18 c), représenté sur la figure 2.19 a), différentes composantes, chacune d'entre elle correspondant à un mode du nanofil. Ces nanofils présentant une section hexagonale et non circulaire, un plus grand nombre de mode sont susceptibles d'être excités et détectés. Comme pour les autres fils présentés au cours de ce chapitre, il est possible d'utiliser des simulations par éléments finis pour étudier les modes d'un fil de GaN et identifier

les différentes composantes du spectre 2.19 a).

Le GaN, contrairement aux matériaux des fils étudiés précédemment, est un matériau anisotrope. On utilise pour simuler les modes du fil le tenseur des rigidités du GaN s'exprimant

$$C_{GaN} = \begin{pmatrix} c_{11} = 390 & c_{12} = 145 & c_{13} = 106 & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} = 145 & c_{11} = 390 & c_{13} = 106 & 0 & 0 & 0 \\ c_{13} = 106 & c_{13} = 106 & c_{33} = 398 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} = 105 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} = 105 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{66} = 123 \end{pmatrix} \text{ GPa. (2.77)}$$

Grâce à ces simulations, on peut ainsi trouver un mode dont la fréquence est proche de 7.1 GHz et qui peut donc être raisonnablement associé à la principale composante visible sur le spectre 2.19 a). La déformée modale de ce mode est représentée sur la figure 2.19 b) On ignore néanmoins sur quelle face l'aluminium a été déposé, ce qui est une source d'incertitudes. Toutefois, l'influence de la couche d'aluminium, quelques soient les surfaces sur lesquelles elle est déposée, est très faible du fait de son épaisseur très faible devant les dimensions du fil.

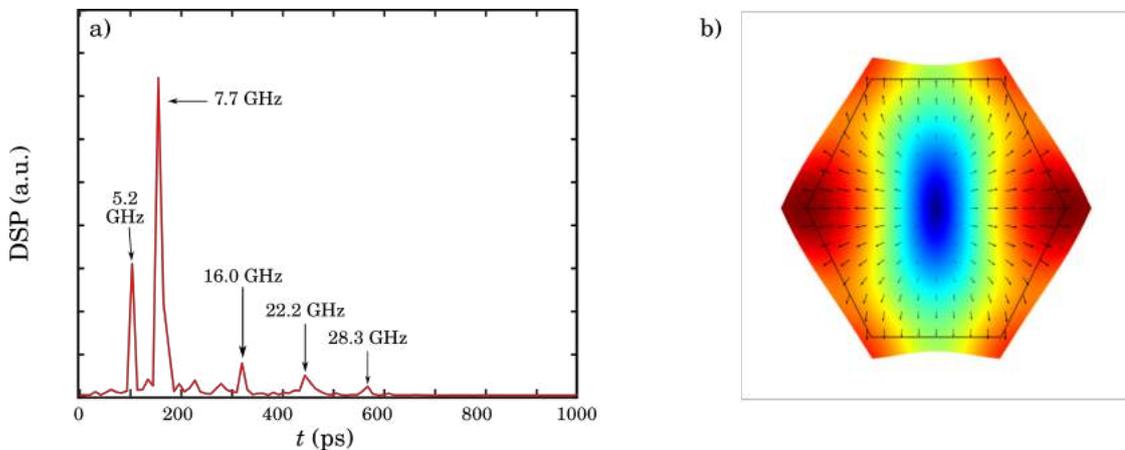


FIGURE 2.19 – a) DSP des oscillations extraites du signal introduit sur la figure 2.18 c) et présentant différentes composantes correspondant aux modes du fil. Celles-ci peuvent être excitées et détectées grâce à la présence de la couche d'aluminium. b) Déformée modale obtenue par simulation par élément finis du mode pouvant être identifié sur la composante à 7.7 GHz sur le spectre en a).

2.8 Conclusion

On a présenté au cours de ce chapitre une méthode inverse permettant de réaliser une évaluation élastique complète d'un nanofil unique. En identifiant les fréquences des modes de respiration d'un nanofil unique par une technique pompe-sonde d'acoustique picoseconde et connaissant le diamètre du fil et la masse volumique du matériau le composant, il est en effet possible d'utiliser l'équation de Pochhammer-Chree afin de déterminer la vitesse longitudinale mais également la vitesse transverse dans ce milieu.

Cette méthode a été présentée au travers d'une application à un nanofil d'or. Le module d'Young et le coefficient de Poisson de ce métal ont ainsi pu être retrouvés expérimentalement. Cette technique a ensuite été utilisée sur des nanofils composés d'alliages d'or et d'argent pour différentes proportions. Les propriétés élastiques pour chacune d'entre elles ont pu être extraites et comparées à des résultats prédits par les modèles d'homogénéisation de Voigt et de Reuss. Les résultats partiels obtenus dans le suivi en température des propriétés de l'or en fonction de la température présentés dans l'annexe A montrent également le potentiel de cette technique de mesure.

Enfin, il a été mis en avant que le dépôt d'une fine couche métallique, dans notre cas d'aluminium, permettait d'utiliser cette méthode sur des nanofils composés de matériaux soit fragiles comme le bismuth soit ne réagissant pas avec la lumière dans le spectre du visible comme le GaN. Le choix de l'aluminium pour le dépôt de la couche n'étant pas fixé, ce procédé pourrait être optimisé afin de choisir des matériaux présentant les propriétés optiques, thermiques ou massiques souhaitées. De plus, il serait intéressant d'essayer de structurer la couche d'aluminium afin de n'exciter que certains modes d'un nanofil. Cela pourrait être particulièrement utile pour des nanofils tels que ceux en GaN pour lesquels de nombreux modes sont détectés.

Il a été démontré dans une précédente étude la possibilité d'utiliser des nanofils comme sources acoustiques [35]. Dans cet objectif, l'identification des propriétés élastiques de ces nanofils est importante puisqu'elles déterminent les caractéristiques des vibrations du fil et donc des ondes générées. Toutefois, afin de développer des systèmes utilisant de telles nanoparticules comme sources, il est important de s'intéresser à l'influence du substrat avec lequel la particule est en contact sur ces modes de vibrations. Cette problématique est particulièrement compliquée pour le cas d'un nanofil dont la surface de contact avec le substrat est incertaine. De plus, une étude récente a mis en avant le besoin de prendre en compte tous les possibles effets de surface du

nanofil dès lors que l'on considère l'interaction particule-substrat [70]. Enfin, l'utilisation de telles nanoparticules dans le cadre de techniques d'imagerie acoustique reste limitée puisque la position des nanofils n'est pas maîtrisée et peut difficilement être modifiée. Au cours du chapitre 3, on présente les résultats obtenus dans le cadre d'une étude vibrationnelle sur une structure composée d'un disque d'or d'épaisseur nanométrique partiellement supporté par un cône de silicium. Ce type de structure présente l'avantage que sa position sur l'échantillon est maîtrisée et la zone de contact entre le disque et le substrat peut facilement être modifiée afin d'étudier l'interaction et l'influence de la taille de celle-ci.

Chapitre 3

Etude vibrationnelle d'un disque d'or

3.1 Intérêt des disques pour étudier l'interaction substrat-particule

La maîtrise de la génération d'ondes acoustiques à l'aide d'une nanoparticule nécessite une connaissance de ses caractéristiques - taille, forme, propriétés. Sa caractérisation peut être réalisée grâce à de nombreuses techniques, telle que celle présentée dans le chapitre 2. Il est également nécessaire de connaître le couplage entre la particule et son environnement.

Ces dernières années, l'interaction entre une nanoparticule et le substrat sur lequel elle repose a été le sujet de différentes études. Ces travaux ont été réalisés pour des nanofils [35], des nanosphères [30, 71] ou encore des nanobâtonnets [72]. Néanmoins, pour de telles nanoparticules, la surface de contact entre celles-ci et leur substrat peut être compliquée à déterminer. Or, cette surface correspond à la surface d'émission et définit donc la taille réelle de la source. Elle joue donc un rôle important dans le processus de génération. De plus, dans de nombreux cas, il n'est pas possible de décider exactement de la position des particules sur une surface. Comme les nanofils étudiés dans le chapitre 2, les particules sont généralement contenues dans une solution. Une goutte de celle-ci est déposée sur la surface désirée avant d'être laissée à sécher résultant en une disposition quasiment aléatoire des particules.

Au cours de l'étude présentée dans ce chapitre, on s'intéresse à l'interaction entre un nano-objet et son substrat. Le choix du nano-objet s'est porté sur un disque d'or d'épaisseur nanométrique.

Cette forme permet en effet d'identifier facilement la surface du contact entre objet et substrat puisqu'elle correspond à la surface circulaire du disque. De plus, elle peut être modulée en réalisant une gravure chimique du substrat. On peut donc étudier le comportement d'un objet pour différentes surfaces de contact. Enfin, le disque étant directement synthétisé sur le substrat de silicium, sa position est également maîtrisée.

Les vibrations de tels disques ont été le sujet de différentes études [31, 73, 32, 74, 75]. Toutefois, celles-ci se sont principalement intéressées à l'évolution de leurs modes en fonction des propriétés intrinsèques des disques : leur rapport de forme [31, 32], de la couche métallique d'adhésion utilisée [74] ou encore de leur cristallinité [75]. La possibilité d'utiliser des nanodisques d'or comme source d'ondes transverses monochromatiques a également été mise en avant au cours d'une précédente étude du groupe [31]. L'étude réalisée et présentée ici s'intéressant notamment à la surface de contact avec le substrat se trouve donc être complémentaire à ces travaux.

Au-delà de l'intérêt qu'on leur trouve ici pour l'étude de l'interaction avec le substrat, de tels disques trouvent de nombreuses applications notamment du fait de leurs propriétés plasmoniques [76, 77] ou optomécaniques [78, 79, 80, 81, 82]. L'étude de leurs vibrations s'avère donc particulièrement pertinente.

3.2 Synthétisation des disques d'or

Les disques utilisés lors de cette étude ont été synthétisés au sein de la salle blanche de l'INSP. Les principales étapes de fabrication de ces échantillons sont décrites au sein de cette partie.

3.2.1 Fabrication des disques

Les microdisques d'or sont synthétisés sur un substrat de silicium. Pour cela, on utilise un wafer de silicium du commerce orienté [001] selon la normale à son plan. Tout d'abord, une couche de primer d'adhésion est déposée de manière homogène sur toute la surface du silicium par enduction centrifuge. Une couche de résine est ensuite déposée en utilisant la même technique. Un premier recuit du wafer ainsi recouvert permet d'éliminer les restes de solvant et de sécher la résine.

La résine utilisée est une résine photosensible, ce qui permet la structuration de la couche déposée sur le wafer. Pour cela, le wafer est insolé par lithographie laser selon un réseau de disques de $3.4\ \mu\text{m}$ de diamètre et espacés les uns des autres de $20\ \mu\text{m}$. Après un recuit d'inversion, le wafer est plongé dans une solution de développement. Grâce à l'étape de recuit, seules les parties de la membrane exposées à la lumière sont solubles dans cette solution et se retrouvent dissoutes.

On obtient donc sur le wafer de silicium une couche de résine percée par un réseau de trous de $3.4\ \mu\text{m}$ de diamètre espacés les uns des autres de $20\ \mu\text{m}$. Une couche de $10\ \text{nm}$ de chrome est ensuite déposée par évaporation thermique sur toute la surface ainsi qu'une couche d'or de $100\ \text{nm}$ d'épaisseur. La couche de chrome permet d'améliorer l'adhérence de l'or sur le silicium.

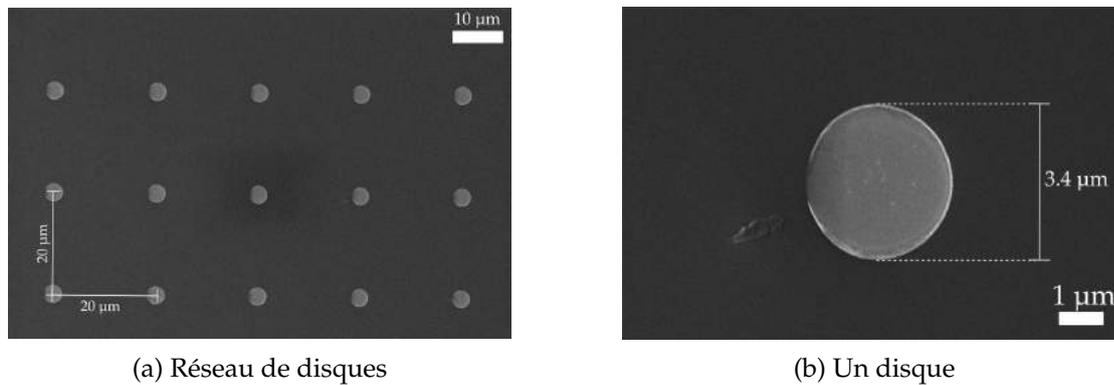


FIGURE 3.1 – Images obtenues au M.E.B. (a) du réseau de disques synthétisés et (b) de l'un de ces disques

La fin du lift-off est effectuée en plongeant le wafer dans un bain d'acétone. Cela a pour effet de dissoudre la résine encore présente sur le wafer. Le chrome et l'or supportés par la résine sont également retirés. Il reste alors sur le wafer de silicium un réseau de disques d'or de $3.4\ \mu\text{m}$ de diamètre espacés les uns des autres de $20\ \mu\text{m}$. Les figures 3.1a et 3.1b présentent respectivement des images du réseau et d'un disque obtenues au M.E.B.

Les disques obtenus sont caractérisés par leur hauteur $h_D = 100\ \text{nm}$ et leur diamètre $D_D = 3.4\ \mu\text{m}$, ou leur rayon $r_D = 1.7\ \mu\text{m}$. Il est possible de calculer leur rapport de forme η

$$\eta = \frac{D}{h} = 34. \quad (3.1)$$

Ce rapport de forme est beaucoup plus important que ceux considérés dans [32]. Le choix d'une épaisseur de 100 nm permet de garantir une absorption importante des impulsions du faisceau pompe. En effet, cette épaisseur est grande devant la longueur de pénétration de la lumière à 800 nm dans l'or $\delta_p = 12 \mu\text{m}$. On évite ainsi que le silicium ne soit excité par l'impulsion pompe. Cette précaution est notamment importante lorsque l'on s'intéresse à la génération d'ondes par le disque. De plus, cette épaisseur garanti une certaine rigidité au disque d'or évitant qu'il ne s'affaisse sur le cône le supportant lors de la gravure du silicium.

3.2.2 Sous-gravure des disques

Au cours de cette étude, on s'intéresse notamment à l'influence du substrat sur les modes observables des disques. On souhaite pour cela obtenir des disques partiellement auto-suspendus de manière analogue à ce qui a été présenté dans le chapitre 2. De tels échantillons sont obtenus en sous-gravant les disques, en retirant à l'aide d'une gravure chimique humide une partie du substrat de silicium.

On utilise, pour réaliser cette gravure, un mélange d'acide nitrique HNO_3 , d'acide phosphorique H_3PO_4 et d'acide fluorhydrique HF . Ce mélange a la particularité de graver le silicium de manière isotrope, à la différence de l'hydroxyde de potassium KOH utilisé pour la gravure des tranchées dans la partie 2.3.2. Les échantillons de silicium présentant des disques sont plongés dans ce mélange. Tel que schématisé sur la figure 3.2, ce dernier attaque tout d'abord le silicium sur la surface non-protégée par les disques. Puis, à mesure qu'il grave le wafer, il va également attaquer le silicium sous les disques. En plongeant quelques secondes nos échantillons, on obtient ainsi un réseau de disques d'or supportés en leur centre par un cône de silicium.

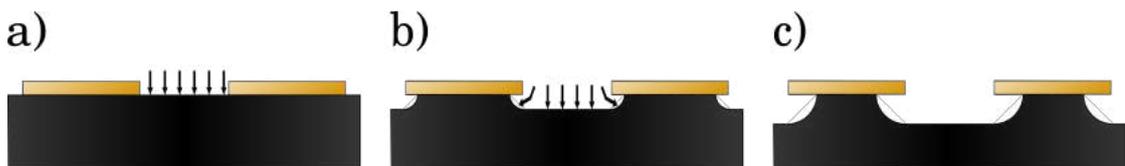


FIGURE 3.2 – a) Le mélange d'acide attaque le silicium entre les disques. b) Le mélange grave le silicium sous les disques. c) L'échantillon obtenu présente des disques soutenus par des cônes de silicium.

La hauteur du cône ainsi que sa surface supérieure, qui correspond à la surface de contact entre l'or et le silicium, peuvent être modifiées en modifiant le temps de gravure. Des images obtenues au MEB de deux échantillons sont présentées sur les figures 3.3. Ces échantillons ont été obtenus pour deux temps de gravure différents et présentent donc des gravures différentes. Chaque disque partiellement auto-suspendu peut être caractérisé par son rayon de gravure r_G . Cette grandeur définit la proportion du rayon du disque n'étant plus en contact avec le silicium après la gravure et sa valeur est donc comprise dans l'intervalle $[0, r_D = 1.7 \mu\text{m}]$. De façon similaire, on définit le rayon de contact r_C correspondant au rayon de la surface supérieure du cône et caractérisant la surface de contact entre le disque et le silicium. Ces deux grandeurs sont liées au rayon du disque r_D par la simple relation $r_D = r_C + r_G$.

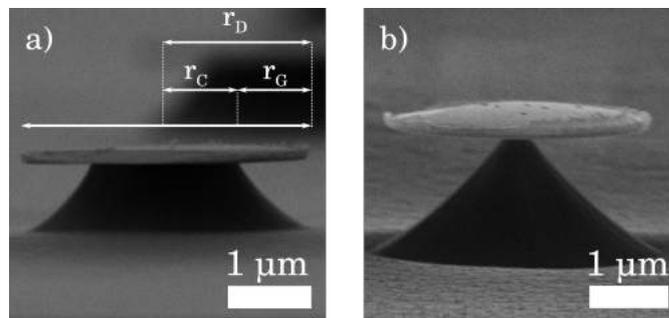


FIGURE 3.3 – Images obtenues au MEB de disques sous-gravés présentant des rayons de gravure respectivement de a) $0.8 \mu\text{m}$ et b) $1.5 \mu\text{m}$.

3.3 Montages expérimentaux

Afin de réaliser l'étude des modes propres de disques d'or, deux montages expérimentaux pompe-sonde sont utilisés. Ceux-ci se distinguent de celui utilisé pour l'étude des nanofils décrit dans la partie 2.4 par l'absence du microscope Olympus et l'ajout d'un interféromètre de Michelson. Celui-ci permet d'améliorer la sensibilité des mesures au déplacement normal au niveau de la surface éclairée par le faisceau sonde.

Le principal montage utilisé est schématisé sur la figure 3.4 et présente une géométrie en réflexion. La longueur d'onde du faisceau pompe est amenée à 400 nm à l'aide du cristal non-linéaire. On laisse la longueur d'onde du faisceau sonde à 800 nm .

Après avoir été retardé par la ligne à retard, le faisceau sonde est divisé en deux à l'aide d'un cube séparateur de polarisation, chaque nouveau faisceau représente l'un des bras de l'interféromètre. Sur le bras de référence, le faisceau est réfléchi par un miroir mobile. Le faisceau sur le bras de mesure est dirigé vers l'échantillon. Il est aligné avec le faisceau pompe à l'aide d'un filtre dichroïque avant qu'ils ne soient focalisés sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de grossissement 100 et d'ouverture numérique 0.95. La taille des faisceaux pompe et sonde à $1/e^2$ peuvent être estimées respectivement à environ 0.5 et 1.0 μm . Cet objectif est monté sur une platine piézoélectrique tandis que l'échantillon est fixé. Sur chacun des bras de l'interféromètre est installée une lame quart d'onde. Celle-ci, couplée au cube séparateur de polarisation, permet de récupérer uniquement les faisceaux réfléchis par le miroir et l'échantillon. Les faisceaux vont ensuite interférer au niveau de deux photodiodes. Une boucle d'asservissement permet de stabiliser l'interféromètre de Michelson sur son point optimum de fonctionnement.

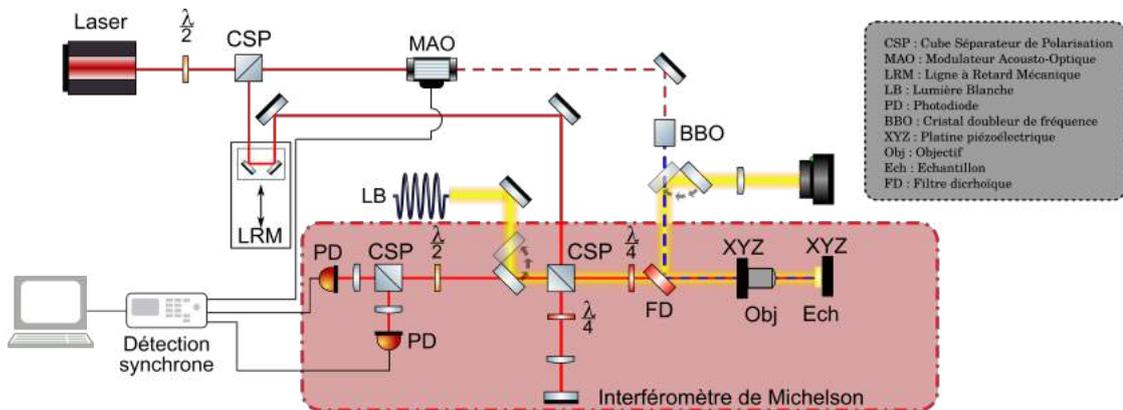


FIGURE 3.4 – Schéma optique du montage en réflexion expérimental utilisé pour l'étude des microdisques d'or.

La figure 3.5 introduit le schéma optique du second montage utilisé dans le cadre de cette étude qui présente une géométrie en transmission. Dans ce système, les deux faisceaux pompe et sonde ne sont plus alignés et superposés sur la même face de l'échantillon. Les faisceaux sont alignés de part et d'autre de l'échantillon. Le parcours du faisceau sonde n'est pas modifié par rapport au premier système. On ne modifie pas la longueur d'onde du faisceau pompe, ce système n'est donc pas un montage à deux couleurs. La focalisation des deux faisceaux de chaque côté de l'échantillon permet d'étudier la propagation des ondes au travers de celui-ci.

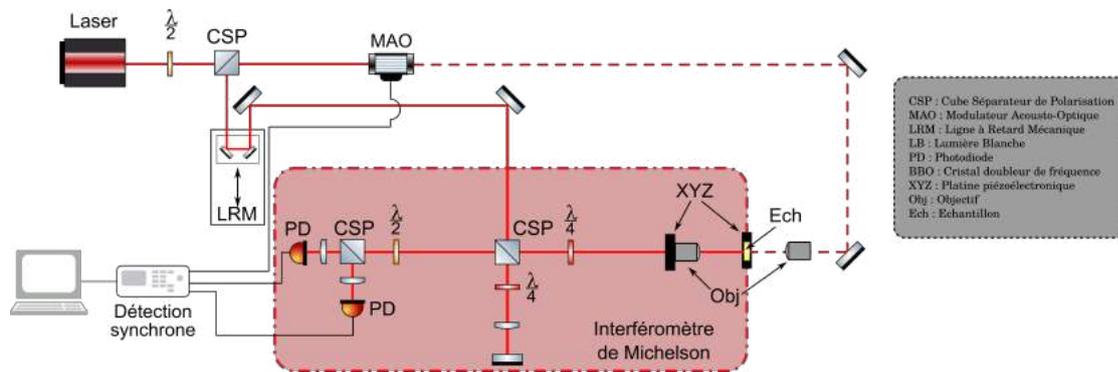


FIGURE 3.5 – Schéma optique du montage en transmission expérimental utilisé pour l'étude des microdisques d'or.

3.4 Étude d'un mode d'épaisseur

3.4.1 Identification du mode

La figure 3.6 présente un signal typique pouvant être mesuré sur un disque non sous-gravé durant la première nanoseconde après l'excitation du disque. On repère sur ce signal la coïncidence à 39 ps qui correspond à l'excitation du disque par une impulsion du faisceau pompe. La variation lente de la réflectivité relative observable après la coïncidence correspond à la réponse thermique de l'or. On note enfin la présence d'oscillations. Le signal est coupé après la coïncidence et la composante thermique retirée à l'aide d'une étape de régression polynomiale. Le nouveau signal ne présentant plus que les oscillations ainsi obtenu est présenté sur la figure 3.7.

Les oscillations du signal introduit sur la figure 3.7 a) présentent une période de 59.5 ps et décroissent rapidement. Une telle période correspond à une fréquence de 16.8 GHz comme le montre le spectre de ce signal représenté sur la figure 3.7 b). Ces oscillations peuvent être associées au premier mode d'épaisseur du disque.

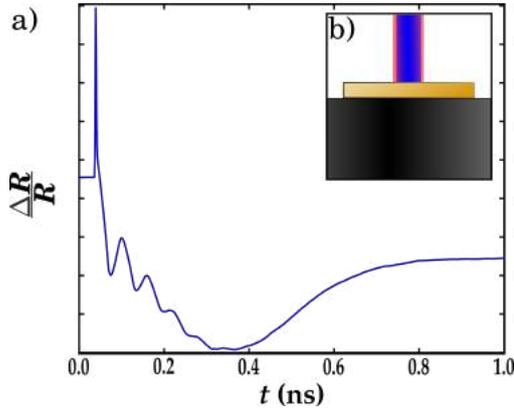


FIGURE 3.6 – a) Variation relative de la réflectivité mesurée sur un disque d'or non sous-gravé. b) Schéma du disque d'or illuminé par les faisceaux pompe et sonde.

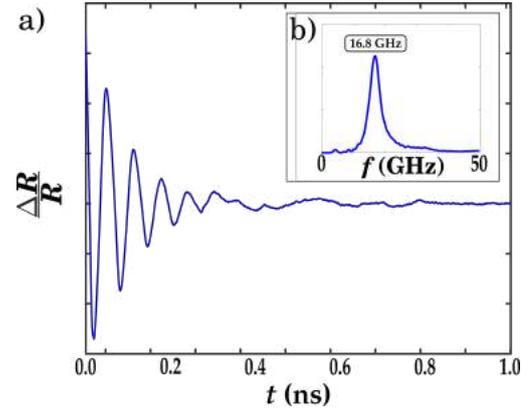


FIGURE 3.7 – a) Extraction des oscillations du signal de la figure 3.6 traité. b) Densité spectrale de puissance de ces oscillations présentant une unique composante à 16.8 GHz

Ce mode peut être interprété au travers du temps de propagation des ondes dans l'épaisseur du disque. On peut en effet estimer le temps de vol, la période entre deux déformations de la surface supérieure successives, d'une telle onde. En considérant un module d'Young $E = 78$ GPa, un coefficient de Poisson $\nu = 0.43$ et une masse volumique de $\rho = 19\,300$ kg/m³ pour l'or, on obtient une vitesse longitudinale c_L de 3.4×10^3 m s⁻¹ selon la formule

$$c_L = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}}. \quad (3.2)$$

À cette vitesse, le temps nécessaire pour l'onde pour effectuer un aller-retour à travers la hauteur nominale de 100 nm du disque est de 59 ps, soit la période de l'oscillation observée.

Le signal présenté sur la figure 3.7 a) étant monochromatique, on peut extraire le facteur de qualité des oscillations par reconstruction. On considère pour cela que le signal peut s'écrire sous la forme

$$x_{th}(t) = A \cos(2\pi ft + \phi) \exp(-\alpha t) \quad (3.3)$$

où A est l'amplitude du signal, f sa fréquence, ϕ la phase à l'origine et α son taux de décroissance.

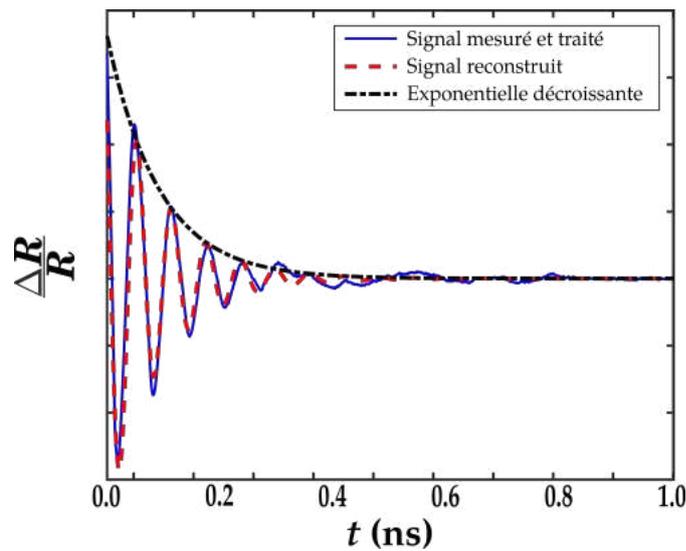


FIGURE 3.8 – Signal reconstruit comparé au signal mesuré et à la fonction exponentielle décroissante.

Pour un tel signal, le facteur de qualité en amplitude s'exprime

$$Q = \pi\tau f \quad (3.4)$$

avec $\tau = 1/\alpha$ le temps de vie en amplitude du signal. Les trois paramètres inconnus du signal, à savoir A , ϕ et α , mais aussi la fréquence f peuvent être obtenus en utilisant la fonction de minimisation `fminsearch` de Matlab. On définit pour cela une fonction de coût sous la forme d'une erreur quadratique moyenne

$$f(t) = \sum_n \sqrt{(x_m(t) - x_{th}(t))^2} \quad (3.5)$$

où x_m est le signal mesuré et traité représenté sur la figure 3.7. Tous ses paramètres déterminés, le signal peut être reconstruit à partir de ceux-ci. Ce nouveau signal est comparé au signal mesuré et traité sur la figure 3.8. La décroissance exponentielle de l'amplitude est également présentée. Il est donc possible de calculer la valeur du facteur de qualité. Pour ce signal, on obtient ainsi $Q = 5.0$.

3.4.2 Dépendance spatiale du mode

On s'intéresse à la dépendance spatiale de ce mode. Puisqu'il s'agit d'un mode d'épaisseur du disque, en l'absence de modifications de celle-ci, de variations locales des propriétés ou encore de changement des conditions aux limites, les mêmes résultats - fréquence et facteur de qualité - sont attendus quelque soit la position sur le disque où l'on réalise la mesure.

Pour vérifier cette hypothèse, on réalise plusieurs mesures le long d'un segment traversant le disque selon son diamètre. Une image du disque obtenue en réflectométrie à l'aide du faisceau sonde est représentée sur la figure 3.9 a). Sur celle-ci, les positions centrales des faisceaux où une mesure est effectuée sont représentées à l'aide de croix rouges. Deux points successifs sont espacés de $0.1 \mu\text{m}$. A chacune des 66 positions, une mesure est réalisée et sa densité spectrale de puissance est calculée. Ces densités sont représentées en fonction de la position du faisceau le long du trait sur la figure 3.9 b).

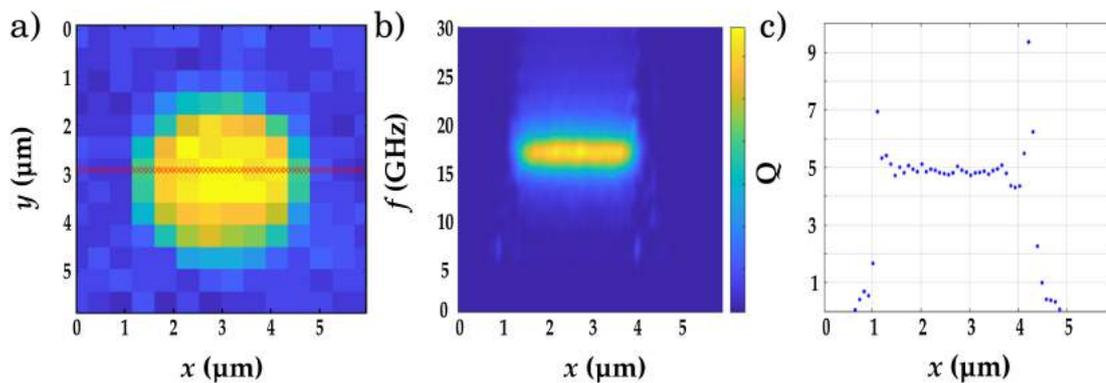


FIGURE 3.9 – a) Image obtenue en réflectométrie du disque étudié. Les 66 positions de mesures sont symbolisées par une croix rouge. b) Densité spectrale de puissance et c) Facteur de qualité du mode d'épaisseur obtenus à chacune des positions de mesure.

La figure 3.9 b) montre la détection d'oscillations de fréquence 16.8 GHz sur tout le diamètre du disque. L'absence de variation de la fréquence montre l'homogénéité des propriétés et de l'épaisseur du disque. Pour chacun de ces signaux, on calcule le facteur de qualité par reconstruction tel que présenté dans la partie 3.4.1. Les valeurs ainsi obtenues sont représentées en fonction de la position des faisceaux le long du segment sur la figure 3.9 c). On note que sur toute la partie du segment pour laquelle les faisceaux sont sur le disque, la valeur du facteur de qualité est proche de 5. La moyenne de ces valeurs est d'ailleurs de 4.9 et l'écart type de 0.2.

En dehors du disque, l'algorithme utilisé donne tout de même une valeur pour Q mais qui ne correspond à rien car il n'y a plus d'oscillations.

3.4.3 Influence du substrat

La sous-gravure du disque conduit à une modification des conditions aux limites des disques. Pour étudier l'impact de cette modification des mesures sont réalisées sur un échantillon après gravure. La figure 3.10 a) représente le signal que l'on mesure près d'une nanoseconde après la coïncidence au centre d'un disque peu sous-gravé. L'image d'un tel disque obtenue au microscope électronique à balayage est présentée sur la figure 3.3 a).

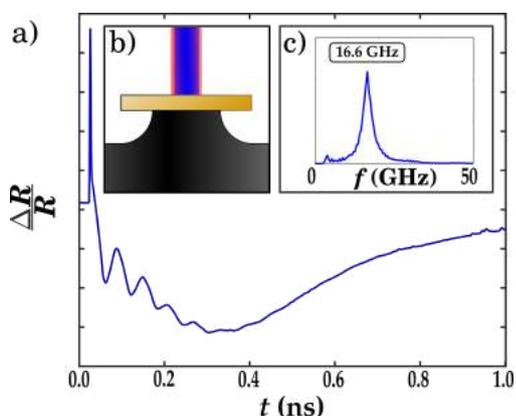


FIGURE 3.10 – a) Variation relative de réflectivité mesurée au centre d'un disque peu sous-gravé. b) Schéma de la mesure. c) Densité spectrale de puissance des oscillations montrant une unique composante à 16.6 GHz après avoir extrait les oscillations.

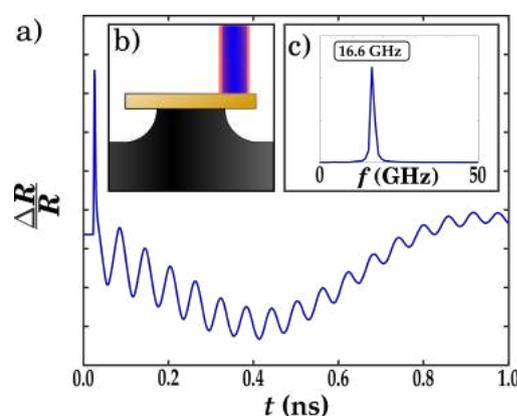


FIGURE 3.11 – a) Variation relative de réflectivité mesurée désaxée du centre d'un disque peu sous-gravé. b) Schéma de la mesure. c) Densité spectrale de puissance des oscillations montrant une unique composante à 16.6 GHz après avoir extrait les oscillations.

Le signal présenté sur la figure 3.10 a) est similaire à celui mesuré sur le disque non sous-gravé, figure 3.6 a). Le spectre du signal, représenté en 3.10 c), permet de trouver une fréquence de 16.6 GHz pour les oscillations. La différence de fréquence s'explique par une variation locale de l'épaisseur de la couche d'or, et donc des disques, lors de son dépôt par évaporation thermique.

La reconstruction du signal de la même manière que celle introduite dans la partie 3.4.1 fournit la valeur du facteur de qualité 5.1. On retrouve ainsi une valeur similaire à celles mesurées sur le disque non sous-gravé. Cela s'explique en considérant la géométrie du problème schématisée sur les figures 3.10 b) et 3.11 b). En effet, le disque étant peu sous-gravé, la surface de contact entre celui-ci et le substrat de silicium reste plus grande que la tâche focale du faisceau sonde. Grâce aux images MEB, le rayon de contact a été estimé à $r_c = 0.9 \mu\text{m}$, ou $r_G = 0.8 \mu\text{m}$, alors qu'avec l'objectif utilisé, la tâche focale présente un rayon de l'ordre de $0.5 \mu\text{m}$. La partie du disque éclairée et sur laquelle on réalise la mesure présente les mêmes conditions aux limites que le disque non sous-gravé.

On réalise maintenant une mesure similaire mais désaxée du centre du disque, sur la partie sous-gravée et où le disque n'est plus entièrement en contact avec le silicium. Le signal mesuré est introduit par la figure 3.11 a). On note que, dans ce cas, le signal obtenu diffère de celui mesuré au centre du disque ou sur le disque non sous-gravé. On retrouve la coïncidence ainsi que la composante thermique. On observe également des oscillations mais qui cette fois ne s'atténuent pas après quelques périodes. Le spectre du signal, figure 3.11 c), permet de retrouver une fréquence de 16.6 GHz pour ces oscillations, soit la même valeur que celle mesurée au centre du disque.

Néanmoins, la reconstruction du signal fournit cette fois-ci une valeur de 27.6 pour le facteur de qualité. L'absence de contact entre le disque et le substrat semble donc augmenter le temps de vie de ce mode, les ondes acoustiques étant maintenant contraintes de rester dans le disque.

Afin d'étudier la variation du facteur de qualité en fonction de la position des faisceaux sur le disque, on réalise des mesures selon un segment traversant de part et d'autre le disque par son diamètre de façon similaire à celle présentée dans la partie 3.4.2. L'image du disque à laquelle ont été ajoutées les positions des points de mesure est présentée sur la figure 3.12 a). Les densités spectrales de puissances obtenues à chacune des positions sont représentées sur la figure 3.12 b). Les spectres normés par l'intensité du pic sont également représentés sur la figure 3.12 c).

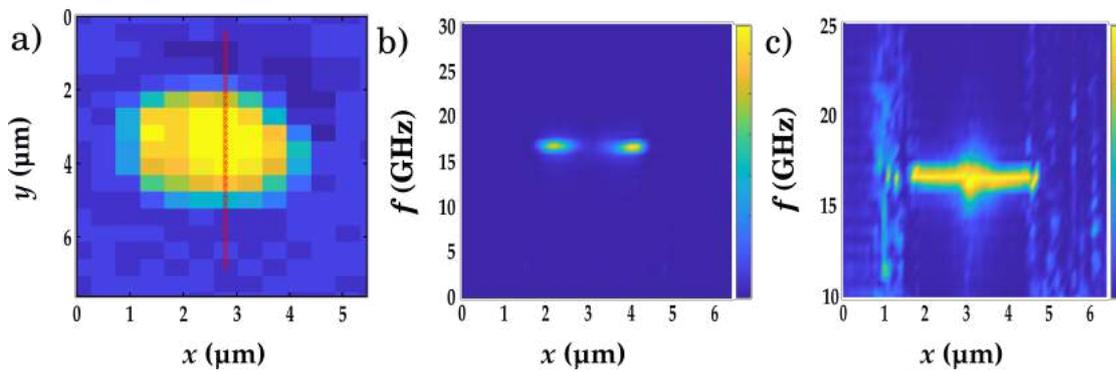


FIGURE 3.12 – a) Image obtenue en réflectométrie du disque étudié. Les 67 positions de mesures sont symbolisées par une croix rouge. b) Densités spectrales de puissance calculées à partir des variations de réflectivité mesurées à chacune des positions. c) Même densités de puissances normalisées par l'intensité à 16.6 GHz

On observe sur la figure 3.12 que, comme pour les disques non sous-gravés, dès lors que les faisceaux sont même que partiellement sur le disque, le mode d'épaisseur peut être détecté. Néanmoins, au contraire de ce que l'on peut observer sur un disque non sous-gravé sur la figure 3.9 b), l'intensité du pic sur le spectre n'est pas constante le long du diamètre du disque. L'amplitude du pic est plus importante et celui-ci est plus fin sur les bords du disque. Pour chacune des positions, le signal est reconstruit afin de déterminer le facteur de qualité. La figure 3.13 présente les facteurs de qualité le long du segment.

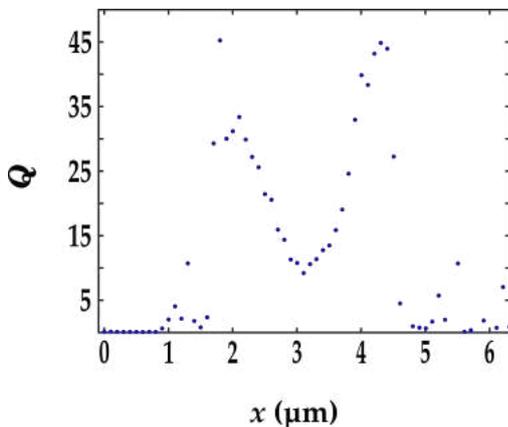


FIGURE 3.13 – Facteurs de qualité calculés à partir des mesures réalisées le long du diamètre d'un disque sous-gravé.

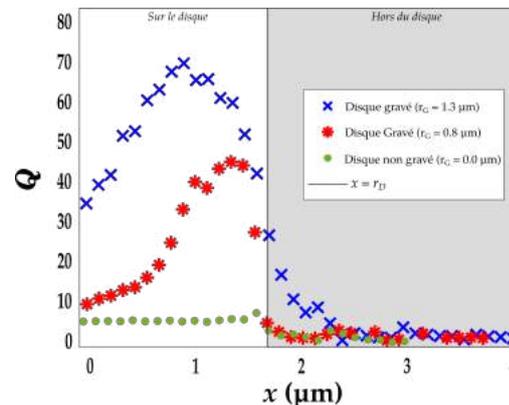


FIGURE 3.14 – Comparaison des facteurs de qualités mesurés le long de disques peu, très ou non sous-gravés.

On retrouve la symétrie par rapport au centre du disque sur la courbe d'évolution des facteurs de qualité sur la figure 3.13. On observe ainsi des facteurs de qualité plus faibles au centre du disque, de l'ordre de 10 et beaucoup plus élevés sur les bords, près de 45. Au bords du disques, des aspérités du contour du disque provoquent une diminution du facteur de qualité. On n'observe donc pas de plateau à partir des positions où le faisceau n'éclaire plus la partie du disque supportée. Une expérience similaire est réalisée sur un disque très sous-gravé, tel que celui-ci présenté sur la figure 3.3 b). Les valeurs des facteurs de qualité mesurées sur ce nouveau disque sont représentées sur la figure 3.14 et comparées à celles acquises sur les disques non et peu sous-gravés. Du fait de la symétrie des résultats, on ne représente ceux-ci que sur un rayon du disque. Le centre du disque est donc situé en $x = 0 \mu\text{m}$ et le bord du disque est signalé en $x = 1.7 \mu\text{m}$. Les résultats obtenus sur le disque très sous-gravé présentent la même allure que ceux mesurés sur le disque peu sous-gravé. Les valeurs sont néanmoins beaucoup plus élevées, avec un maximum de l'ordre de 69. Les valeurs au centre, en $x = 0 \mu\text{m}$, sont également beaucoup plus élevées que 5 car le rayon du faisceau sonde est plus grand que r_C .

3.4.4 Comparaison avec une membrane d'or

L'étude du mode localisé dans l'épaisseur du disque pour le cas limite où le disque est complètement auto-suspendu peut être approchée en utilisant une membrane d'or auto-suspendue. Pour cela, on synthétise des ponts d'or auto-suspendus de même épaisseur que les disques et de dimensions très grandes devant la largeur des tâches focales des faisceaux pompe et sonde. La figure 3.15 présente une image obtenue au M.E.B. de tels ponts de $50 \mu\text{m}$ de largeur et de 100nm d'épaisseur. Ceux-ci ont été synthétisés et sous-gravés au sein de la salle blanche de l'INSP selon la même méthode que celle utilisée pour les disques et décrite dans la partie 3.2. Les zones sous-gravées sont distinguables directement sur cette image par contraste correspondant aux auréoles plus claires.

Une première mesure peut être réalisée loin des ponts d'or, en un point où la couche d'or est encore supportée par le silicium. Le signal mesuré, et représenté sur la figure 3.16, est très similaire à celui mesuré au centre d'un disque peu sous-gravé, figure 3.10 a) ou sur le disque non sous-gravé, figure 3.6 a) : quelques oscillations de fréquence 16.5GHz sont observables après la coïncidence en plus de la composante thermique mais celles-ci sont très rapidement atténuées. Le traitement de ce signal permet d'obtenir un facteur de qualité de 5.6 pour ces oscillations. Cette valeur est proche quoique légèrement supérieure à celles obtenues sur les disques non sous-gravés.

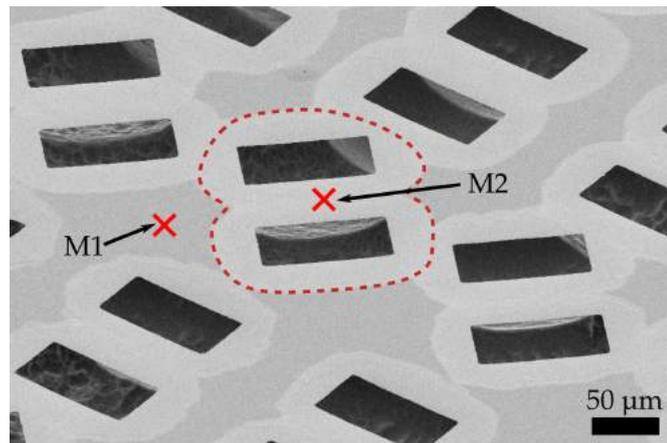


FIGURE 3.15 – Image de ponts d’or auto-suspendus observés au Microscope Électronique à Balayage. Les points M1 et M2 indiquent respectivement les points de mesure sur film et sur membrane auto-suspendue. La zone auto-suspendue est délimitée en pointillés.

La figure 3.17 présente quant à elle le signal mesuré au milieu d’un pont auto-suspendu. A cette position, l’or n’est plus en contact avec le silicium. On note que cette mesure a été réalisée sans profiter de l’interféromètre de Michelson. En effet, des oscillations très basses fréquences propres au pont auto-suspendu ne permettent pas la mesure du mode d’épaisseur. Cette différence de technique de mesure explique la différence d’allure des composantes thermiques entre les signaux des figures 3.16 a) et 3.17 a).

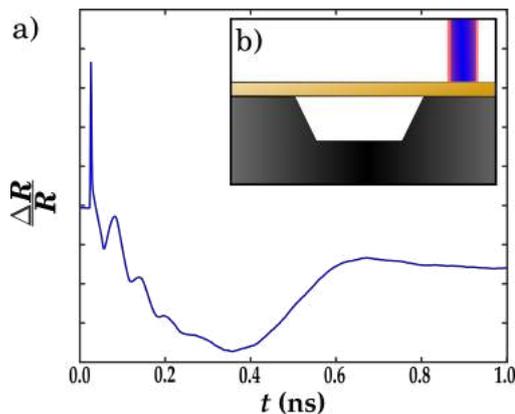


FIGURE 3.16 – Variation de réflectivité mesurée en interférométrie sur un point de la couche d’or en contact avec le substrat de silicium

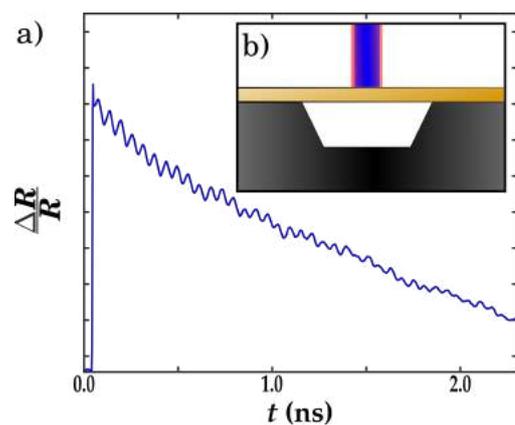


FIGURE 3.17 – Variation de réflectivité mesurée en réflectométrie au milieu d’un pont d’or auto-suspendu

On observe une nouvelle fois des oscillations, avec une fréquence identique, mais très peu atténuées. Ainsi, on distingue encore ces oscillations plus de 2 ns après la coïncidence. Le traitement de ce signal donne cette fois-ci un facteur de qualité beaucoup plus important de 73.9.

Les mesures ici présentées ont été répétées plusieurs fois sur ce même échantillon ainsi que sur un autre échantillon et ont amené à des résultats similaires. Les valeurs de Q relevées aux différentes positions sur les différents disques présentées sur la figure 3.14 peuvent être comparées à ces deux valeurs de Q caractérisant une membrane d'or soit en contact avec du silicium soit auto-suspendue. La figure 3.18 présente ainsi l'ensemble des résultats obtenus.

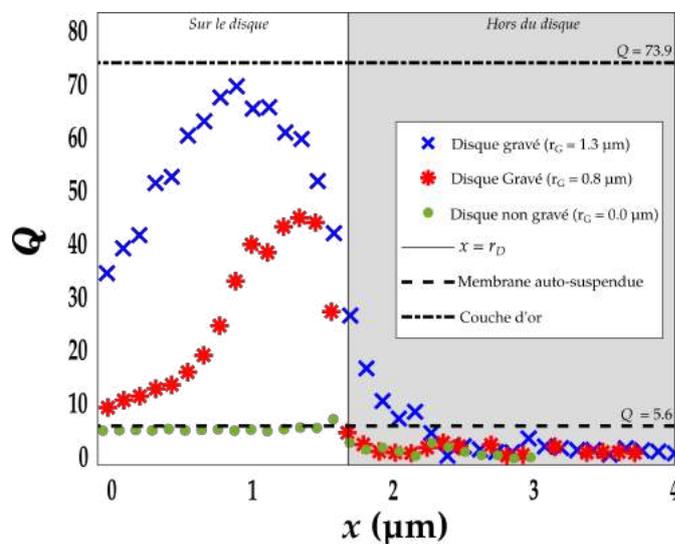


FIGURE 3.18 – Comparaison des facteurs de qualité obtenus sur différents disques le long de leur rayon et sur des membranes.

En comparant les résultats obtenus sur les disques et sur la membrane, on note tout d'abord que le facteur de qualité obtenu sur le film est similaire aux valeurs obtenues sur le disque qui n'a pas été sous-gravé. De plus, les valeurs de Q au centre des disques sous-gravés tendent également vers cette valeur. Mais surtout, on note que le facteur de qualité maximal mesuré sur le disque très sous-gravé est proche de celui obtenu pour une couche d'or complètement auto-suspendue. On comprend cela géométriquement : le disque est suffisamment sous-gravé pour que lorsque les faisceaux pompe et sonde s'écartent du centre du disque, ceux-ci peuvent éclairer uniquement une portion de disque entièrement sous-gravée. Lorsque l'on s'intéresse à un mode localisé dans l'épaisseur, cela équivaut à la membrane.

On rappelle que le facteur de qualité d'un mode correspond au rapport de l'énergie stockée sur l'énergie perdue par cycle, soit par période des oscillations. Ainsi, un facteur de qualité plus important signifie moins de pertes, pour la même excitation. Ce facteur peut être décomposé selon les différents processus étant à l'origine de la perte d'énergie par cycle. Chacun de ces processus peut se voir affecté un facteur de qualité propre. Dans notre cas, on considère les pertes intrinsèques à l'or ainsi que les pertes par rayonnement dans l'environnement. Ce dernier peut lui même être décomposé en deux parties, l'air et le silicium, correspondant aux deux milieux avec lesquels les disques d'or sont en contact. On décompose ainsi Q tel que

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{intr}} + \frac{1}{Q_{env}} = \frac{1}{Q_{intr}} + \frac{1}{Q_{sub}} + \frac{1}{Q_{air}}. \quad (3.6)$$

Du fait de l'importante différence d'impédance acoustique entre l'air et l'or, il est communément considéré que le rayonnement dans l'air est négligeable. Par conséquent, Q_{air} tend vers l'infini. Dans le cas de la membrane auto-suspendue, puisque celle-ci n'est pas en contact avec le silicium, on a directement $Q = Q_{intr}$. Par conséquent, la valeur de 73.9 caractérise les pertes intrinsèques aux structures d'or synthétisés par la méthode décrite dans la partie 3.2. Il est à noter qu'un recuit de l'or peut permettre de modifier la structure granulaire de la couche synthétisée permettant de diminuer les pertes intrinsèques et d'augmenter Q [75].

La valeur obtenue peut être considérée comme la limite supérieure mesurable sur un disque. C'est d'ailleurs ce qui est observé sur la figure 3.18 : lorsque le disque est suffisamment sous-gravé, il est possible de placer les faisceaux de manière à ce que la partie du disque éclairée et excitée ne soit quasiment pas en contact avec le silicium.

Sur la couche d'or en contact avec le silicium, il est nécessaire de prendre en compte l'énergie perdue par rayonnement dans le substrat de silicium. Néanmoins, en prenant $Q_{intr} = 73.9$, il est possible de calculer la valeur de Q_{sub} à partir de celle de Q mesurée expérimentalement grâce à l'expression 3.6. Si l'on considère la valeur mesurée sur le film $Q = 5.6$, on obtient alors

$$Q_{sub} = \frac{Q Q_{intr}}{Q_{intr} - Q} = 6.1. \quad (3.7)$$

Si on utilise la valeur moyenne de $Q = 4.9$ obtenue sur le disque non sous-gravé, on calcule $Q_{sub} = 5.2$.

3.4.5 Détermination de r_G à partir de Q

Il est possible de déterminer le rayon de sous-gravure r_G , ou le rayon de la surface de contact r_C entre or et silicium, à partir des courbes de profil des facteurs de qualités représentées sur la figure 3.14. Lorsque l'on réalise une image par réflexion en utilisant un laser, l'image obtenue correspond au produit de convolution de l'objet imagé par la fonction d'étalement du point du système. Il en est de même si l'on cherche à réaliser une image des facteurs de qualité d'un disque. Dans notre cas, la fonction d'étalement du point du système peut être décrite à l'aide d'une fonction gaussienne à deux dimensions.

Considérons un disque partiellement sous-gravé. Aux positions où l'or et le silicium sont en contact, le facteur de qualité prend la valeur Q_1 . Là où le silicium est gravé et le disque auto-suspendu, il prend la valeur Q_2 . Hors du disque, la valeur est nulle. On peut alors réaliser une image de ce facteur de qualité tel que représentée sur la figure 3.19 a) où on a considéré $Q_1 = 5.2$ et $Q_2 = 73.9$.

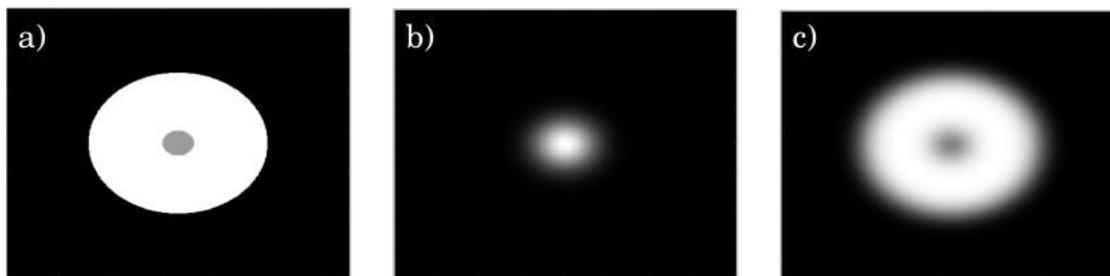


FIGURE 3.19 – a) Image des facteurs de qualité d'un disque pour $r_G = 1.41 \mu\text{m}$. b) Image de la fonction d'étalement du point considérée : fonction gaussienne à deux dimensions centrée en $(2, 2)\mu\text{m}$ et de largeur $\sigma = 0.25 \mu\text{m}$. c) Image obtenue par convolution de l'objet a) et de la fonction d'étalement du point.

La fonction d'étalement du point du système laser peut être décrite à l'aide d'une fonction gaussienne à deux dimensions. La figure 3.19 b) introduit une telle fonction. L'image des facteurs de qualité qu'il est possible d'obtenir avec ce système optique correspondra au produit de convolution des images 3.19 a) et 3.19 b) et est représentée sur la figure 3.19 c). Une coupe selon un rayon du disque est représentée sur la figure 3.20. On retrouve une courbe avec une allure similaire à celles obtenues expérimentalement et présentées sur la figure 3.14.

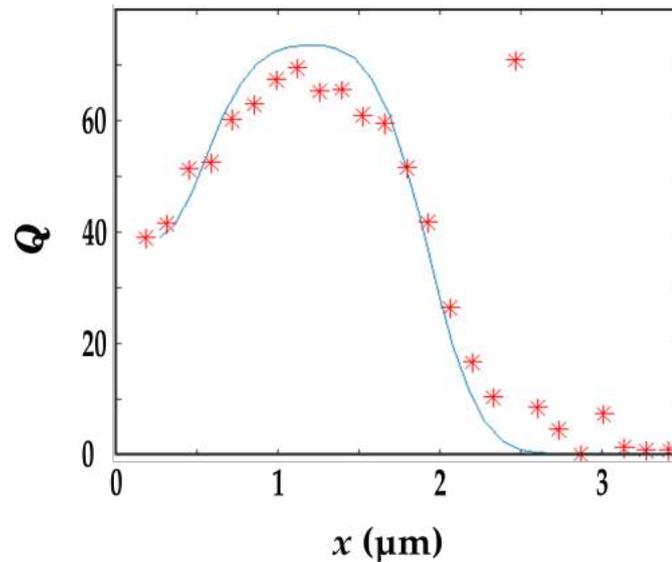


FIGURE 3.20 – Comparaison des facteurs de qualité mesurés expérimentalement et courbes retrouvées numériquement

La courbe ainsi obtenue est comparée aux résultats expérimentaux des valeurs de Q obtenues sur le disque très sous-gravé. La valeur de r_G peut être retrouvée en cherchant à minimiser la différence entre la courbe expérimentale et la courbe calculée à partir du produit de convolution. Ainsi, on obtient des valeurs de $r_G = 0.85 \mu\text{m}$ et $r_G = 1.41 \mu\text{m}$ respectivement pour les disques peu et très gravés. Ces valeurs sont cohérentes avec celles pouvant être estimées à partir des images obtenues au microscope électronique à balayage de $0.8 \mu\text{m}$ et $1.5 \mu\text{m}$.

3.4.6 Calcul du coefficient de réflexion R

Il est possible de retrouver le coefficient de réflexion depuis l'or vers le silicium à partir du facteur de qualité décrivant la transmission. Pour un écho d'amplitude A , dans le cas où l'on ne considère l'énergie perdue que par transmission au substrat, l'écho suivant a une amplitude $B = RA$ où R correspond au coefficient de réflexion de l'or vers le silicium. Ce coefficient peut donc être directement calculé à partir du rapport des amplitudes de deux échos successifs.

Or, dans le cas ici étudié, le signal et les échos sont décrits par une fonction sinusoïdale décroissante introduite dans la partie 3.4.1 sous la forme 3.3. Par conséquent, deux échos successifs sont séparés temporellement simplement par une période T de cette fonction.

Le rapport entre l'amplitude de deux échos successifs s'exprime alors

$$R = \frac{A_0 \cos(2\pi t + \phi_0) \exp(-\alpha t)}{A_0 \cos(2\pi(t + T) + \phi_0) \exp(-\alpha(t + T))} \quad (3.8)$$

$$= \exp(-\alpha T) \quad (3.9)$$

$$= \exp\left(-\frac{\pi}{Q}\right) \quad (3.10)$$

Si on calcule le coefficient de réflexion à partir du facteur de qualité lié au substrat $Q_{sub} = 5.2$ déterminé à partir des mesures sur le disque non sous-gravé, on obtient la valeur de $R = 0.55$. En utilisant la valeur de $Q_{sub} = 6.1$ déterminée sur le disque, on trouve $R = 0.60$. On rappelle que le coefficient de réflexion peut être calculé pour une onde en incidence normale à l'interface à partir des impédances caractéristiques $Zc = \rho c_L$ des milieux considérés selon

$$R = \left| \frac{Zc_{Si} - Zc_{Au}}{Zc_{Si} + Zc_{Au}} \right|. \quad (3.11)$$

Les impédances de l'or et du silicium sont respectivement $Zc_{Au} = 65.5 \times 10^6 \text{ kgs}^{-1}\text{m}^{-2}$ et $Zc_{Si} = 19.5 \times 10^6 \text{ kgs}^{-1}\text{m}^{-2}$. On obtient alors un coefficient de réflexion pour une onde se propageant depuis l'or vers le silicium de 0.54. Ce coefficient de réflexion théorique est donc légèrement moins important que ceux obtenus expérimentalement. Cela implique que moins d'énergie est transférée au substrat que théoriquement attendu. Cela peut être expliqué par un contact imparfait entre le disque et le substrat de silicium. En effet, l'or étant polycristallin, l'interface entre les deux milieux peut être incomplète.

3.4.7 Génération d'ondes dans le substrat

A partir des valeurs de Q déterminées dans la partie 3.4.4, on observe que $Q_{sub} \gg Q_{intr}$. Cela signifie que le mode d'épaisseur perd beaucoup plus d'énergie par rayonnement dans le substrat de silicium que par les phénomènes intrinsèques au disque d'or. On peut donc s'intéresser à la génération d'ondes acoustiques dans le substrat.

Pour cela, des disques d'or sont synthétisés selon la méthode présentée dans la partie 3.2 sur une fine membrane de silicium au lieu d'un wafer. D'une épaisseur nominale de $30\ \mu\text{m}$, celle-ci permet de s'intéresser et d'étudier les ondes se propageant dans le silicium avant que ces dernières ne soient absorbées. La membrane de silicium est obtenue par la gravure d'un wafer d'une façon similaire à la gravure des tranchées présentée en 2.3.2. Une fine couche d'aluminium de $40\ \text{nm}$ d'épaisseur est également déposée par évaporation thermique sur la surface inférieure de la membrane. Cette couche permet d'améliorer les résultats et la détection d'ondes. Un schéma de l'échantillon est présenté sur la figure 3.21.

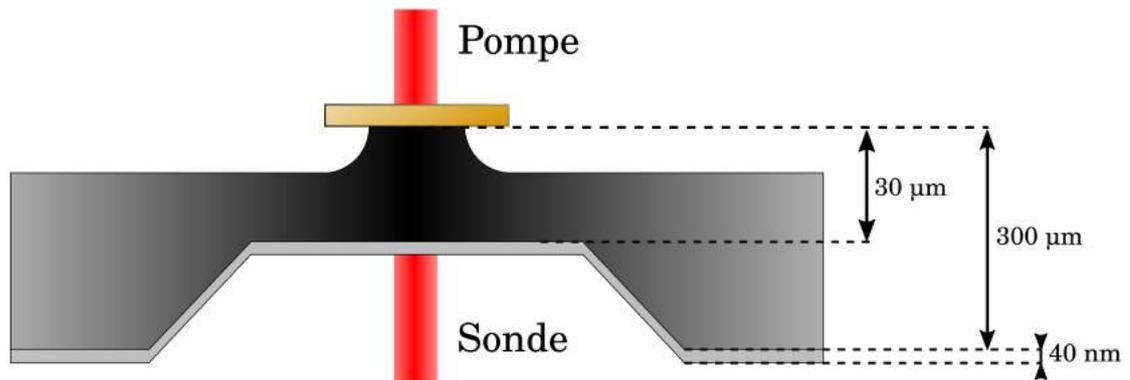


FIGURE 3.21 – Schéma de l'échantillon présentant des disques sous-gravés synthétisés sur une fine membrane de silicium gravée dans un wafer de silicium.

On utilise le montage en transmission présenté dans la partie 3.3 et schématisé sur la figure 3.5. L'échantillon est installé de manière à ce que le faisceau pompe éclaire la surface présentant les disques. Le faisceau sonde est aligné avec le faisceau pompe et focalisé sur la couche d'aluminium.

Lorsque les deux faisceaux sont alignés sur le silicium, schéma 3.22 c), la mesure de $\Delta R/R$ présente un grand nombre d'échos comme le met en évidence la figure 3.22 a) introduisant ce signal. Ceux-ci sont causés par la propagation d'ondes, longitudinales et transverses, dans la membrane de silicium. La longueur de pénétration de la lumière à une longueur d'onde de $800\ \text{nm}$ dans le silicium est de $\delta_p = 12.09\ \mu\text{m}$. Le faisceau pompe traverse donc la membrane avant d'être absorbé par la couche d'aluminium. Cela conduit à la génération d'ondes sur toute la hauteur de la membrane mais également au niveau de la couche d'aluminium. La coïncidence peut également être observée à $2.2\ \text{ns}$ mettant en évidence le changement des propriétés optiques de la couche d'aluminium après absorption de l'impulsion du faisceau pompe.

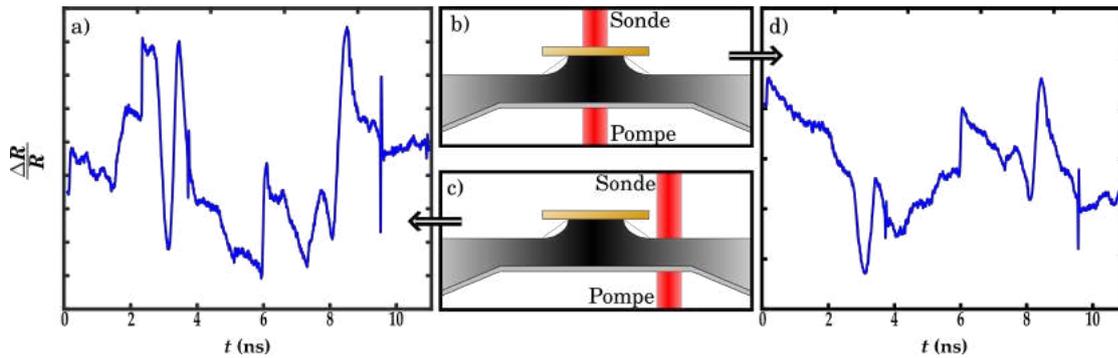


FIGURE 3.22 – a) Variation de réflectivité mesurée sur le silicium. Schémas de la mesure b) sur le disque c) sur le Silicium. d) Variation de réflectivité mesurée sur un disque d'or sous-gravé

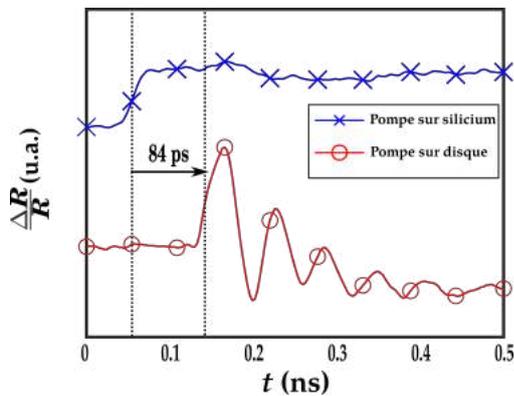


FIGURE 3.23 – Variations de réflectivité mesurées après excitation sur le silicium et sur le disque provoqué par l'onde longitudinale ayant traversé la membrane. Dans le cas où le faisceau pompe est placé sur le disque on observe un retard de 84 ps ainsi que des oscillations.

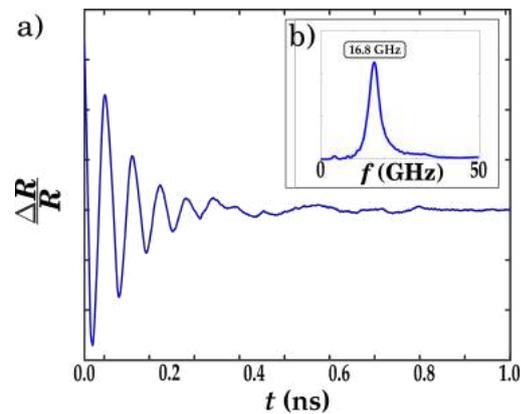


FIGURE 3.24 – a) Oscillations de la variation de réflectivité mesurées après excitation sur le disque et observées après l'écho associé à l'onde longitudinale. b) Densité spectrale de puissance de ces oscillations mettant en avant une unique composante à 16.6 GHz.

Si le faisceau pompe est placé sur un disque d'or, schéma 3.22 b), le signal mesuré, figure 3.22 d), est différent. La longueur de pénétration dans l'or à 800 nm étant beaucoup plus faible, le faisceau pompe est rapidement absorbé. Il ne traverse donc plus la membrane, la couche d'aluminium n'est plus excitée, ce qui limite les ondes se propageant dans la membrane.

On ne distingue plus la coïncidence. On s'intéresse en particulier à l'écho correspondant à l'onde longitudinale générée à la surface supérieure de la membrane et ayant traversée le silicium. En effet, que le faisceau pompe soit placé sur le silicium ou sur le disque on observe cet écho. Toutefois, comme mis en évidence sur la figure 3.23, lorsque le faisceau pompe est placé sur le disque cet écho est suivi d'oscillations. Le spectre de celles-ci, figure 3.24 b), présente une unique composante à 16.6 GHz. On peut identifier ces ondes comme étant émises dans le substrat par le mode d'épaisseur du disque. A chaque oscillation de ce mode, une onde est émise dans le substrat. Par reconstruction, on retrouve également un facteur de qualité de 5.3. Cette valeur est similaire à celle obtenue pour Q_{sub} dans la partie 3.4.4 dans le cas de disques. La différence entre ces valeurs est notamment due aux pertes intrinsèques au Si.

La comparaison des deux signaux sur la figure 3.23 met également en évidence la présence d'un décalage temporel entre les mesures des deux échos. Dans le cas où les faisceaux sont alignés au niveau du centre d'un disque, l'écho est mesuré avec un retard de 84 ps. Ce retard s'explique par une hauteur de silicium à traverser plus importante dans ce cas. En effet, les ondes générées doivent traverser le cône supportant le disque selon sa hauteur. Du fait des propriétés électroniques de l'or, l'excitation du disque se fait dans le volume et non au niveau de la surface éclairée par le faisceau pompe. On ne considère donc pas que les ondes doivent traverser le disque d'or, ce qui provoquerait un retard supplémentaire.

À partir du retard mesuré, il est donc possible de déterminer la hauteur du cône. La vitesse de propagation des ondes longitudinales dans le silicium selon la direction [100] est de $v_L^{Si[100]} = 8400 \text{ m s}^{-1}$. Ainsi, la hauteur du cône de silicium peut être estimée à $h_C = 0.71 \mu\text{m}$. Cette hauteur correspond également à la hauteur de silicium gravée par le mélange d'acides selon la direction normale à la surface de la membrane. Or, la gravure étant quasi-isotrope, elle est aussi équivalente à la distance gravée sur les bords de silicium dans le plan de la membrane impliquant $r_G = 0.71 \mu\text{m}$. On peut également calculer $r_C = r_D - r_G \simeq 1.0 \mu\text{m}$.

Profitant de la platine piézoélectrique sur laquelle est installée l'objectif servant à focaliser le faisceau sonde, il est possible de scanner toute une surface de la couche d'aluminium à un instant donné tout en gardant le faisceau pompe focalisé sur un disque. Les figures 3.25 a) et b) présentent des images qu'il est possible d'obtenir. On peut y observer respectivement un et deux cercles correspondant à des ondes émises par le mode d'épaisseur ayant traversé la membrane de silicium. Il est également possible de réaliser ces scans mais sur une ligne seulement. La figure 3.25 c) présente de tels scans obtenus à différents temps.

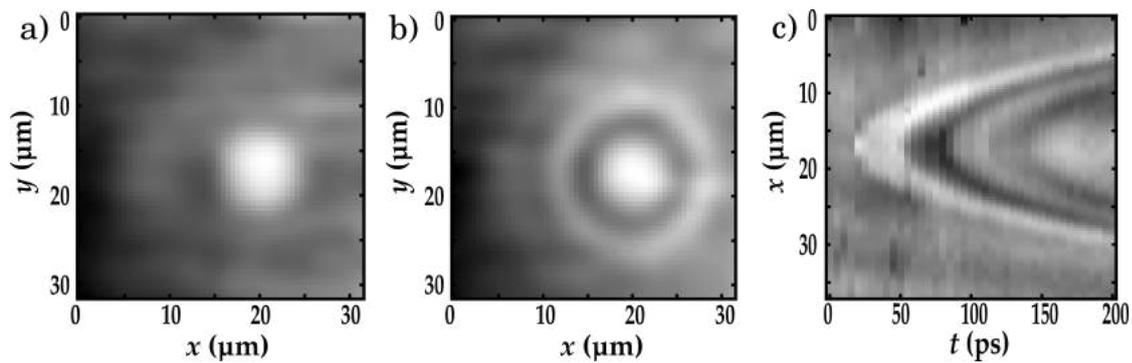


FIGURE 3.25 – Cartographie du déplacement normal de la couche d’aluminium à a) t et b) $t + 60$ ps. c) Déplacement de surface mesuré le long d’une ligne passant par l’épicentre des ondes identifiées sur les figures a) et b)

La ligne selon laquelle passent les scans est centrée autour de la position pour laquelle les faisceaux pompe et sonde sont alignés. Cette image met en évidence l’apparition d’oscillations. Si l’on s’intéresse à la période de ces oscillations, on retrouve une valeur de $60 \text{ ps} \pm 5 \text{ ps}$, soit une valeur équivalente à la période du mode d’épaisseur émettant ces ondes.

3.5 Étude des modes radiaux

3.5.1 Modes radiaux d’un disque non sous-gravé

La réalisation de mesures s’étendant sur une fenêtre temporelle plus longue que celles présentées dans la partie 3.4 sur un disque non sous-gravé permet d’observer des oscillations présentant des fréquences plus basses plusieurs nanosecondes après la coïncidence. La figure 3.26 présente un tel signal.

Sur le signal présenté sur la figure 3.26, on distingue la coïncidence à 50 ps suivie de la composante thermique ainsi que des oscillations associées au mode d’épaisseur et étudiées dans la partie 3.4. Des oscillations supplémentaires sont également notées à partir d’environ 1 ns . Ces oscillations sont visibles pendant près de 10 ns après l’excitation du disque par une impulsion du faisceau pompe. Le signal est coupé et la composante thermique retirée afin de ne conserver que ces oscillations. Le nouveau signal obtenu est représenté sur la figure 3.27 a).

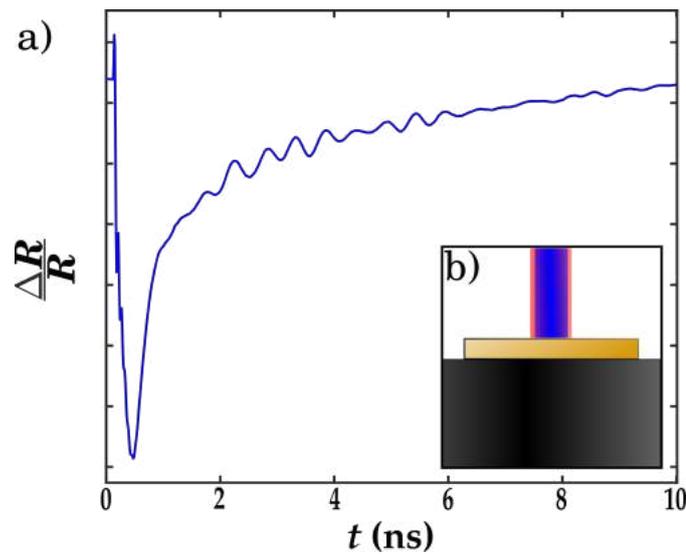


FIGURE 3.26 – a) Variation de réflectivité mesurée au centre d'un disque d'or non sous-gravé. b) Schéma de la mesure

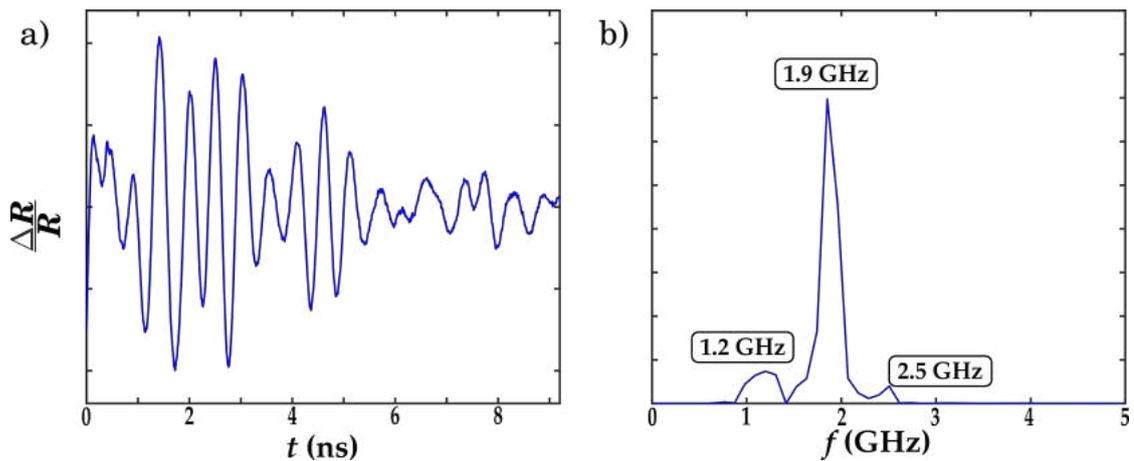


FIGURE 3.27 – a) Oscillations basses fréquences extraites du signal 3.26. b) Densité spectrale de puissance des oscillations présentant trois composantes principales à 1.2, 1.9 et 2.5 GHz.

Les oscillations observables sur le signal 3.27 a) sont différentes de celles étudiées dans la partie 3.4. En effet, comme le montre la densité spectrale de puissance de celles-ci, introduite par la figure 3.27 b), la réponse vibrationnelle observée est polychromatique et les fréquences de ses différentes composantes sont beaucoup plus faibles. Ces oscillations peuvent être associées aux modes radiaux du disque.

Seuls ceux présentant une composante du champ de déplacement normale à la surface du disque non nulle sont détectés, notamment grâce à l'interféromètre de Michelson. Les fréquences de ces modes sont beaucoup plus faibles que celle du mode d'épaisseur car la dimension radiale du disque, son rayon, est beaucoup plus grande que son épaisseur comme l'indique son rapport de forme $\eta = 34$ élevé. On réalise des mesures le long du diamètre du disque de façon similaire à celles réalisées dans la partie 3.4.2. Les densités spectrales de puissance des signaux mesurés sont représentées en fonction de la position sur la figure 3.28.

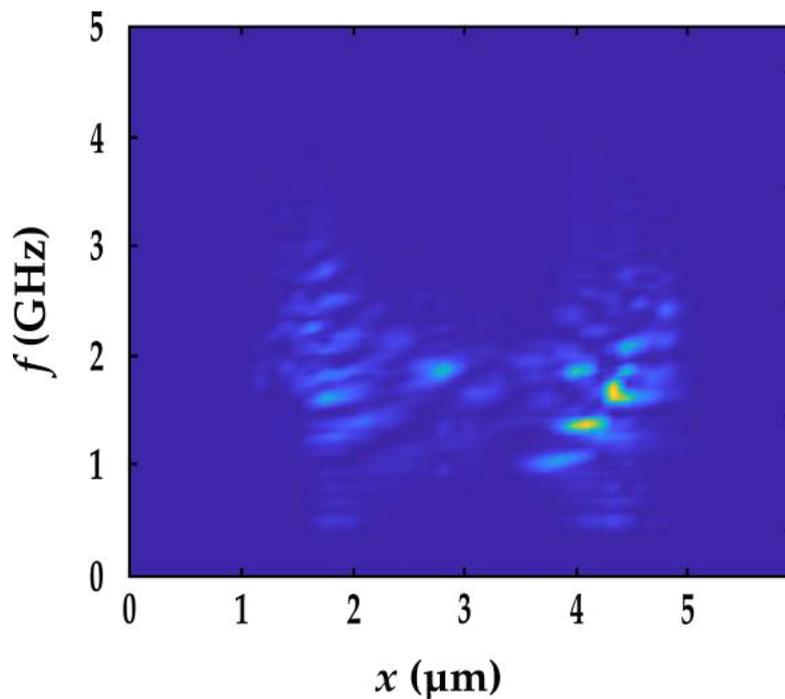


FIGURE 3.28 – Densités spectrales de puissance obtenues expérimentalement en 56 points selon le diamètre du disque.

Sur les spectres représentés sur la figure 3.28, on peut observer une dépendance du contenu fréquentiel du signal à la position des faisceaux sur le disque. Les modes excités et détectés ne sont pas les mêmes lorsque les faisceaux sont placés au centre du disque, au milieu d'un rayon ou partiellement hors du disque. On peut également observer une certaine symétrie par rapport au centre du disque comme déjà observée lors de l'étude des facteurs de qualité.

De chaque côté du disque, on retrouve les mêmes composantes, à un écart d'intensité près. Cet écart peut s'expliquer notamment par la précision des positions des faisceaux ou par un léger dérèglement au cours de cette longue expérience. Des différences importantes sont notables entre le centre du disque et les spectres à mi-rayon ou sur les bords. Il est possible que lorsque les faisceaux éclairent le bord du disque, des modes présentant une composante radiale non nulle soit également détectés même si leur composante normale à la surface supérieure est nulle.

3.5.2 Etude numérique des modes radiaux

L'étude de l'impact du substrat sur les modes radiaux du disque peut être réalisée numériquement. On utilise pour cela une étude fréquentielle au sein du module Mécanique des Solides du logiciel Comsol. La géométrie du problème permet de considérer celui-ci comme un problème à deux dimensions axisymétriques. Cela permet de réduire de façon importante les coûts en calcul par rapport à une géométrie en trois dimensions.

Géométrie considérée

La géométrie utilisée lors de cette étude numérique est présentée sur la figure 3.29. On considère tout d'abord un disque d'or d'une épaisseur de $h_D = 100$ nm et de $r_D = 1.7$ μ m de rayon.

Le substrat est simulé à l'aide d'une demi-sphère. Une seconde demi-sphère est considérée autour de la première et permet de simuler le substrat comme semi-infini en la définissant comme une couche parfaitement absorbante. Les propriétés de ces domaines sont ceux du silicium selon l'axe [100], chargés à partir de la bibliothèque de matériaux fournie par Comsol. On ne considère donc pas au cours de ces simulations l'anisotropie du silicium. Les valeurs des principales propriétés sont données dans le tableau 3.1. Ces deux demi-sphères ont des rayons respectifs de $0.5\lambda_L + r_D$ et $1.5\lambda_L + r_D$ où λ_L est la longueur d'onde de l'onde longitudinale dans le silicium. La taille maximale des éléments est quant à elle fixée à $\frac{\lambda_T}{5}$ avec λ_T la longueur d'onde de l'onde transverse dans le silicium. Ainsi, pour chaque fréquence considérée lors des simulations, la taille et le maillage du substrat sont redéfinis. On minimise ainsi les coûts de calculs en limitant le nombre de longueurs d'onde tout en garantissant un nombre d'éléments par longueur d'onde suffisant pour simuler correctement la propagation et l'absorption respectivement dans les deux demi-sphères. La condition limite libre est imposée aux surfaces extérieures des sphères et aucun champ initial n'est imposé.

La sous-gravure du disque est considérée en ajoutant entre le disque et les deux demi-sphères un bloc de silicium d'une longueur équivalente au disque r_D et d'une hauteur $h_C = r_G$ correspondant à l'épaisseur de silicium gravé. La partie extérieure de ce bloc est retirée à l'aide d'un quart de cercle de rayon r_G et centré à l'extrémité extérieure inférieure du disque. On obtient ainsi un cône de silicium supportant le disque dont la forme prend en compte l'aspect isotrope de la gravure décrite en 3.2.2.

Matériau	Module d'Young E (GPa)	Coefficient de Poisson ν	Masse volumique ρ (10^3 kg/m ³)
Silicium [100]	130	0.28	2.33
Or	78	0.44	19.3
Chrome	254	0.21	7.12

TABLE 3.1 – Valeurs des propriétés des matériaux utilisées pour la réalisation des simulations.

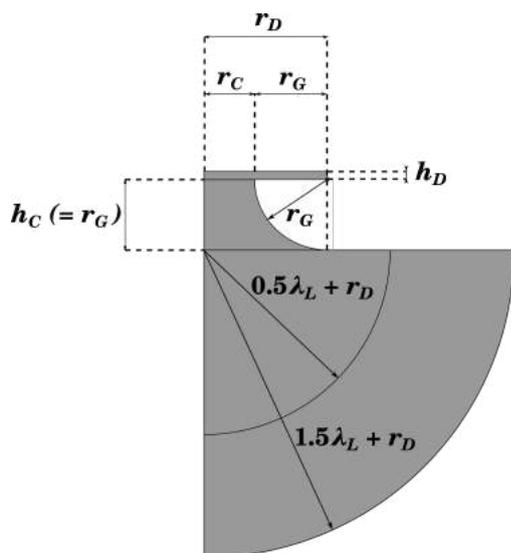


FIGURE 3.29 – Géométrie 2D axisymétrique utilisée dans le cadre des simulations par éléments finis rappelant les différentes notations

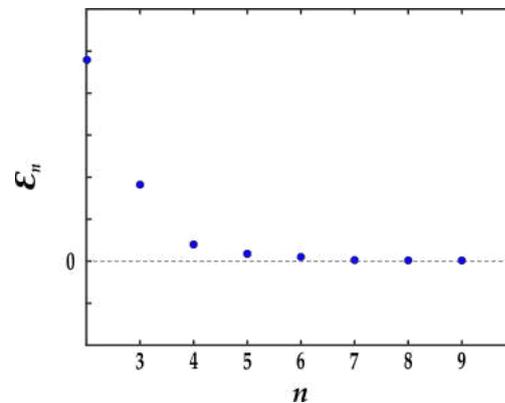


FIGURE 3.30 – Erreur quadratique relative commise pour n montrant que $n = 5$ est suffisant pour mailler correctement le disque.

Afin de simuler l'excitation du disque par une impulsion laser, on impose un chargement sur sa surface supérieure sous la forme d'une force totale selon la direction \vec{e}_z à l'aide de la fonction gaussienne s'exprimant en deux dimensions axisymétriques

$$F_P(r, z) = -A_P \exp \left[- \left(\frac{(r - r_0^P)^2}{2(\sigma_r^P)^2} \right) \right] \vec{e}_z \quad (3.12)$$

où A_P correspond à l'amplitude, r_0^P à la position centrale de la fonction et σ_r^P à sa largeur. Dans notre cas, on fixe $A_P = 1$, $r_0^P = 0 \mu\text{m}$. Il est à noter que cette excitation ne simule pas complètement l'excitation de l'or par une impulsion laser. En effet, du fait de sa grande diffusivité électronique, une impulsion laser provoquera une excitation volumique de l'or et non seulement à sa surface.

Les spectres sont obtenus en intégrant le déplacement normal à la surface, selon l'axe \vec{e}_z , sur toute la surface du disque pondérée spatialement par la fonction F_S . On peut ainsi prendre en compte l'impact de la taille limitée du faisceau sonde. Cette fonction s'écrit de manière similaire à F_P

$$F_S(r) = A_S \exp \left[- \left(\frac{(r - r_0^S)^2}{2(\sigma_r^S)^2} \right) \right]. \quad (3.13)$$

Sans indication contraire, on considère pour la suite $\sigma_r^P = \sigma_r^S = 0.25 \mu\text{m}$. On fixe également $A_S = 1$ et $r_0^S = 0 \mu\text{m}$.

Usuellement, la taille des éléments utilisés pour mailler un domaine dépend des longueurs d'ondes considérées. Or, dans le cas étudié, l'épaisseur du disque est bien plus petite que ces longueurs d'ondes. Afin de garantir des résultats corrects, il est néanmoins nécessaire que le maillage choisi garantisse un nombre d'éléments suffisant selon toutes les directions. Afin de déterminer le maillage du disque nécessaire, on considère le cas du disque seul, sans substrat de silicium, et auquel la condition limite utilisée sur la surface inférieure est une condition libre. On réalise la simulation sur l'intervalle de fréquence $[0.01, 1.00]$ GHz avec un pas de 10 MHz pour différentes tailles maximales des éléments $l_{ele} = h_D/n$ avec $n \in \mathbb{N}$ compris dans l'intervalle $[1, 10]$. On garantit ainsi la présence d'au moins n éléments selon l'épaisseur du disque. Pour le spectre s_n obtenu pour n , on calcule le changement par rapport à celui obtenu pour $n - 1$ selon l'erreur

$$\epsilon_n = \sum \sqrt{(s_n - s_{n-1})^2}. \quad (3.14)$$

Lorsque ϵ_n tend vers 0, cela signifie que la réduction de la taille des éléments, et donc l'ajout d'éléments, ne permet pas d'améliorer les résultats. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.30. On note qu'à partir de $n = 5$, les spectres obtenus ne varient que très peu. Or, ajouter des éléments augmente le nombre de degrés de libertés des simulations et donc leur coût en calculs. Il s'agit donc de faire un compromis. On utilisera donc un maillage pour le disque présentant une taille maximale d'éléments de $l_{ele} = h_D/5 = 20$ nm. Ce choix est d'ailleurs similaire à celui fait dans [32].

Disque Seul

On s'intéresse dans un premier temps au cas d'un disque seul, sans le substrat de silicium. Différentes conditions aux limites peuvent être imposées à la surface inférieure du disque. On peut ainsi étudier l'impact sur les modes propres du disque et leurs fréquences en fonction de ces conditions aux limites. On impose tout d'abord une condition limite libre à la surface inférieure. Le spectre obtenu est présenté sur la figure 3.31 a). On peut y observer différents pics, chacun d'entre eux correspondant à un mode propre du disque présentant une composante normale à la surface supérieure non nulle sur la partie éclairée par le faisceau sonde. Les déformées modales de certains de ces modes sont représentées sur la figure 3.32.

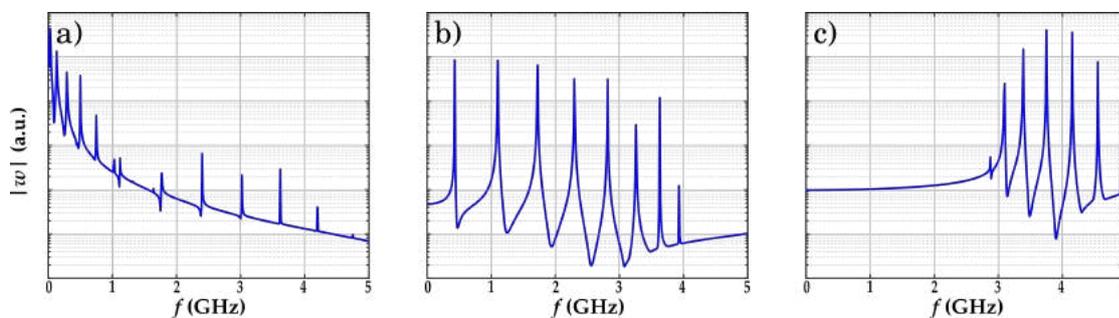


FIGURE 3.31 – Spectres obtenus par simulation sur un disque d'or seul pour différentes conditions limites à sa surface inférieure : a) libre, b) appui plan et c) encastré. Chaque spectre présente des pics correspondant aux modes propres du disque excités et détectés. Les modes et la gamme de fréquence où on les trouve ne sont pas les mêmes pour les différentes conditions aux limites.

Le spectre obtenu sur le disque lorsque l'on impose à la surface inférieure une condition d'encastrement, s'exprimant comme un déplacement nul sur toute la surface, est représenté sur le disque 3.31 c).

De manière similaire au disque libre, on relève un grand nombre de pics assimilables aux modes propres du disque. Toutefois, les fréquences de ces pics sont dans ce cas beaucoup plus importantes. Aucun pic n'est détecté en-dessous de 2.88 GHz. En s'intéressant aux déformées modales pour ce disque, il est possible d'associer certains modes à ceux déjà identifiés pour le disque libre. Le changement de condition limite a donc rendu impossible l'excitation, et la détection de certains modes, et a agi comme un ajout de rigidité pour d'autres.

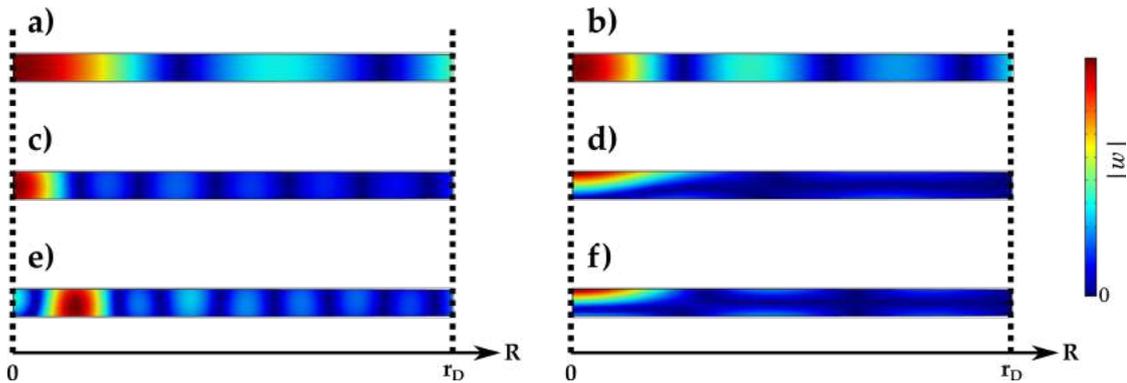


FIGURE 3.32 – Déformées modales obtenues par simulations d'un disque seul avec des conditions limites libres à a) 0.13 GHz, b) 0.29 GHz, c) 1.03 GHz, d) 1.12 GHz, e) 1.64 GHz et f) 1.77 GHz.

Un troisième cas intéressant est celui d'un disque sur un appui-plan. La condition limite imposée à la surface inférieure cette fois implique que seule la composante normale à cette surface du champ de déplacement soit nulle. Le spectre alors obtenu est introduit sur la figure 3.31 b). Une nouvelle fois, on retrouve des pics mais à des fréquences plus élevées que celles du disque libre, mais moins que celles du disque encasté.

Influence des paramètres des faisceaux pompe et sonde

On peut profiter de cette étude numérique pour s'intéresser facilement à l'impact que peuvent avoir les paramètres des faisceaux pompe et sonde, simulés par les fonctions F_p et F_s . On considère pour cela le disque libre sur l'intervalle de fréquence $[0.01, 1.00]$ GHz avec un pas de 10 MHz.

On s'intéresse dans un premier temps à l'influence de la taille du faisceau pompe. On fait varier pour cela la valeur de σ_r entre 62.5 nm et 2.0 μm . Sur la figure 3.33 a), l'allure de F_p est représentée pour ces différentes valeurs. Les spectres mesurés pour chacune de ces fonctions sont représentés sur la figure 3.33 b). Afin de ne s'intéresser qu'à l'influence de la taille de la pompe uniquement, on ne considère pas la sonde. Le déplacement normal à la surface n'est donc pas pondéré par la fonction F_S .

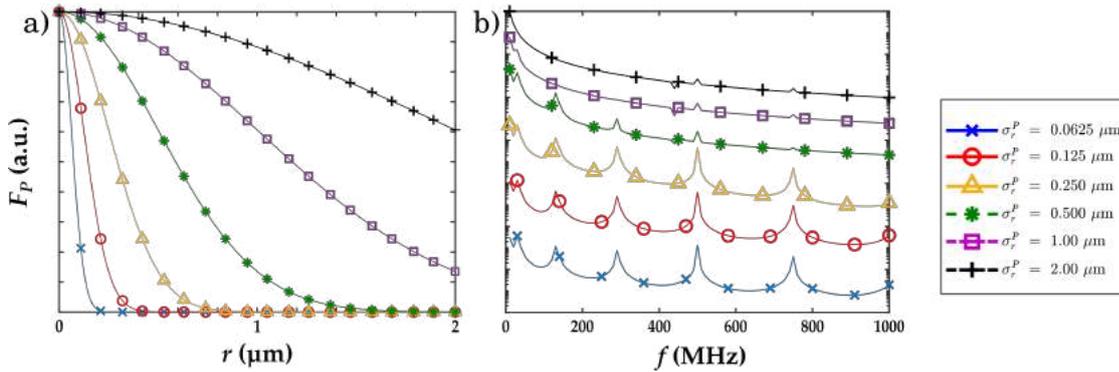


FIGURE 3.33 – a) Profil de la fonction F_p pour différentes valeurs de σ_r^p . b) Spectres obtenus par simulation sur un disque seul libre pour chacun des profils de la fonction F_p . Chaque spectre est décalé par une composante continue. Lorsque le disque est excité à l'aide d'une tache focale plus grande, par un σ_r^p plus important, les modes à plus hautes fréquences sont moins bien excités.

On observe ainsi que lorsque σ_r^p augmente, l'intensité des pics diminue par rapport au fond continu. Ainsi, le pic du mode à 130 MHz n'est ainsi plus détectable pour $\sigma_r^p \geq 1.0 \mu\text{m}$. De même pour les pics à 30 MHz et à 290 MHz. Les intensités des pics à 500 MHz et 750 MHz sont également très diminuées. Les modes d'ordre supérieurs ne sont plus excités lorsque le disque entier est éclairé par le faisceau pompe.

L'influence de la taille du faisceau sonde, déterminée dans notre étude par σ_r^S , est beaucoup moins importante. Tous les modes excités présentent un ventre en $r = 0 \mu\text{m}$. Par conséquent, tant que le faisceau sonde est centré en $r_0^S = 0 \mu\text{m}$, tous les modes excités peuvent être détectés. Ce n'est toutefois pas le cas si le faisceau sonde est désaxé du centre du disque. La figure 3.34 présente les spectres simulés lorsque le faisceau sonde est décalé le long du rayon pour deux cas limites de la taille de la sonde : $\sigma_r^S = 10 \text{ nm}$ et $\sigma_r^S = 1 \mu\text{m}$. Afin de garantir l'excitation de tous les modes, le disque a été au préalable excité avec une largeur du faisceau pompe de $\sigma_r^p = 62.5 \text{ nm}$.

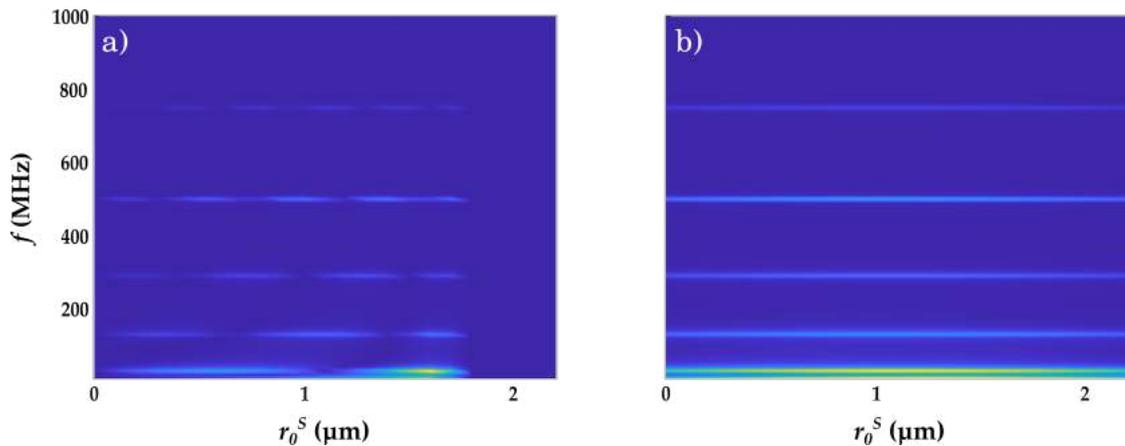


FIGURE 3.34 – a) Spectres simulés pour différentes positions centrales r_0^S du faisceau sonde d'une largeur de $\sigma_r^S = 10$ nm. b) Spectres simulés pour différentes positions centrales r_0^S du faisceau sonde d'une largeur de $\sigma_r^S = 1$ μ m. L'utilisation d'un faisceau sonde de largeur plus petite permet d'être sensible aux ventres et noeuds des modes.

Les spectres obtenus lorsque la largeur du faisceau sonde est faible, figure 3.34 a), montrent une dépendance à la position centrale r_0^S du faisceau. Pour chacun des modes, la variation d'intensité du pic de ce mode en fonction de r_0^S reproduit la variation de la composante normale du champ de déplacement visible sur la déformée du mode. En effet, dans ce cas, le faisceau sonde est suffisamment peu large par rapport aux ventres et nœuds des différents modes.

Par contre, cet effet n'est plus présent lorsque le faisceau sonde est beaucoup plus large, comme le mettent en évidence les spectres présentés sur la figure 3.34 b). D'ailleurs, dans ce cas, le faisceau sonde est si grand que même lorsque la position centrale n'est plus positionnée sur le disque, soit $r_0^S > 1.7$ μ m, les différents modes sont encore détectés.

Au final, tel qu'attendu, un faisceau pompe moins grand permet l'excitation de modes présentant des fréquences plus hautes. Un faisceau sonde plus petit permet quant à lui d'observer directement les déformées modales des modes.

Importance de la couche d'adhésion de Chrome

Comme évoqué dans la partie présentant la synthétisation des échantillons 3.2, une fine couche de chrome est déposée sur le wafer de silicium avant la couche d'or. Celle-ci permet de garantir une meilleure adhésion de l'or sur le substrat de silicium.

Or, une récente étude [74] a mis en évidence la possibilité de moduler les fréquences des modes propres en modifiant l'épaisseur de la couche d'adhésion entre des nanodisques d'or et leur substrat. Dans cette étude, le métal utilisé pour améliorer l'adhérence est du titane et non du chrome. Il reste néanmoins important de s'intéresser à l'impact de la couche de chrome sur les modes des disques étudiés. On réalise pour cela des simulations d'un disque seul avec des conditions limites libres sur toutes ses surfaces, composé d'une couche d'or d'une épaisseur de $h_D = 100$ nm et d'une couche de chrome de h_{Cr} . On fait varier celle-ci de 0 à 100 nm par pas de 10 nm. Les propriétés des matériaux sont celles fournies par Comsol et détaillées dans le tableau 3.1. Les spectres pour chacune de ces épaisseurs sont simulés et présentés sur la figure 3.35 b). Le spectre obtenu par simulation sur le disque seul et libre en l'absence de la couche de chrome est rappelé sur la figure 3.35 a).

Les résultats présentés sur la figure 3.35 b) mettent en évidence que les fréquences des différents modes du disque augmentent avec l'épaisseur de la couche de chrome h_{Cr} . Ainsi, le mode identifié à 0.29 GHz en l'absence de la couche de chrome est retrouvé à 0.56 GHz pour $h_{Cr} = 50$ nm et à 0.80 GHz pour $h_{Cr} = 100$ nm. La variation de fréquence due à la couche de chrome est d'autant plus importante que la fréquence du mode est haute en l'absence du chrome. Or, dans notre étude, les modes excités et détectés présentent des fréquences de l'ordre de 2 GHz ou moins. De plus, la couche de chrome utilisée est de l'ordre de 10 nm. Les variations de fréquences obtenues par simulations sur l'intervalle de fréquences considéré sont de l'ordre de 100 MHz. C'est la raison pour laquelle on néglige lors de cette étude l'impact de la couche de chrome.

3.5.3 Comparaison des résultats numériques et expérimentaux

On considère maintenant le substrat en plus du disque. On peut ainsi comparer les résultats calculés à l'aide des simulations par éléments finis à ceux obtenus expérimentalement.

En l'absence de sous-gravure des disques

Le spectre obtenu par simulation lorsque le disque n'est pas sous-gravé, i. e. lorsque le disque est entièrement en contact avec le silicium, est présenté sur la figure 3.36 a).

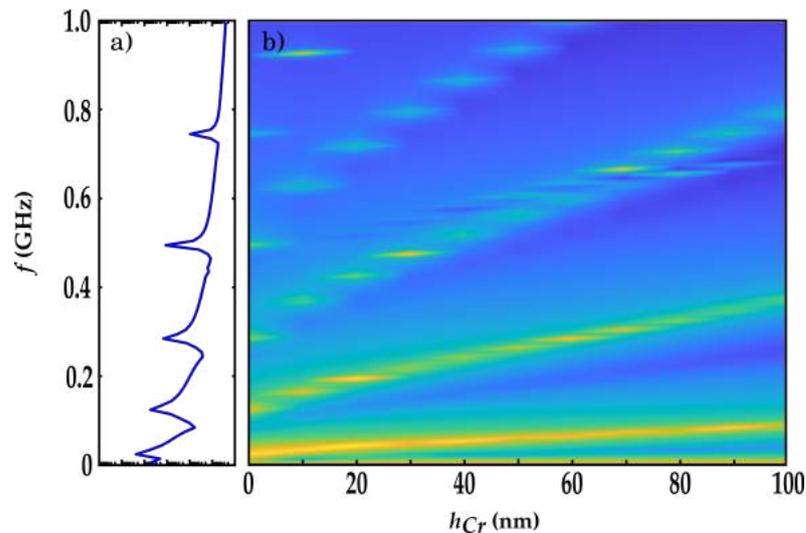


FIGURE 3.35 – a) Spectre simulé pour un disque libre. b) Spectres simulés pour un disque libre présentant une couche de chrome de h_{Cr} de différentes épaisseurs sous la couche d'or de 100 nm.

Ce spectre présente deux pics à 1.98 et 2.52 GHz respectivement. Un pic plus large centré à 1.32 GHz et d'intensité moins grande est également identifiable. Les déformées modales de ces trois modes sont représentées sur la figure 3.37 en valeur absolue de la composante normale à la surface du champ de déplacement. On note que ce spectre est différent de ceux obtenus sur le disque seul, figures 3.31. Cela met en évidence l'impact du substrat sur les modes du disque mais également que l'interaction entre le disque et son support est plus complexe que celles simulées sur le disque seul par un changement des conditions aux limites. Le spectre 3.36 a) se rapproche néanmoins de celui obtenu avec une condition d'appui-plan, figure 3.31 b), au regard des fréquences des différentes composantes. Les cas d'un disque libre ou encastré peuvent être considérés comme les cas limites de l'étude.

Le spectre obtenu expérimentalement sur un disque complètement supporté est représenté sur la figure 3.36 c). On rappelle que ce spectre présente trois composantes à respectivement 1.2, 1.9 et 2.5 GHz. Par conséquent, les résultats calculés à l'aide de simulations sont cohérents avec les résultats expérimentaux et valident donc l'utilisation de celles-ci pour l'étude vibrationnelle des disques. Dans la suite de cette étude on ne s'intéressera pas aux hauteurs relatives des différentes composantes des spectres mais aux fréquences de celles-ci.

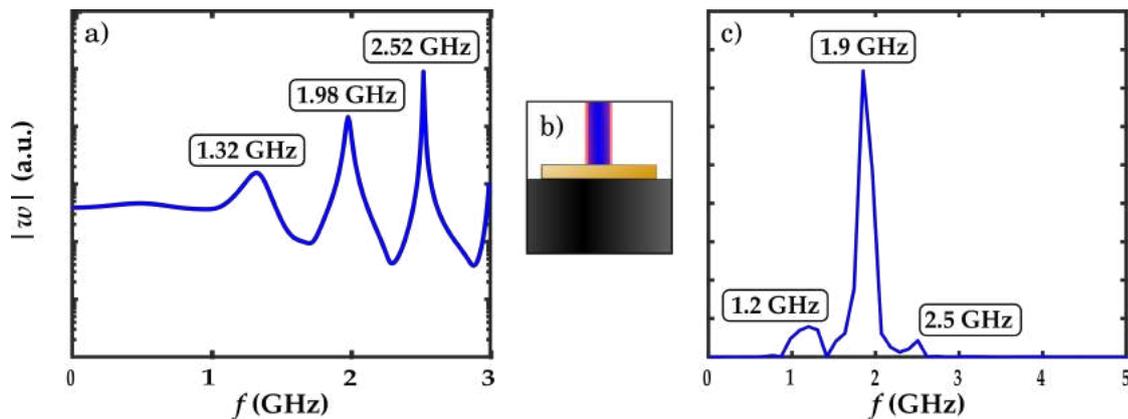


FIGURE 3.36 – a) Spectre obtenu par simulation sur un disque d’or entièrement en contact avec le substrat. b) Schéma de la géométrie considérée. c) Spectre obtenu expérimentalement sur un disque d’or non sous-gravé.

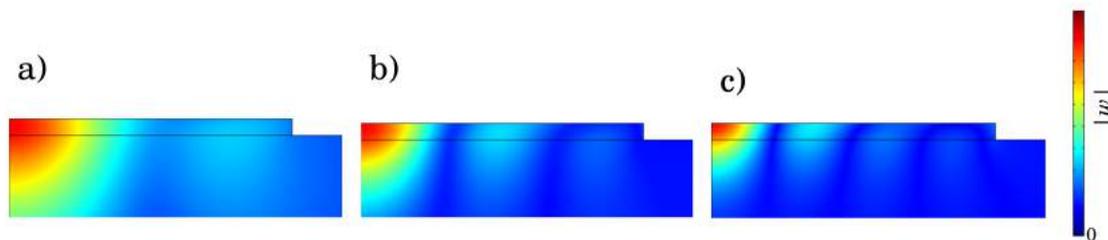


FIGURE 3.37 – Déformées modales représentées en valeur absolue du déplacement normal sur un disque sur substrat non sous-gravé à a) 1.32 GHz b) 1.98 GHz et c) 2.52 GHz. On peut identifier sur ces déformées respectivement 2, 3 et 4 ventres. Celui situé au centre du disque, où il est excité, présente le maximum de déplacement.

Influence de la sous-gravure des disques

L’utilisation de simulations pour l’étude des vibrations des disques étant validée, on propose d’utiliser celles-ci afin de s’intéresser à l’impact de la gravure du silicium sur les modes radiaux du disques. Pour cela, on réalise des simulations pour différentes valeurs du rayon de gravure r_G , de 0.1 à 1.6 μm par pas de 0.1 μm . Pour chacune de ces simulations, le spectre est calculé. Les fréquences des différents modes sont extraites de ces spectres par identification des pics qu’ils présentent. A chacune de ces fréquences, la déformée modale du mode correspondant est calculée et on identifie les nombres de nœuds et ventres présentés. On peut ainsi suivre l’évolution en fréquence d’un mode en fonction du rayon de gravure.

La figure 3.38 b) introduit l'ensemble des fréquences pour lesquelles ce travail a pu être réalisé. Les spectres calculés pour les disques libre et complètement supporté sont également rappelés sur les figures 3.38 a) et c) pour comparaison.

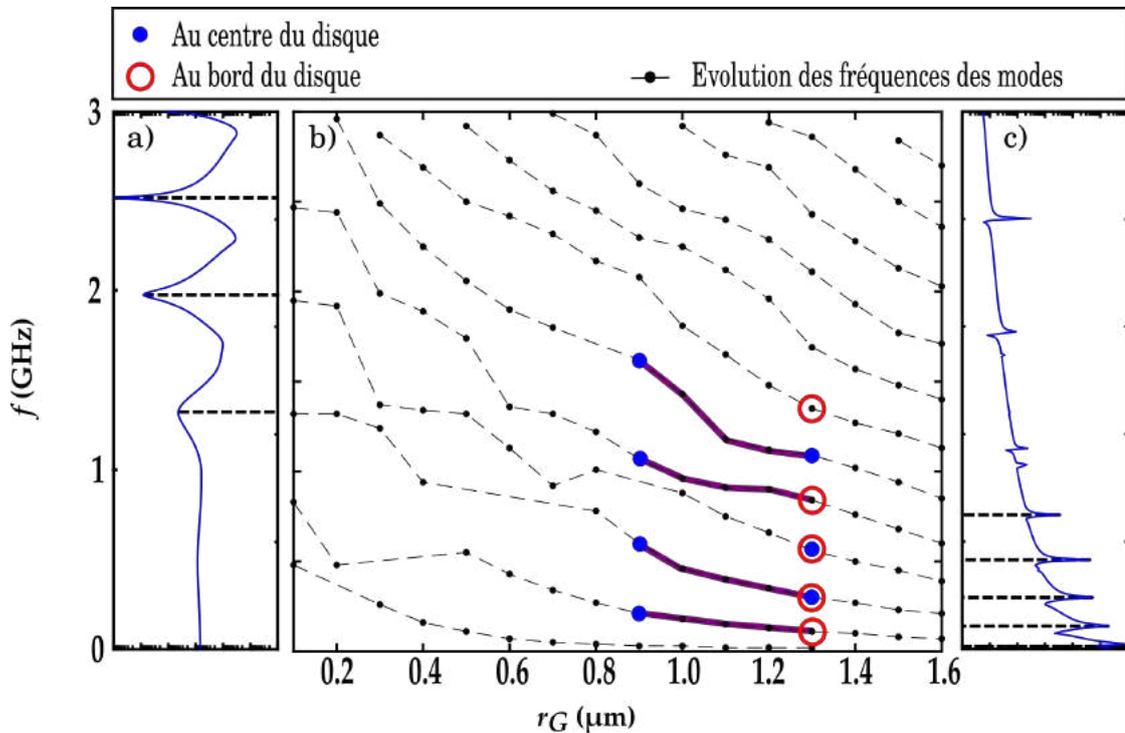


FIGURE 3.38 – a) Spectre simulé sur un disque sur un substrat non sous-gravé. b) Fréquences des modes en fonction du rayon de gravure du disque identifiées d'une part sur les spectres calculés par simulations et d'autre part expérimentalement. c) Spectre obtenu sur un disque seul avec la condition limite libre.

Les résultats représentés sur la figure 3.38 b) mettent en évidence que la fréquence d'un mode diminue à mesure que le rayon de gravure augmente. Cette évolution est cohérente avec les observations faites sur les spectres dans la partie 3.5.2 : les principales fréquences relevées sur le spectre d'un disque complètement supporté sont plus élevées que celles déterminées sur un disque libre. Le spectre obtenu sur un disque est donc directement dépendant de son rayon de gravure. Un mode que l'on peut identifier à 2.87 GHz pour un rayon de gravure de 0.3 μm peut être identifié à 1.21 GHz lorsque $r_G = 1.5 \mu\text{m}$. Les déformées modales de ce mode pour différentes valeurs du rayon de gravure sont représentées sur la figure 3.39.

Sur chacune de ces déformées, on peut identifier 6 nœuds et 7 ventres. On note également que l'on retrouve le maximum d'amplitude du déplacement normal au centre du disque, à l'endroit où le disque est excité.

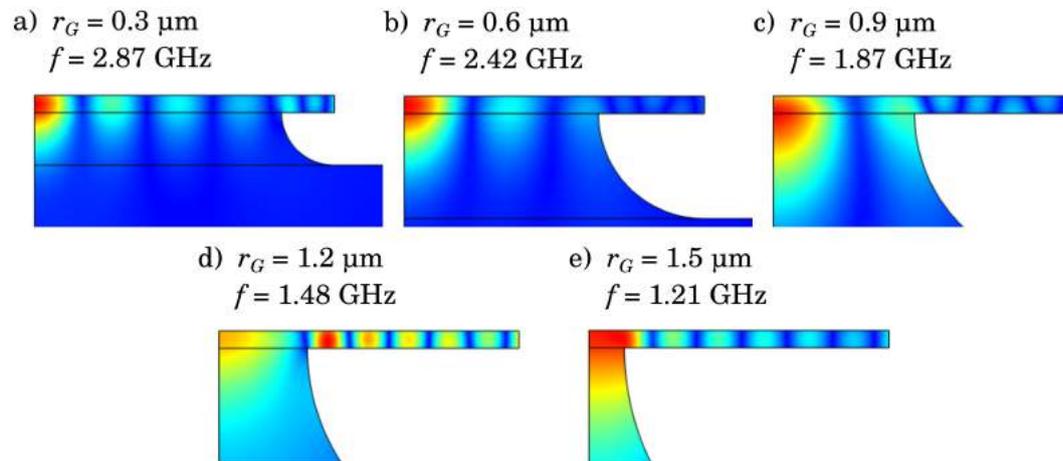


FIGURE 3.39 – Déformées modales d'un même mode présentant 6 nœuds et 7 ventres pour différents rayons de gravure. Ces déformées sont représentées en fonction de la valeur absolue de la composante normale du champ de déplacement. La fréquence du mode diminue à mesure que le rayon de gravure augmente : a) ($r_G = 0.3 \mu\text{m}$, $f = 2.87 \text{ GHz}$), b) ($r_G = 0.6 \mu\text{m}$, $f = 2.42 \text{ GHz}$), c) ($r_G = 0.9 \mu\text{m}$, $f = 1.87 \text{ GHz}$), d) ($r_G = 1.2 \mu\text{m}$, $f = 1.48 \text{ GHz}$) et e) ($r_G = 1.5 \mu\text{m}$, $f = 1.21 \text{ GHz}$).

On s'intéresse maintenant expérimentalement à la dépendance du spectre d'un disque à son rayon de gravure. On réalise pour cela des mesures au centre de deux disques présentant des temps de gravure différents. Les spectres ainsi obtenus sont représentés sur les figures 3.40 a) et b).

On peut identifier sur le premier spectre, figure 3.40 a), une composante principale à 0.6 GHz ainsi que trois autres composantes à 0.2, 1.0 et 1.6 GHz. Le second spectre, figure 3.40 b), présente quant à lui trois composantes à 0.3, 0.6 et 1.0 GHz. Les spectres obtenus sur des disques présentant des rayons de gravure différents sont donc également différents. De plus, on note que la composante principale du second spectre présente une fréquence plus faible que celle du premier spectre. Or, le second disque présente un temps de gravure plus important, et donc un rayon de gravure r_G plus faible. On retrouve donc la tendance observée numériquement.

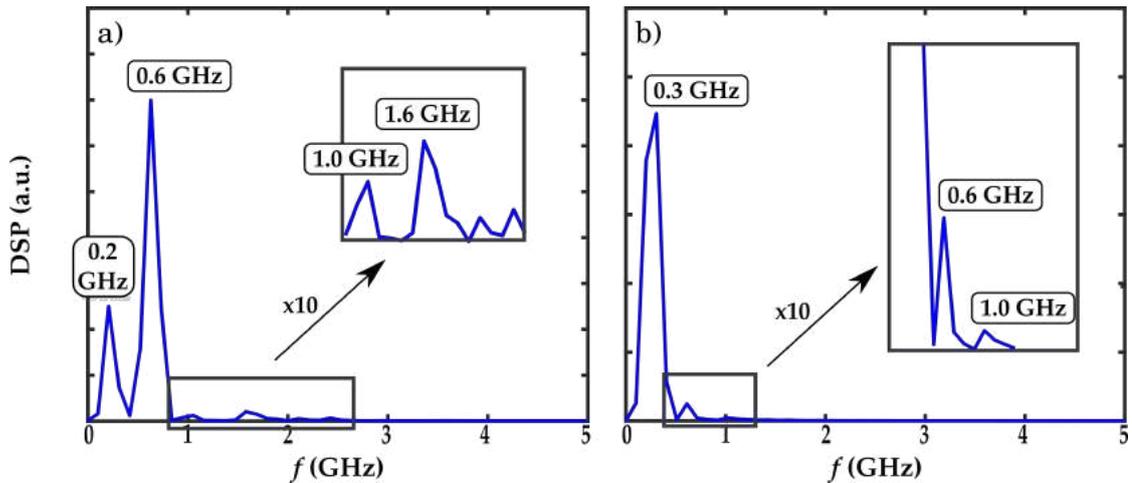


FIGURE 3.40 – Spectres des oscillations aux basses fréquences relevées sur la variation de réflectivité mesurées a) sur un disque peu sous-gravé ($r_G = 0.9 \mu\text{m}$) b) sur un disque très sous-gravé ($r_G = 1.3 \mu\text{m}$).

On cherche à identifier les valeurs de r_G des deux disques en comparant les fréquences des composantes des spectres expérimentaux à celles des spectres calculés par simulations. On note ainsi que pour $r_G = 0.9 \mu\text{m}$, le spectre calculé présente des composantes à 0.21, 0.60, 1.01 et 1.62 GHz, soit des fréquences proches de celles identifiées sur le spectre 3.40 a) du premier disque. On identifie ainsi pour ce disque un rayon de gravure de $0.9 \mu\text{m}$. De la même manière, on identifie un rayon de gravure de $1.3 \mu\text{m}$ pour le disque sur lequel le spectre 3.40 b) a été acquis. On retrouve en effet pour cette valeur de r_G des composantes à 0.30, 0.56 et 1.09 GHz sur le spectre calculé. Les fréquences identifiées sur les spectres 3.40 a) et b) sont reportées sur la figure 3.38 b). On peut alors observer que certains des modes se trouvent sur la même branche. Certains modes sont donc mesurés sur les deux disques, la différence de sous-gravure provoquant un décalage en fréquence de ceux-ci.

Une nouvelle mesure est réalisée désaxée du centre sur le disque dont le rayon de gravure a été identifié à $1.3 \mu\text{m}$. Le nouveau spectre obtenu expérimentalement sur le bord de ce disque est représenté sur la figure 3.41 b). Pour comparaison, le spectre obtenu lorsque les faisceaux pompe et sonde sont focalisés au centre du même disque est rappelé sur la figure 3.41 a).

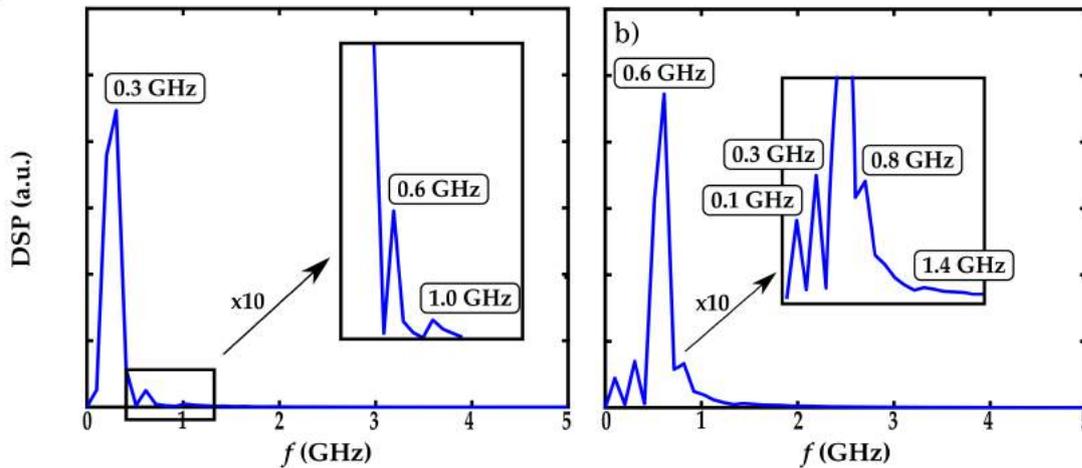


FIGURE 3.41 – Spectres des oscillations aux basses fréquences relevées sur la variation de réflectivité mesurées sur un disque très sous-gravé ($r_G = 1.3 \mu\text{m}$) a) au centre de ce disque et b) sur le bord du disque.

On retrouve sur le spectre 3.41 b), les composantes à 0.3 et 0.6 GHz déjà identifiées sur le spectre 3.41 a). La composante à 1.0 GHz n'est pas retrouvée, toutefois de nouvelles composantes sont observées à 0.1, 0.8 et 1.4 GHz. On retrouve donc sur le bord du disque des modes déjà observés au centre du disque mais également des modes supplémentaires. La réalisation de mesures sur le bord du disque où celui-ci n'est pas en contact avec le substrat de silicium permet de mesurer un contenu fréquentiel plus important. Cette observation est cohérente avec les observations faites des résultats présentés sur la figure 3.28. Le spectre calculé numériquement pour un rayon de gravure de $0.9 \mu\text{m}$ présente des fréquences à 0.11, 0.84 et 1.35 GHz proches des composantes supplémentaires obtenus lorsque les faisceaux sont désaxés du centre du disque. Cela confirme l'identification de ce rayon de gravure pour ce disque réalisée par comparaison des spectres expérimentaux et numériques. Ces nouvelles fréquences sont ajoutées sur la figure 3.38 b).

Identification du rayon de gravure

Au cours de l'étude présentée dans ce chapitre, trois méthodes ont été employées afin de déterminer les rayons de sous-gravure des disques étudiés. Dans la partie 3.2.2, ces rayons ont été mesurés à partir d'images prises au MEB du profil des échantillons. Les rayons de gravure des disques ont également pu être retrouvés en reconstruisant les courbes de profil du facteur de qualité du mode d'épaisseur le long du rayon du disque dans la partie 3.4.5.

Enfin, dans la partie 3.5.3, les spectres obtenus expérimentalement sont comparés à ceux calculés par simulations afin de retrouver r_G . Chacune de ces trois méthodes a été employée sur des disques provenant de deux échantillons ayant subi des temps de gravure différents. Les différents résultats ainsi obtenus sont rappelés dans le tableau 3.2.

Méthode	Echantillon 1	Echantillon 2
Image du profil au MEB	0.8 μm	1.5 μm
Évaluation Q	0.85 μm	1.41 μm
Spectres	0.9 μm	1.3 μm

TABLE 3.2 – Tableau recensant les valeurs des rayons de gravure obtenues par les différentes méthodes sur les deux échantillons

Les valeurs rappelées dans le tableau 3.2 mettent en évidence que les trois méthodes utilisées pour déterminer r_G fournissent dans le cas de l'échantillon 1 des résultats similaires. Ceux obtenus pour l'échantillon 2 présentent quant à eux une plus grande dispersion. Afin de vérifier ces résultats, les disques d'or sont retirés des deux échantillons par gravure humide. Il est alors possible d'observer au MEB directement la surface supérieure du cône du silicium, correspondant à la surface de contact. Pour chacun des deux échantillons, le rayon moyen de cette surface est mesuré pour plusieurs cônes pris aléatoirement sur toute la surface de l'échantillon.

La figure 3.42 a) présente ainsi un histogramme décrivant la dispersion des valeurs de r_G mesurées sur l'échantillon 1. La dispersion observée peut être décrite par une loi gaussienne de moyenne 0.85 μm et d'écart-type 0.06 μm . Les valeurs des rayons de gravure identifiées par les trois méthodes sont donc cohérentes avec la dispersion directement observable sur l'échantillon. La figure 3.42 b) présente une image obtenue au MEB de la surface supérieure de l'un des cônes pour lequel on identifie $r_G = 0.89 \mu\text{m}$. On note que la surface supérieure de celui-ci n'est pas tout à fait circulaire et tend vers un carré. La base du cône elle quant à elle circulaire. Cela signifie que la gravure du silicium n'est pas tout à fait isotrope tout au long du processus.

L'échantillon 2 présente quant à lui une très grande dispersion. Les figures 3.42 c) et e) présentent les cas limites observés. Pour le premier, le temps de gravure aura été trop important ce qui signifie que le rayon de gravure est plus important que le rayon du disque. Par conséquent, on observe une pointe à la place d'un cône. Le disque ayant été complètement sous-gravé, celui-

ci est certainement tombé lors de l'étape de la gravure.

A l'inverse, sur la figure 3.42 e), on peut mesurer un rayon de gravure moyen de $1.14 \mu\text{m}$. Le long de l'échantillon 1, le rayon de gravure augmente depuis cette valeur jusqu'à atteindre r_D . On n'a donc pas réalisé un histogramme de la dispersion des rayons de gravure. On notera simplement que les valeurs données dans le tableau sont comprises dans l'intervalle de valeurs de r_G observées au MEB sur l'échantillon. On retrouve également sur les figures 3.42 c), d) et e) que la gravure n'est pas parfaitement isotrope.

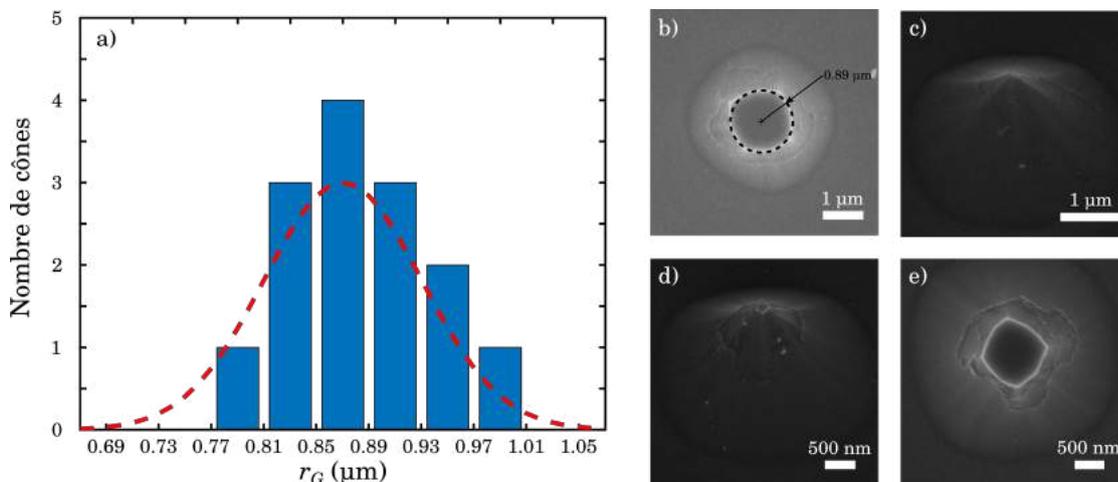


FIGURE 3.42 – a) Distribution des rayons de gravure de l'échantillon 1. Image obtenue au MEB : b) surface supérieure d'un cône de silicium prise sur l'échantillon 1 permettant d'estimer $r_G = 0.89 \mu\text{m}$. c), d) et e) Images prises au MEB de cônes de silicium sur l'échantillon 2. c) Le disque a été complètement sous-gravé et le cône est devenu une pointe. d) et e) cône de silicium présentant des rayons de gravure de $r_G = 1.64 \mu\text{m}$ et $r_G = 1.14 \mu\text{m}$.

La dispersion observée sur l'échantillon 2 met en avant la difficulté à maîtriser le processus de fabrication des structures. La vitesse de gravure étant élevée, celle-ci est réalisée en quelques secondes. Une variation même faible du temps de gravure influence grandement r_G qui ne peut être mesuré qu'après la gravure. L'utilisation de telles structures pour la génération acoustique nécessiterait donc d'affiner le processus de fabrication afin de contrôler finement la taille d'émission.

3.5.4 Excitation du disque par le substrat

Si l'excitation du disque par le faisceau pompe permet la génération d'ondes dans le substrat, il est également possible de s'intéresser à l'excitation d'un disque par une onde provenant du substrat. Pour cela, on retourne l'échantillon au sein du montage schématisé sur la figure 3.5 : le faisceau pompe est focalisé sur la couche d'aluminium quand le faisceau sonde éclaire la surface présentant les disques d'or, schémas figures 3.43 b) et c).

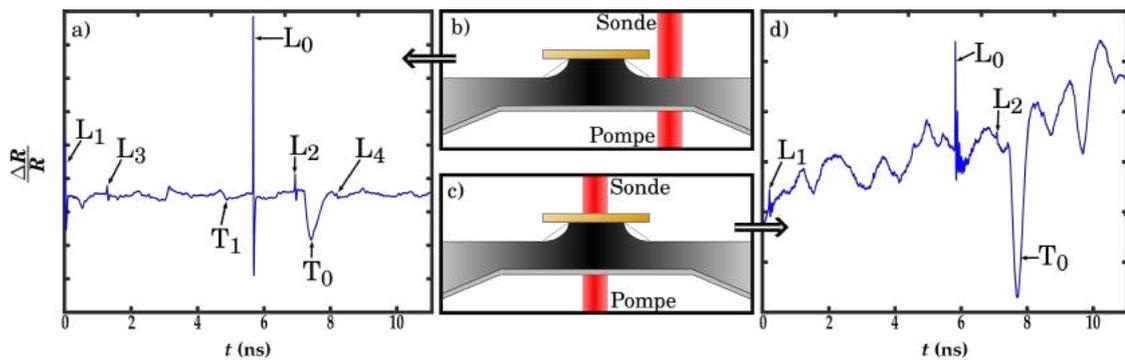


FIGURE 3.43 – Variation de réflectivité mesurée en transmission lorsque le faisceau pompe est placé a) sur le silicium d) sur un disque d'or. Schéma des mesures b) sur le silicium c) sur le disque.

La figure 3.43 a) présente la variation de réflectivité mesurée lorsque les faisceaux pompe et sonde sont alignés au niveau de la membrane de silicium, loin des disques. Un nombre important d'échos peuvent être observés sur ce signal. Ceux-ci sont causés par les ondes se propageant dans la membrane et qui déforment la surface éclairée par le faisceau sonde. On distingue ainsi à 5.68 ns l'écho provoqué par l'onde longitudinale générée par le faisceau pompe au niveau de la couche d'aluminium et ayant traversé le silicium. Elle est identifiée sur le signal par L_0 . On trouve également les échos liés aux ondes longitudinales ayant réalisé m aller-retours dans la couche de silicium après avoir traversé une première fois la membrane et sont identifiés par L_m . On identifie de la même façon les échos correspondant aux ondes transverses sous la forme de T_m . On note que moins d'échos liés aux ondes transverses sont détectés. On remarque également que les échos ne sont pas mesurés dans l'ordre des m croissants. Cela est dû au temps nécessaire pour traverser la membrane de $30\ \mu\text{m}$ ($7.14\ \text{ns}$ pour une onde longitudinale se propageant à $8400\ \text{m s}^{-1}$ par exemple) et au taux de répétition du faisceau laser.

La variation de réflectivité mesurée lorsque les faisceaux sont alignés au niveau d'un disque est présentée sur la figure 3.43 d). On retrouve les échos L_0 , L_1 et L_2 ainsi que T_0 et T_1 . On observe également après les échos L_0 et L_1 des oscillations. Les oscillations extraites sont représentées sur la figure 3.44 a) et le spectre correspondant est introduit sur la figure 3.44 b). Ce dernier présente deux composantes à 16.3 et 36.6 GHz. Les facteurs de qualité de ces oscillations sont respectivement de 5.0 et 5.2. L'onde longitudinale se propageant dans le substrat de silicium a donc permis d'exciter le mode d'épaisseur étudié dans la partie 3.4 ainsi que sa première harmonique. Cette dernière n'a pas été observée lorsque les faisceaux pompe et sonde sont focalisés sur le disque. Cela peut s'expliquer par le fait que l'excitation directe de l'or par le faisceau pompe est volumique du fait de la grande diffusivité des électrons au sein de ce métal. Les oscillations observées après l'écho L_1 présentent les mêmes composantes. Aucune oscillation ne sort du bruit après l'écho L_2 mais cela peut s'expliquer par la très faible amplitude de ce dernier. On ne mesure pas non plus d'oscillation similaire après l'écho T_0 . Il semble donc qu'une onde transverse se propageant dans le substrat ne permette pas d'exciter les modes d'épaisseur pour des raisons de symétrie.

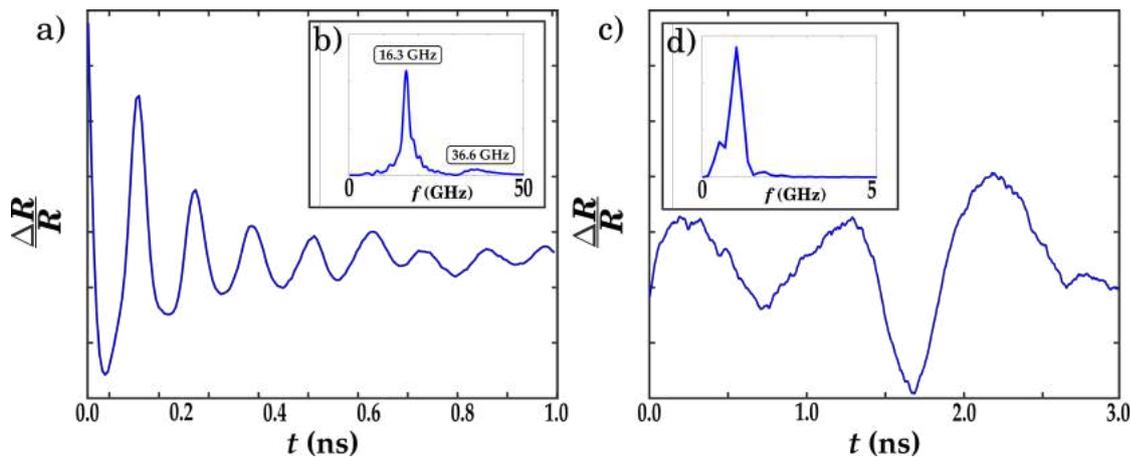


FIGURE 3.44 – a) Oscillations de $\Delta R/R$ détectées après l'écho L_0 . b) DSP de ces oscillations présentant deux composantes à 16.3 et 36.6 GHz. c) Oscillations basses fréquences de la variation de réflectivité détectées après T_0 . d) DSP de ces oscillations présentant 4 composantes à 0.5, 1.0, 1.8 et 2.3 GHz.

De plus grandes oscillations sont également visibles sur la figure 3.43 d), principalement après les échos T_0 et T_1 liés aux ondes transverses. Les oscillations mesurées après l'écho T_0 ainsi que leur spectre sont représentés sur les figures 3.44 c) et d). Ce dernier met en évidence une composante principale à 1.0 GHz. On distingue également des pics à 0.5, 1.8 et 2.3 GHz.

Il n'est toutefois pas possible à partir des mesures réalisées de savoir si ces oscillations dans le disque sont provoquées par l'onde transverse, l'onde longitudinale ou s'il s'agit d'une combinaison des deux. La réalisation de mesures sur des échantillons présentant une épaisseur de silicium plus importante pourrait permettre d'identifier les ondes à l'origine de ces oscillations. En effet, on augmenterait ainsi le temps entre la détection de L_0 et celle de T_0 permettant l'observation de la présence ou de l'absence d'oscillations entre ces deux échos.

Les échos mesurés sur un disque d'or présentent du retard par rapport à ceux mesurés sur le silicium. En effet, dans le premier cas, les ondes doivent parcourir la hauteur du disque ainsi que traverser celui-ci en plus avant d'être détectés. Le retard mesuré est ainsi de 147 ps. En prenant les vitesses des ondes longitudinales dans l'or polycristallin et du silicium selon l'axe [100] respectivement $v_{Au}^L = 3200 \text{ m s}^{-1}$ et $v_{Si[100]}^L = 8400 \text{ m s}^{-1}$, et en rappelant l'épaisseur nominale du disque de $h_D = 100 \text{ nm}$, on trouve une hauteur du cône de silicium de $h_C = 0.97 \text{ }\mu\text{m}$. Or, la gravure du silicium étant quasi-isotrope, cette hauteur peut être assimilée également au rayon de gravure. On a par conséquent $r_C = 0.97 \text{ }\mu\text{m}$ et $r_C = r_D - r_C = 1.7 - 0.97 = 0.73 \text{ }\mu\text{m}$.

Connaissant le rayon de gravure de cet échantillon, le spectre des larges oscillations représentées sur la figure 3.44 d) peut être comparé à celui obtenu par simulation pour $r_C = 1.0 \text{ }\mu\text{m}$. On observe sur ce dernier des composantes à 0.46, 0.96, 1.81 et 2.25 GHz, soit à des fréquences proches de celles mesurées expérimentalement. Les déformées modales, représentées en valeur absolue de la composante de déplacement selon l'axe z , sont données par la figure 3.45.

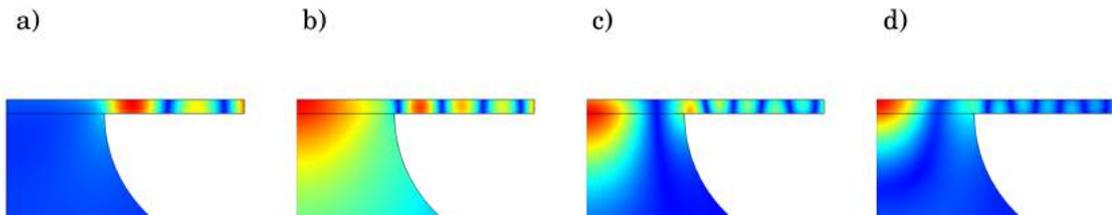


FIGURE 3.45 – Déformées modales calculées à a) 0.46 GHz, b) 0.96 GHz, c) 1.81 GHz et d) 2.25 GHz d'un disque présentant un rayon de gravure de $r_C = 1.0 \text{ }\mu\text{m}$ représentées en valeur absolue de la composante normale à la surface supérieure du disque du champ de déplacement

Les modes ainsi identifiés peuvent être comparés à ceux générés et détectés en focalisant les faisceaux pompe et sonde sur les disques et rapportés dans la partie 3.5.3 sur la figure 3.46 b). On note ainsi grâce aux résultats présentés dans la figure 3.38 b) que le mode identifié ici à 0.46 GHz sur la simulation ou 0.5 GHz expérimentalement correspond aux modes détectés à 0.6 et 0.3 GHz sur les disques peu gravés ($r_G = 0.9 \mu\text{m}$) et très gravés ($r_G = 1.3 \mu\text{m}$) respectivement. On ne retrouve néanmoins pas les modes identifiés par le biais des simulations à 1.81 et 2.25 GHz sur les spectres de ces disques. Il semble donc que l'excitation du disque et de ses modes propres par une onde acoustique provenant du substrat puisse exciter des modes similaires mais également des modes différents de ceux excités à l'aide du faisceau pompe. Une étude plus poussée de ce mode d'excitation de nanoparticules constitue donc une perspective intéressante à développer.

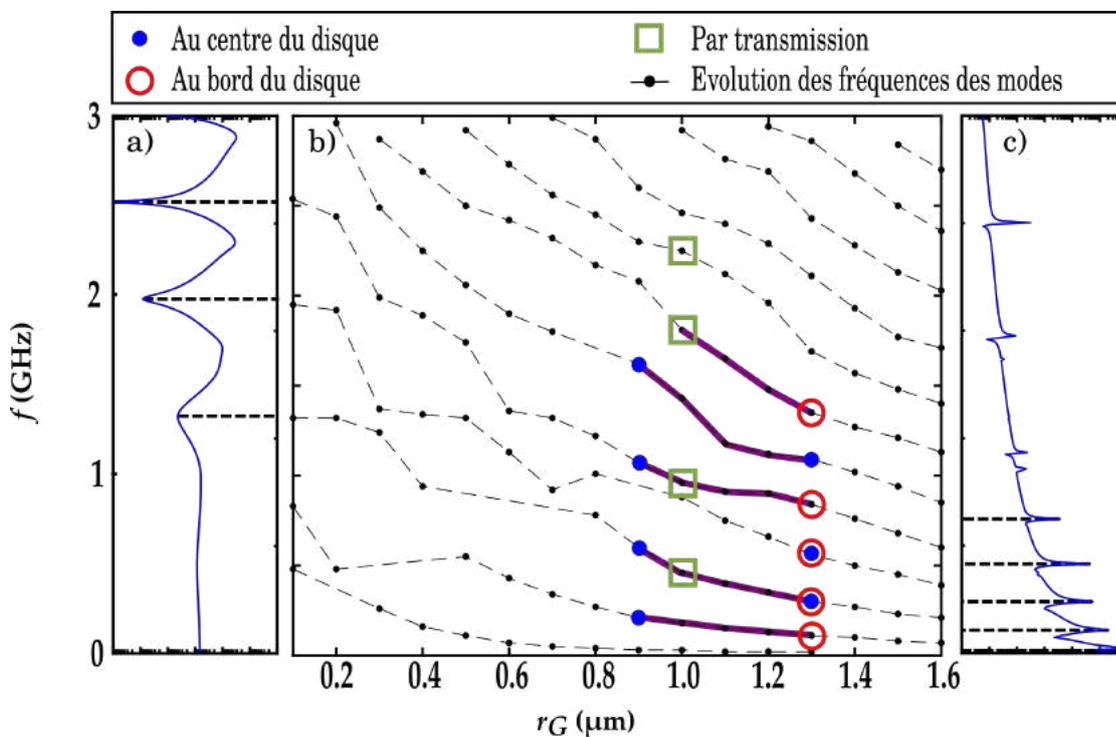


FIGURE 3.46 – a) Spectre simulé sur un disque sur un substrat non sous-gravé. b) Fréquences des modes en fonction du rayon de gravure du disque identifiées d'une part sur les spectres calculés par simulations et d'autre part expérimentalement. c) Spectre obtenu sur un disque seul avec la condition limite libre.

3.6 Conclusion

Au cours de ce chapitre, les résultats obtenus dans le cadre de l'étude vibrationnelle de disques d'or présentant une épaisseur nanométrique ont été présentés. Ces résultats ont récemment été publiés [83].

Des mesures par spectroscopie pompe-sonde ultrarapide résolue en temps ont permis d'identifier un mode d'épaisseur du disque présentant une fréquence autour de 16.8 GHz. En mesurant le facteur de qualité de ce mode le long du rayon de plusieurs disques présentant des sous-gravures différentes mais également sur des membranes d'or, nous avons mis en évidence l'impact important du substrat sur le temps de vie de ce mode. En effet, il a été montré qu'une proportion importante de l'énergie de ce mode est perdue par transmission au substrat. La surface de contact mais également le coefficient de réflexion depuis l'or vers le silicium a également pu être retrouvé expérimentalement à partir de ces mesures du facteur de qualité.

La réalisation de mesures sur des fenêtre temporelles plus longues ont également permis de s'intéresser aux modes radiaux de disques. Ceux-ci se trouvent dans une gamme de fréquences différente de celle des modes d'épaisseur du fait de l'important rapport de forme des disques étudiés. L'utilisation de simulations par éléments finis pour étudier les modes de disques en contact avec un substrat a pu être validée en comparant les résultats expérimentaux et numériques obtenus pour un disque complètement supporté. L'impact de la sous-gravure sur les modes radiaux des disques a ainsi pu être réalisé numériquement. Cette étude met notamment en avant une diminution des fréquences des différents modes à mesure que le rayon de gravure augmente. Les mesures réalisées sur des disques présentant des rayons de gravure différents ont confirmé cette variation.

La génération d'ondes par le mode d'épaisseur dans le substrat de silicium a été mise en évidence par la réalisation de mesures en profitant d'un montage expérimental en transmission. Ce mode dépend principalement de l'épaisseur du disque et des propriétés élastiques des matériaux le composant, cela ouvre la porte à la manipulation de la fréquence des ondes émises au travers de la conception des échantillons. De plus, la sous-gravure du disque permet de moduler la taille de la source d'émission sans modifier la longueur d'onde de l'onde émise. On espère ainsi pouvoir moduler la directivité de la source acoustique. Une première étude de l'influence du cône de silicium sur lesquels les disques reposent est réalisée au cours du chapitre 4.

Enfin, on a montré la possibilité d'exciter les modes - d'épaisseur et radiaux - du disque par le biais d'ondes générées dans le substrat de silicium. De plus, des modes supplémentaires par rapport à ceux observés lors de l'excitation du disque ont pu être mis en évidence.

La génération d'ondes par le disque et l'excitation de celui-ci par des ondes se propageant dans le substrat ouvre la possibilité d'imager le substrat sur lequel repose le disque. Toutefois, la méthode ici utilisée impose un grand nombre de contraintes. Tout d'abord, dans notre cas, les disques ont été synthétisés directement sur l'échantillon. On peut imaginer pouvoir se soustraire à cette contrainte en synthétisant les disques sur un substrat, les collecter dans une solution et les déposer in fine sur l'échantillon voulu. Mais dans ce cas, il est probable que le contact entre le disque et l'échantillon soit moins bon que celui obtenu lors de cette étude.

Si la synthèse du disque directement sur l'échantillon permet de maîtriser sa position, le disque ne pouvant être déplacé, la proportion du substrat pouvant être imagé est par conséquent limitée. Dans le but de passer outre cette limite, on s'intéresse dans le chapitre 4 à la possibilité d'utiliser des pointes AFM comme sources ponctuelles.

De telles nano-structures pourraient néanmoins être ajoutées à des structures d'ingénierie afin de participer au contrôle de santé intégré (CSI ou SHM pour *Structural Health Monitoring* en anglais) de celles-ci. La génération d'ondes dans le domaine des gigahertz permettrait d'accéder à une résolution nanométrique des structures suivies que les capteurs piézoélectriques communément utilisés dans le cadre de telles études ne permettent pas d'accéder.

Chapitre 4

Utilisation de sondes A.F.M. pour l'imagerie acoustique résolue en temps

4.1 Introduction

Depuis la fabrication du premier microscope à force atomique au milieu des années 1980, de nombreuses variantes et améliorations de cet outil ont été proposées. L'une de ces améliorations est l'utilisation d'un champ acoustique afin de réaliser des images des propriétés mécaniques et élastiques d'un échantillon [84]. Ce couplage a conduit au développement de nombreuses techniques différentes parmi lesquelles l'*Atomic Force Acoustic Microscopy* [85], la *Scanning Near-Field Ultrasound Holography* [86] ou encore la *Ultrasonic Force Microscopy* [87]. La possibilité de réaliser des images en trois dimensions avec une résolution nanométrique d'un échantillon et de détecter des défauts, ou encore des interfaces, sous la surface est particulièrement recherchée [88, 89].

Les différentes techniques classiques couplant acoustique et AFM reposent sur la mise en vibration du cantilever et/ou de l'échantillon étudié à l'aide de transducteurs piézoélectriques. Les fréquences mises en jeu sont donc de l'ordre des kHz voire des MHz. La mise en vibrations d'une partie du système permet d'extraire des informations sur les propriétés élastiques et mécaniques de l'échantillon en s'intéressant par exemple à la variation de la force de contact lorsque le microscope est en mode contact.

L'approche proposée au sein de ce chapitre et que l'on souhaite développer est différente. Au lieu de mettre en vibrations soit l'échantillon soit le cantilever afin d'extraire des informations, on génère des ondes acoustiques dans le cantilever à l'aide d'une impulsion laser en profitant de la couverture d'aluminium présente sur la sonde. Echantillon et sonde AFM sont mis en contact au niveau du bout de la pointe. Les caractéristiques et propriétés de l'échantillon peuvent alors être extraites en s'intéressant aux ondes acoustiques réfléchies et transmises au niveau de l'interface entre l'échantillon et la sonde. Le bout de la pointe présentant une taille caractéristique de l'ordre du nanomètre, on cherche à développer une technique permettant de réaliser une image en deux ou trois dimensions d'un échantillon.

4.2 Etude de cônes de silicium

Au cours du chapitre 3, il a été mis en évidence la possibilité d'exciter un micro-disque d'or à l'aide d'ondes acoustiques se propageant le long du cône de silicium sur lequel ce disque est posé. Le processus de fabrication, détaillé dans la partie 3.2, permet d'obtenir des cônes dont la surface supérieure est très faible. Si la gravure est suffisamment importante, il est même possible d'obtenir des pointes. Des images obtenues au microscope électronique à balayage de tels cônes très fins voire pointus ont été introduites sur la figure 3.42. De telles structures pourraient donc être utilisées comme sources acoustiques de tailles nanométriques pour exciter des nanoparticules mais également pour la réalisation d'images acoustiques à l'échelle nanométrique.

On s'intéresse donc à la propagation et notamment à la réflexion acoustique de telles structures. Un changement de comportement est notamment attendu lorsque le bout du cône présente une taille caractéristique inférieure aux longueurs d'ondes acoustiques générées par l'impulsion du faisceau pompe, soit de l'ordre de 150 nm. En effet, une variation de la géométrie peut être à l'origine de phénomènes particuliers, le plus connu étant sans doute la création de trous noirs acoustiques [90].

4.2.1 Echantillon étudié

Afin d'étudier l'impact de la taille du cône de silicium, on grave des cônes de silicium de différentes tailles. Le processus utilisé est similaire à celui détaillé pour l'obtention de disques d'or partiellement auto-suspendus dans la partie 3.2.2.

Afin de pouvoir s'intéresser au signal réfléchi par le bout d'un cône de silicium, ceux-ci sont gravés sur une fine membrane de silicium. Pour cela, on réalise une gravure chimique humide d'un wafer de silicium à l'aide d'hydroxyde de potassium. La membrane obtenue présente alors une épaisseur d'environ $10\ \mu\text{m}$. Toutefois, celle-ci peut varier localement.

Avant de procéder à la gravure du silicium pour obtenir les cônes, on réalise un dépôt d'une couche d'or structurée par lift-off. La surface supérieure présente des disques d'or de 5 , 10 et $15\ \mu\text{m}$ de diamètre ainsi que des numéros plus larges, environ $30\ \mu\text{m}$, servant à localiser plus facilement les cônes notamment en cas de gravure importante. Les cônes sont obtenus en réalisant une gravure quasi-isotrope du silicium à l'aide du même mélange d'acides que celui détaillé dans la partie 3.2.2.

L'or est enfin retiré par gravure chimique humide afin de ne conserver que les cônes. Finalement, une fine couche d'aluminium d'une épaisseur nominale de $100\ \text{nm}$ est déposée sur la surface inférieure de la membrane par évaporation thermique. La figure 4.1 présente une image obtenue au microscope électronique à balayage de l'échantillon après la gravure. On y distingue trois cônes pour trois tailles différentes. L'échantillon et la géométrie de l'expérience sont également schématisés sur la figure 4.2.

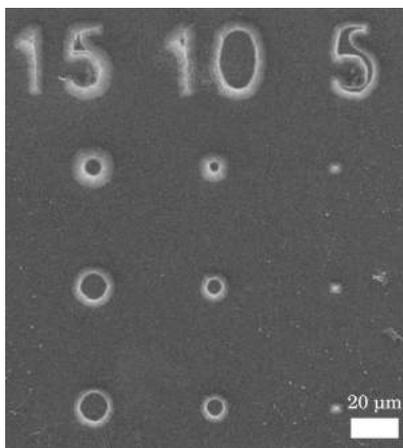


FIGURE 4.1 – Image prise au MEB de la surface supérieure d'un échantillon. On peut observer les nombres 5, 10 et 15 ainsi que sous chacun d'entre eux trois cônes de trois tailles différentes

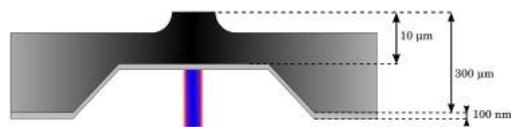


FIGURE 4.2 – Schéma de l'échantillon utilisé et de la géométrie des mesures réalisées

4.2.2 Montage expérimental

Afin d'étudier la propagation au sein des cônes de silicium, on utilise le même montage expérimental que celui utilisé pour l'étude des disques d'or. Le schéma de ce montage est rappelé sur la figure 4.3.

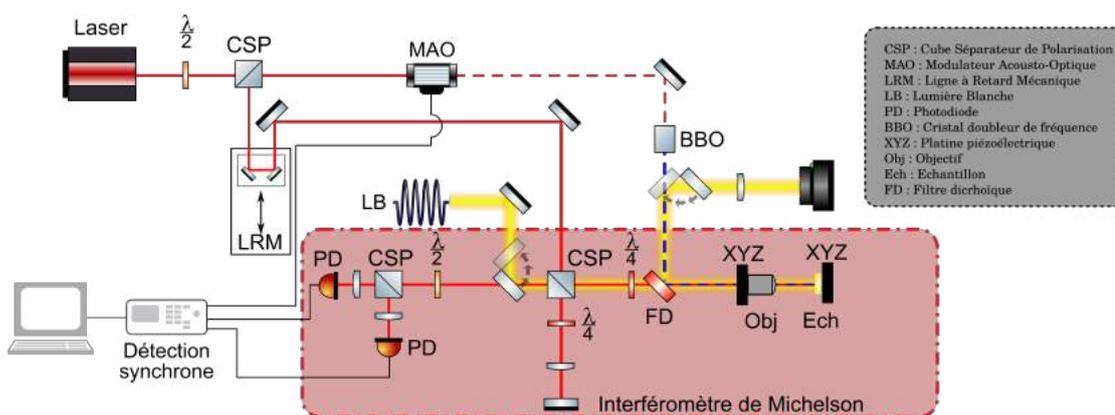


FIGURE 4.3 – Schéma du montage expérimental utilisé pour étudier la propagation au sein de cônes de silicium.

4.2.3 Résultats expérimentaux

La variation de réflectivité mesurée dans la membrane avant la gravure des cônes est représentée sur la figure 4.4 a). La figure 4.4 b) présente un schéma de la mesure. On observe sur le signal la coïncidence à 27 ps. On peut également distinguer trois échos à 2.41, 2.95 et 3.48 ns respectivement.

Le premier de ces échos est attribué à l'onde longitudinale ayant parcouru un aller-retour dans la membrane. L'écho à 3.48 ns peut être associé à l'onde transverse ayant réalisé un aller-retour dans la membrane. Enfin, l'écho à 2.95 ns correspond quant à lui à l'onde transverse générée par réflexion de l'onde longitudinale à la surface supérieure de la membrane non excitée par l'impulsion du faisceau pompe. Par mesure de temps de vol, en considérant les vitesses 8400 m s^{-1} et 5800 m s^{-1} respectivement pour les ondes longitudinales et transverses dans le silicium selon l'axe [100], on retrouve une épaisseur de la membrane de $10.1 \mu\text{m}$.

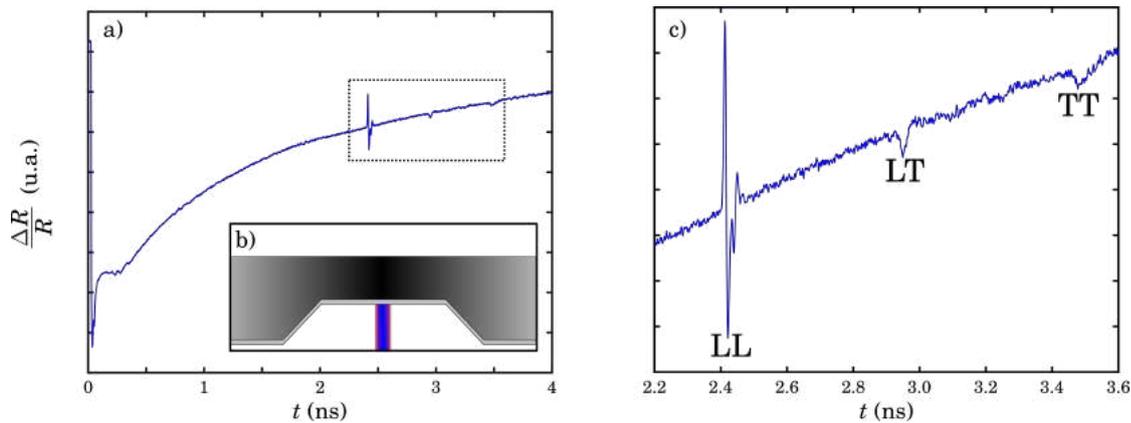


FIGURE 4.4 – a) Variation de réflectivité mesurée sur une membrane avant gravure des cônes de silicium. c) Même signal zoomé au niveau des échos correspondant au cadre sur le signal a). b) Schéma de la mesure réalisée.

Pour chaque échantillon considéré présentant des cônes, une mesure similaire est réalisée sur la membrane à côté des cônes afin d'identifier le temps auquel on détecte l'écho de l'onde longitudinale. En effet, ce temps permet d'identifier l'épaisseur de la membrane après la gravure et donc la hauteur des cônes mais également leurs diamètres. De plus, elle permet également de localiser les cônes de silicium localisés sur l'autre surface de la membrane. Si l'on considère que la membrane présente une épaisseur homogène à l'issue de la gravure, alors cet écho sera détecté au même instant en tout point de la membrane à l'exception des emplacements des cônes et des numéros qui provoquent une épaisseur de silicium plus importante. Par conséquent, en plaçant la ligne à retard de façon à se placer à l'instant de l'écho, la réalisation d'une cartographie de l'échantillon permet de localiser cônes et numéros.

La figure 4.5 a) représente une cartographie réalisée à l'instant de l'écho de l'onde longitudinale. La variation d'épaisseur du numéro 5 présent à la surface de la membrane cause une variation de contraste sur la cartographie permettant de voir ce numéro. Les figures 4.5 b) et c) présentent quant à elles des cartographies réalisées au niveau d'un cône de silicium avant et pendant l'écho de l'onde longitudinale. On observe l'apparition d'un disque plus foncé sur la cartographie c) due à la présence du cône.

Une fois un cône localisé, on réalise une mesure de $\Delta R/R$ au milieu de celui-ci sur une fenêtre temporelle de 3 ns afin de mesurer la coïncidence ainsi que l'écho dû à l'onde longitudinale. Ensuite, une nouvelle cartographie est réalisée à l'instant précis de cet écho.

En effet, la gravure de la membrane à partir du wafer peut être à l'origine de variations d'épaisseur de celle-ci. Par conséquent, l'épaisseur du silicium au niveau d'un cône peut donc être différente de celle mesurée sur la membrane non gravée ou de celle obtenue au niveau d'un autre cône du même échantillon. La nouvelle cartographie réalisée présente alors une variation de contraste en tout point ayant la même épaisseur, soit sur une zone correspondant à la surface supérieure du cône. On peut alors mesurer précisément le diamètre supérieur du cône.

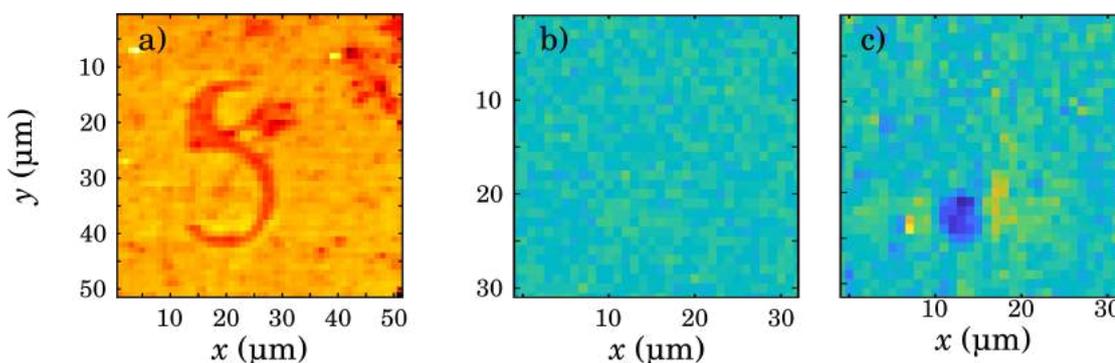


FIGURE 4.5 – a) Cartographie réalisée à l'instant de l'écho de l'onde longitudinale détectée dans la membrane. Cartographies réalisées au niveau d'un cône de silicium b) avant et c) à l'instant de l'écho de l'onde longitudinale.

La figure 4.6 présente la cartographie ainsi que le signal mesuré pour ce même cône. On détermine un diamètre de $9.52\ \mu\text{m}$. Quant au signal, on distingue notamment sur celui-ci l'écho correspondant à l'onde longitudinale à $2.29\ \text{ns}$. Ce temps de vol est différent de celui mesuré sur la membrane non-gravée. Cela met en évidence la variation d'épaisseur de la membrane de silicium avant la gravure et le besoin de se décaler temporellement avant de faire la cartographie permettant de déterminer la surface supérieure du cône.

Des mesures de la variation de réflectivité sont réalisées au niveau de plusieurs cônes présentant différents diamètres. Pour chacun des signaux obtenus, l'amplitude de l'écho dû à l'onde longitudinale est relevée et normalisée par rapport à l'amplitude de la coïncidence du même signal. On peut ainsi comparer l'amplitude des échos de signaux différents. Les valeurs de ces rapports d'amplitudes sont représentées sur la figure 4.7 a) en fonction des diamètres mesurés des cônes au niveau desquels les mesures sont réalisées. Cette figure semble indiquer que l'amplitude relative de l'écho est moins importante pour des cônes plus petits.

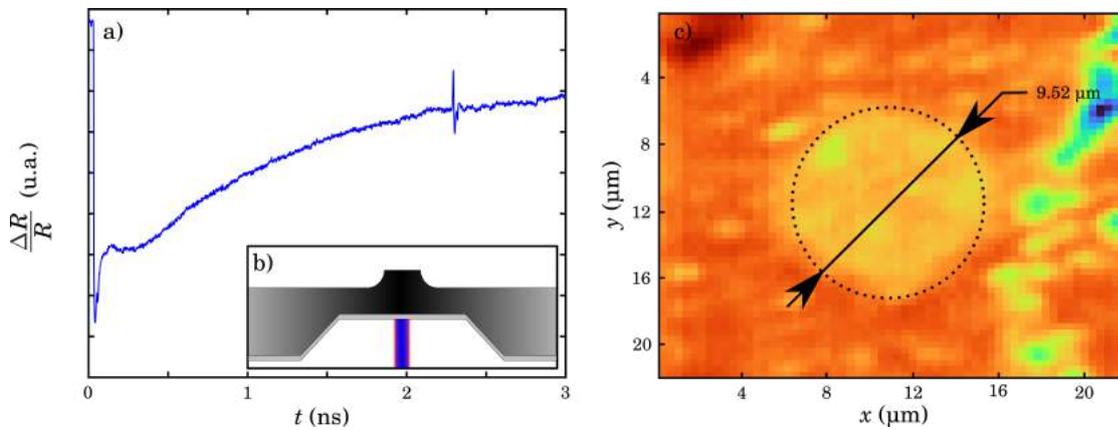


FIGURE 4.6 – a) Variation de réflectivité mesurée au niveau du centre d'un cône de silicium. b) Schéma de la mesure réalisée. c) Cartographie réalisée à l'instant du pic de l'écho dû à l'onde longitudinale. On distingue un disque clair correspondant à la surface supérieure du cône. On peut alors estimer son diamètre de $9.52 \mu\text{m}$.

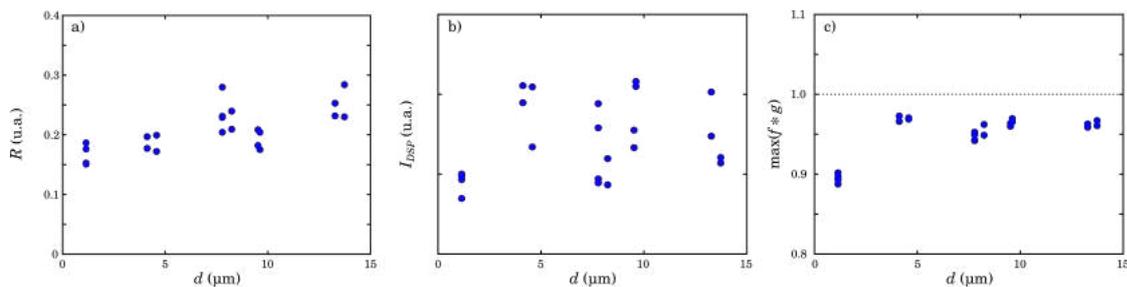


FIGURE 4.7 – a) Rapport de l'amplitude de l'écho de l'onde longitudinale sur l'amplitude de la coïncidence en fonction du diamètre supérieur des cônes. b) Variation de l'intensité des spectres des échos de l'onde longitudinale à la fréquence 57.5 GHz en fonction du diamètre supérieur des cônes. c) Amplitude maximale de la corrélation croisée en fonction du diamètre supérieur des cônes.

Pour chaque signal, la transformée de Fourier de l'écho est calculée. Comme le met en évidence la figure 4.7 b) présentant l'intensité des spectres à 57.5 GHz en fonction du diamètre des cônes, on observe une faible diminution de l'intensité pour des cônes plus petits. Enfin, la corrélation croisée normalisée entre le signal obtenu au niveau d'un cône et celui obtenu sur la membrane non-gravée est calculée et la valeur maximale est extraite. Les résultats sont présentés sur la figure 4.7 c). Une valeur de 1 signifie que le signal obtenu au niveau de l'écho est identique à celui mesuré sur la membrane non-gravée.

On observe sur la figure 4.7 c) que les valeurs relevées pour les cônes sont proches de 1 mais restent un peu inférieures, à environ 0.96 du fait des bruits de mesures. Néanmoins, les valeurs relevées pour les cônes dont les diamètres ont été estimés en moyenne à 1.14 μm présentent des valeurs plus faibles, de l'ordre de 0.90. Il semble donc que l'onde acoustique réfléchie soit affectée pour ce diamètre de l'ordre de grandeur de la tâche focale au niveau de la couche d'aluminium.

4.2.4 Limitations

Les résultats présentés dans la partie 4.2.3 sur la figure 4.7 semblent indiquer un changement dans le processus de réflexion des ondes acoustiques lorsque les cônes présentent un diamètre supérieur suffisamment petit. Toutefois, comme énoncé dans la partie 3.5.3, le processus de fabrication n'est pas complètement maîtrisé : on ne contrôle pas précisément l'épaisseur de silicium gravée. Or celle-ci détermine à la fois la hauteur et le diamètre supérieur des cônes. Lors de cette étude, il n'a pas été possible d'obtenir des cônes présentant des diamètres qui soient inférieurs à 1 μm . Nous ne disposons donc pas de cône dont le diamètre supérieur soit de l'ordre de grandeur des longueurs d'ondes acoustiques. Pour une fréquence de 57.5 GHz, la longueur d'onde dans le silicium est de 150 nm. La nécessité de travailler sur une membrane complique également le processus de fabrication. Si la gravure est importante, celle-ci devient très fine, voire est entièrement gravée. Une fine membrane peut alors se mettre à vibrer lors de l'excitation par le faisceau pompe à des fréquences et un déplacement suffisamment important pour empêcher l'utilisation de l'interféromètre de Michelson. Ce problème est similaire à celui rencontré lors des mesures réalisées sur les ponts d'or dans la partie 3.4.4.

Toutefois, il a été noté que la structure considérée est similaire à celle des pointes sur les sondes AFM. On considère l'utilisation de celles-ci par la suite comme possible sources d'émissions acoustiques. On s'intéresse dans un premier temps à la propagation au sein des de pointes AFM. La génération dans un échantillon mis en contact avec la pointe est étudiée dans un second temps.

4.3 Echantillons et montages expérimentaux

4.3.1 Pointes AFM utilisées

Au cours de cette étude, deux types de sondes AFM ont été utilisées : des sondes CT130 vendues par nanoScience Instruments et des sondes SCOUT 70 RAI fournies par NuNano. Ces deux sondes sont formées de silicium monocristallin. Les cantilevers sont orientés selon l'axe $[110]$ du cristal et les pointes selon la direction $[100]$. Les sondes sont recouvertes par une couche d'aluminium de 10 et 40 nm respectivement. Cette couche métallique permet une meilleure génération ainsi qu'une meilleure détection des ondes acoustiques se propageant dans le cantilever et la pointe.

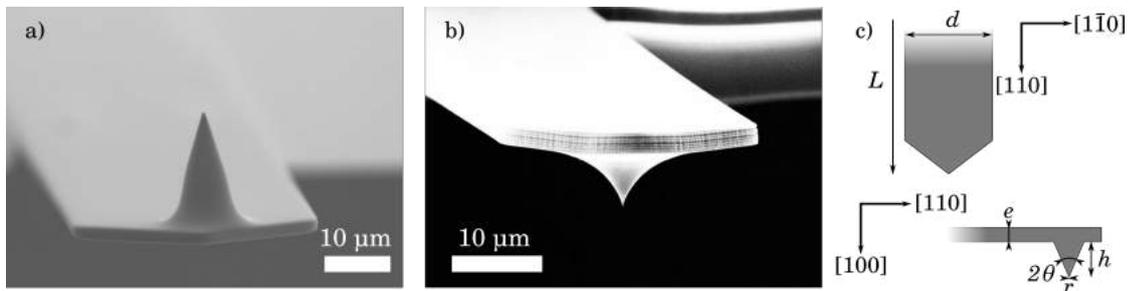


FIGURE 4.8 – Image obtenue au MEB a) d'une sonde CT130 et b) d'une sonde SCOUT 70. c) Schémas des dimensions des pointes et orientations cristallographiques.

Des images obtenues au MEB de ces deux pointes sont représentées respectivement sur les figures 4.8 a) et b). Le schéma présenté sur la figure 4.8 c) introduit les dimensions caractéristiques des cantilevers et des pointes. Les valeurs nominales de ces dimensions pour les deux sondes considérées sont regroupées au sein des tableaux 4.1 et 4.2.

Sonde	Fréquence	Raideur	Longueur L	Largeur d	Épaisseur e
SCOUT 70	70 kHz	2 N m^{-1}	$225 \mu\text{m}$	$30 \mu\text{m}$	$2.5 \mu\text{m}$
CT130	130 kHz	6 N m^{-1}	$125 \mu\text{m}$	$42 \mu\text{m}$	$1.7 \mu\text{m}$

TABLE 4.1 – Caractéristiques des cantilevers

Sonde	Hauteur h	Rayon au bout r	Angle θ
SCOUT 70	6 μm	5 nm	25°
CT130	15 μm	8 nm	30°

TABLE 4.2 – Caractéristiques des pointes

4.3.2 Montages expérimentaux

Le premier montage expérimental utilisé pour étudier la propagation d'ondes acoustiques au sein des cantilevers et pointes AFM est schématisé sur la figure 4.9. Ce montage expérimental pompe-sonde à deux couleurs est similaire à celui utilisé pour l'étude des disques dans le chapitre 3 et schématisé sur la figure 3.4. Il est basé sur un interféromètre de Michelson permettant d'être sensible au déplacement normal à la surface. Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés sur la couche d'aluminium de la sonde considérée à l'aide d'un objectif grossissement 50 et d'ouverture numérique 0.50. Un échantillon est placé sur une platine piézoélectrique elle-même placée sur une platine pouvant être déplacée à l'aide d'une vis micrométrique. On peut ainsi venir mettre cet échantillon en contact avec la pointe AFM.

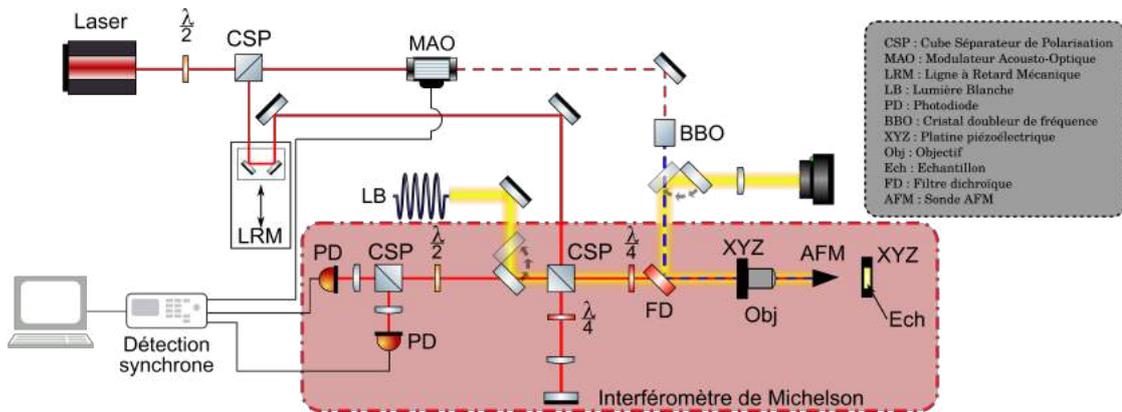


FIGURE 4.9 – Montage expérimental en réflexion utilisé pour étudier la propagation acoustique au sein des sondes AFM.

Un second montage expérimental est utilisé afin d'étudier la transmission depuis la pointe AFM vers un échantillon. Ce montage est schématisé sur la figure 4.10. Le faisceau pompe est focalisé sur la couche d'aluminium recouvrant la surface supérieure de la sonde AFM à l'aide d'un objectif de grossissement 50 et d'ouverture numérique 0.50. Le faisceau sonde est quant à lui focalisé sur l'échantillon grâce à un objectif présentant un grossissement de 50 et une ouverture numérique de 0.42. Comme pour le premier montage, la mise en contact de l'échantillon et de

la pointe AFM est réalisée à l'aide d'une vis micrométrique et d'une platine piézoélectrique.

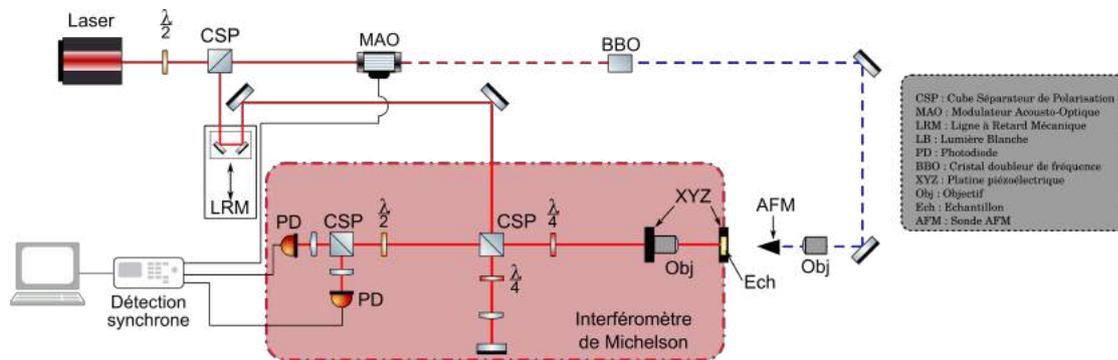


FIGURE 4.10 – Montage expérimental en transmission utilisé pour étudier la transmission acoustique entre une pointe AFM et un échantillon.

4.4 Génération acoustique dans une pointe AFM

4.4.1 Propagation dans le cantilever

On s'intéresse tout d'abord à la propagation acoustique au sein d'une sonde AFM. On utilise pour cela le premier montage expérimental schématisé sur la figure 4.9. Une première mesure est réalisée sur le cantilever d'une sonde CT130 loin de la pointe, schéma figure 4.11 b). Les faisceaux pompe et sonde sont pour cela focalisés sur la couche d'aluminium recouvrant la surface supérieure de la sonde. La variation de réflectivité mesurée est représentée sur la figure 4.11 a).

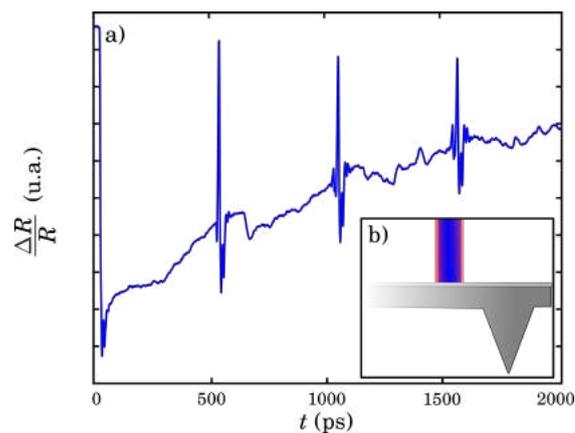


FIGURE 4.11 – a) Variation de réflectivité mesurée sur la couche d'aluminium recouvrant une sonde AFM CT130. b) Schéma de la mesure réalisée.

On observe sur le signal présenté sur la figure 4.11 a) à 31 ps la coïncidence suivie de la réponse thermique de l'aluminium. On note également la présence de nombreux échos dont les plus importants sont relevés à 534, 1045 et 1556 ps. Ces derniers sont dus au déplacement de la surface éclairée par le faisceau sonde par une onde longitudinale se propageant dans le cantilever.

La vitesse des ondes longitudinales dans le silicium selon l'axe [100] est de 8400 m s^{-1} . Entre les échos à 1556 et 534 ps, l'onde a parcouru deux aller-retours selon l'épaisseur du cantilever. À partir de la différence de temps et de la vitesse, on calcule une épaisseur de $2.14 \mu\text{m}$. Cette valeur est supérieure à la valeur nominale de l'épaisseur e du cantilever rappelée dans le tableau 4.1 mais reste toutefois comprise dans l'intervalle de variation de l'épaisseur fourni par le fabricant.

4.4.2 Variation d'épaisseur du cantilever

Une des difficultés du montage utilisé et de l'expérience que l'on souhaite réaliser réside dans la possibilité d'aligner les faisceaux pompe et/ou sonde sur le cantilever au niveau de la pointe. Si l'on réalise une cartographie à l'instant d'un écho on détecte celui-ci en tout point du cantilever présentant la même épaisseur. Une épaisseur différente implique un temps de vol différent. L'écho serait donc détecté à un instant différent. Une différence d'épaisseur se traduit alors sur l'image réalisée par une différence de contraste. Une image réalisée à l'instant du premier écho, à 534 ps, est représentée sur la figure 4.12 c). On y observe un disque plus clair au bout du cantilever pouvant correspondre à la variation d'épaisseur due à la présence de la pointe.

Afin de confirmer que cette variation de contraste correspond bien à une différence d'épaisseur, une seconde image est réalisée avant l'écho. Le disque plus clair n'est plus observé sur cette image introduite sur la figure 4.12 b). Le disque distingué sur la figure 4.12 c) est donc bien lié à la pointe. À partir des images obtenues au MEB telle que celle présentée sur la figure 4.8, on devine que le bout de la pointe est situé au centre de ce disque. La figure 4.12 a) permet quant à elle d'indiquer sur le signal déjà introduit sur la figure 4.11 a) les instants auxquels les images ont été réalisées.

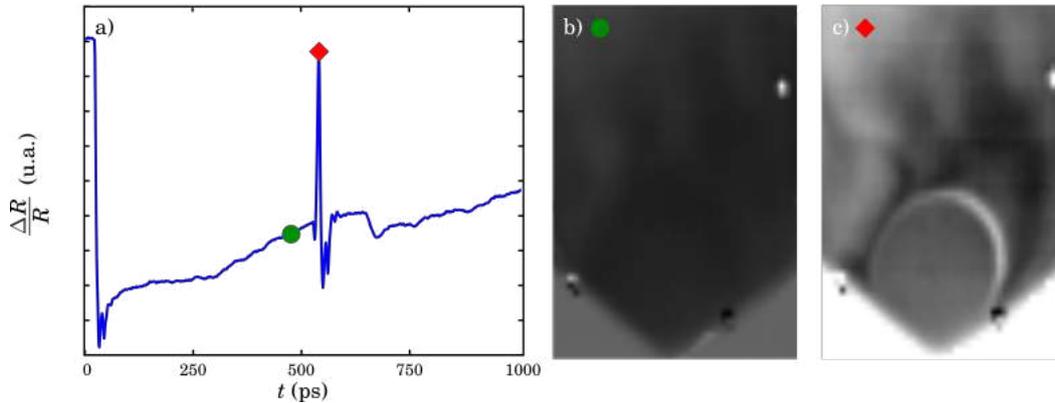


FIGURE 4.12 – a) Variation de réflectivité mesurée sur le cantilever lorsque les faisceaux sont focalisés loin de la pointe. Cartographie du cantilever b) avant et c) pendant l'écho du à l'onde longitudinale. Les instants auxquels ces images sont réalisées sont indiqués sur le signal en a).

4.4.3 Propagation dans la pointe

On réalise une mesure au centre du cercle identifié sur la figure 4.12 c). La variation de réflectivité alors mesurée est représentée sur la figure 4.13 a). On retrouve la coïncidence à 32 ps. Toutefois, les échos identifiés sur la figure 4.11 a) ne sont plus détectés. On observe néanmoins une unique structure à environ 4.5 ns. Celle-ci présente une amplitude par rapport à l'intensité de la coïncidence beaucoup plus faible qu'les échos identifiés sur le signal 4.11 a). La figure 4.13 c) présente cet écho avec une fenêtre temporelle beaucoup plus courte et centrée sur celui-ci.

Cet écho est dû à l'onde longitudinale générée par une impulsion du faisceau pompe au niveau de la couche d'aluminium. Celle-ci s'est propagée dans la pointe AFM avant d'être réfléchi au bout de celle-ci. Elle est détectée lorsqu'elle provoque le déplacement de la surface d'aluminium éclairée par le faisceau sonde. En reprenant la vitesse des ondes longitudinales dans le silicium monocristallin selon l'axe [100], soit 8400 m s^{-1} , ce temps de vol de l'onde de 4509 ps indique une épaisseur de silicium de $18.9 \mu\text{m}$. Cette valeur est similaire à la somme de l'épaisseur du cantilever et de la hauteur de la pointe indiquées par le constructeur et retranscrites dans les tableaux 4.1 et 4.2.

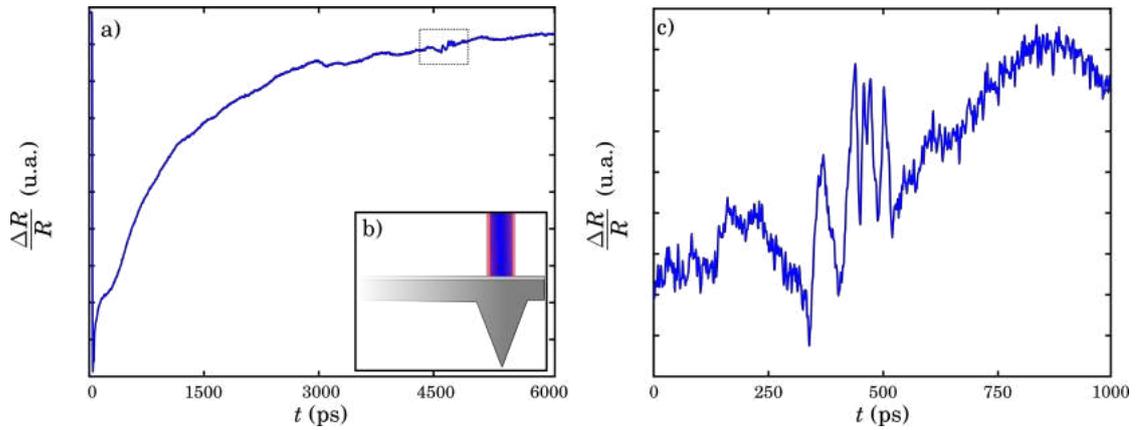


FIGURE 4.13 – a) Variation de réflectivité mesurée sur la couche d'aluminium lorsque les faisceaux pompe et sonde sont focalisés au centre du cercle identifié sur la figure 4.12 c). b) Schéma de la mesure réalisée. c) Extrait du signal représenté en a) centré sur la structure identifiée à 4.5 ns.

4.4.4 Influence de la géométrie de la pointe

On réalise le même travail mais sur une sonde SCOUT 70. La figure 4.14 a) présente la variation de réflectivité mesurée sur le cantilever d'une telle sonde SCOUT 70 lorsque les faisceaux pompe et sonde sont superposés loin de la pointe. Parmi les échos que présente le signal, on peut identifier les échos liés aux ondes longitudinales se propageant selon l'épaisseur du cantilever à 508, 990, 1472, 1955, 2430 et 2909 ps. À partir de la différence de temps entre les échos, on détermine une valeur de l'épaisseur du cantilever de 2.0 μm . Celle-ci est un peu inférieure à la valeur nominale rappelée dans le tableau mais reste comprise dans l'intervalle de variation fourni par le fabricant.

On retrouve sur cette sonde AFM la position de la pointe en identifiant les variations d'épaisseur du cantilever selon la méthode présentée dans la partie 4.4.2. On peut alors mesurer la variation de réflectivité au niveau de la pointe. Le signal obtenu est introduit sur la figure 4.14 c). On retrouve la coïncidence à 28 ps suivie de la réponse thermique de l'aluminium. On identifie à 1994 ps l'écho correspondant à l'onde longitudinale. Ce temps de vol correspond à une hauteur de 8.26 μm de silicium selon la direction [100]. Cette valeur est proche de la somme de l'épaisseur du cantilever et de la hauteur de la pointe données par le constructeur et atteste donc bien de la détection d'une impulsion longitudinale ayant réalisé un aller-retour.

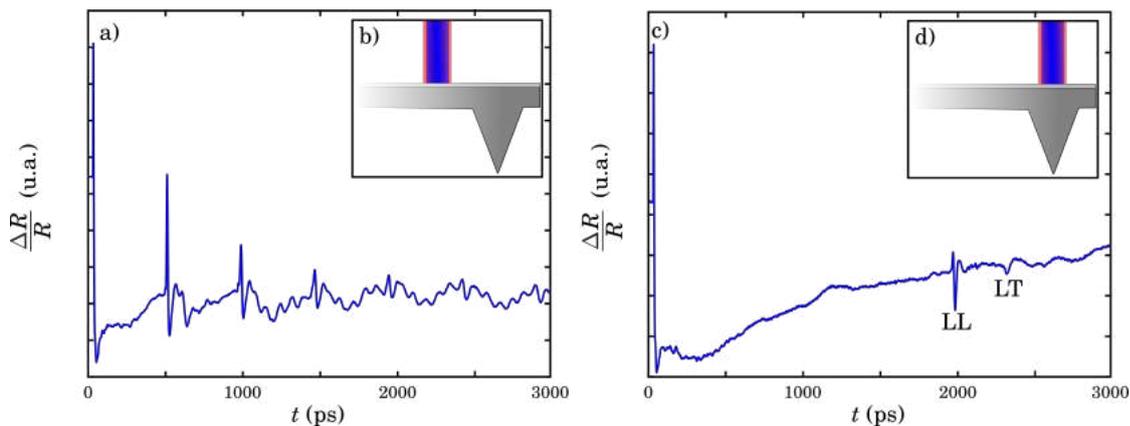


FIGURE 4.14 – Variations de réflectivité mesurées sur une sonde AFM SCOUT 70 lorsque les faisceaux sont focalisés a) loin de la pointe et c) au niveau de la pointe. b) et d) Schémas respectifs des mesures réalisées.

En comparant les échos sur les figures 4.13 b) et 4.14 b), on observe que leurs structures sont différentes. Or, les images obtenus au MEB montrent que les deux pointes présentent également des formes différentes : l'une est conique tandis que l'autre est extra-conique. Cela met en évidence que l'écho mesuré sur une sonde AFM est fortement sensible à la forme de la pointe. Des variations de la structure de l'écho peuvent d'ailleurs être observées pour différentes pointes du même type de sonde. L'impact précis de la forme sur l'écho mesuré n'a pas été examiné au cours de cette étude mais pourrait faire l'objet de travaux ultérieurs. De telles études ont déjà été réalisées pour les pointes utilisées dans le cadre de la technique AFAM [91, 92] mais l'utilisation différente du champ acoustique peut amener à des formes différentes. La forme de la pointe pourrait en effet s'avérer être un levier d'optimisation dans le but d'utiliser des sondes AFM dans le cadre de techniques d'imagerie acoustique.

On identifie également sur la figure 4.14 c) un écho à 2330 ps. Celui-ci est provoqué par une onde transverse se propageant dans la pointe. La vitesse des ondes transverses selon la direction [100] dans un cristal de silicium est de 5400 m s^{-1} . En reprenant la valeur de $8.26 \mu\text{m}$ de l'épaisseur du silicium, on s'attend à mesurer l'écho dû à une onde transverse ayant réalisé un aller-retour dans la pointe à 3.1 ns, soit 0.8 ns après l'instant auquel on le mesure expérimentalement. Toutefois, si l'on considère le cas d'une onde transverse émise au bout de la pointe à partir de l'onde longitudinale incidente par conversion de modes, on s'attend à mesurer l'écho de l'onde transverse à 2.4 ns, soit à un instant proche de celui où on détecte l'écho.

Il semble donc que l'onde longitudinale générée à la suite d'une impulsion du faisceau pompe soit à l'origine d'une onde transverse lorsque elle est réfléchi au bout de la pointe mettant en évidence l'existence d'une conversion de mode au bout de la pointe. Cette onde transverse peut également être exploitée dans le but de réaliser des images acoustiques.

4.4.5 Observation de l'anisotropie du silicium

Des cartographies acoustiques sont réalisées sur le cantilever d'une sonde CT130 sur une petite surface centrée au niveau du bout de la pointe. Celles-ci sont réalisées à des instants compris dans un intervalle de temps incluant l'écho dû à l'onde longitudinale réfléchi. Certaines des images obtenues sont représentées sur la figure 4.15 b) à e). La variation de réflectivité mesurée préalablement sur la même pointe est également représentée sur la figure 4.15 a). Les instants auxquels les cartographies présentées sur les figures 4.15 b) à e) sont réalisées y sont indiqués par des croix rouges. La position des faisceaux pour cette mesure est proche du centre des cartographies. Enfin, les figures 4.15 f) à i) schématisent les fronts d'ondes observés sur les cartographies b) à e)

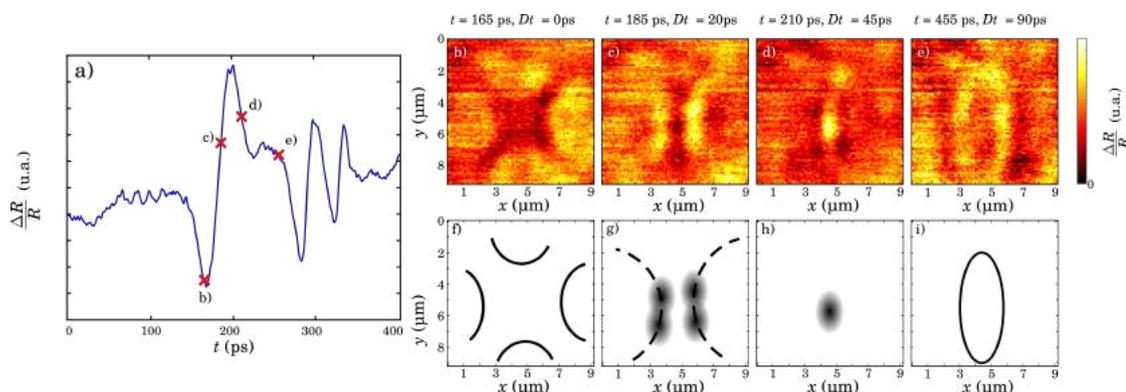


FIGURE 4.15 – a) Variation de réflectivité mesurée sur la couche d'aluminium sur une sonde AFM CT130 lorsque les faisceaux sont focalisés au niveau de la pointe. b) - e) Cartographies acoustiques à différents instants au moment de l'écho. Les instants auxquels ces cartographies sont réalisées sont indiqués sur le signal a) par les croix rouges. f) - i) Schémas indiquant les fronts d'ondes détectés mettant en avant la symétrie d'ordre 4 du silicium autour de l'axe [001].

On peut observer sur la cartographie 4.15 b), et sur le schéma correspondant 4.15 f), quatre arcs de cercle. Cette cartographie met donc en avant une symétrie d'ordre 4. Or, la pointe AFM est formée de silicium monocristallin. De plus, le plan observé sur ces images est le plan (001). La symétrie observée sur les images peut donc être associée à la symétrie d'ordre 4 du silicium monocristallin autour de l'axe [001].

À mesure que le temps avance, les rayons de ces arcs croissent et les arcs de cercle se propagent en direction de la position du bout de la pointe, comme le montrent les figures 4.15 c) et g). À proximité du pic visible à 200 ps sur le signal 4.15 a) on ne détecte sur la cartographie plus qu'un point comme le montrent les figures 4.15 d) et h). Par la suite, on peut observer un anneau dont le rayon croît avec le temps comme le montrent les figures 4.15 e) et i). On notera que cet anneau n'est pas parfaitement circulaire mais plutôt ovale.

4.4.6 Etude numérique de la propagation dans la pointe

Afin d'étudier la propagation au sein de la pointe AFM, on souhaite réaliser des simulations par éléments finis. Celles-ci sont réalisées dans le langage de programmation C++ par Daniel Garcia-Sanchez, chargé de recherche au sein de l'équipe "Acoustique pour les nanosciences" à l'INSP.

On considère pour cela une pointe conique présentant les dimensions de la sonde AFM CT130, rappelées dans les tableaux 4.1 et 4.2. Cette pointe est maillée en trois dimensions à l'aide de 648 millions d'éléments hexaédriques de diamètre moyen de 12 nm pour un total de 19.7 milliards de degrés de libertés. Cette simulation cherche à résoudre en tout point du maillage les équations

$$\rho \partial_{tt} u_i + \nu \partial_t u_i - \partial_j (c_{ijkl} \varepsilon_{kl}) = f_i, \quad i = 1, 2, 3 \quad (4.1)$$

et

$$\varepsilon_{kl} = \frac{1}{2} (\partial_k u_l + \partial_l u_k) \quad (4.2)$$

où u_i correspond à la composante du champ de déplacement selon la direction i , ε_{kl} est la composante de contrainte, ρ est la masse volumique, c_{ijkl} la composante du tenseur des rigidités et ν exprime la dissipation.

Une couche d'absorbeur adiabatique est placée autour de la pointe sur une hauteur e . Celle-ci permet de simuler l'impact du cantilever. On néglige ainsi les réflexions et simule la fuite d'énergie dans le cantilever. L'effet de cette couche est donc similaire à celle d'une couche PML telle que celle utilisée au cours des simulations réalisées pour l'étude vibrationnelle des disques d'or dans la partie 3.5.2. L'excitation est réalisée par une force appliquée à la surface supérieure de la pointe. Celle-ci est définie par la fonction

$$F(x, y, t) = \exp\left(-\left[\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma_x^2} + \frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_y^2}\right]\right) \cdot \sin(2\pi\sigma_f t) \cdot \exp\left(\frac{-1}{2}\left(\frac{t-t_0}{\sigma_t}\right)^2\right) \quad (4.3)$$

où le couple de coordonnées (x_0, y_0) détermine la position centrale de l'excitation, σ_x et σ_y déterminent la largeur à mi-hauteur selon les axes x et y , σ_f définit la fréquence centrale de l'excitation, t_0 indique l'instant le temps central de l'excitation et σ_t la largeur temporelle de l'excitation. Dans le cas des simulations réalisées lors de cette étude on fixe $\sigma_x = \sigma_y = 5 \mu\text{m}$. Sans indication contraire, le faisceau est centré en $(x_0 = 0 \mu\text{m}, y_0 = 0 \mu\text{m})$ ce qui correspond au centre de la pointe. L'excitation est réalisée à $t_0 = 0.1 \text{ ns}$ et présente une durée à mi-hauteur de 10 ps.

La discrétisation temporelle est réalisée à partir d'une méthode saute-mouton, ou *leap-frog method* en anglais, afin de garantir la conservation d'énergie. Le pas temporel est alors de 0.2 ps. Cette méthode est un intégrateur symplétique qui permet d'éviter une dérive numérique comme cela peut être observé pour des méthodes telles que Runge-Kutta.

La figure 4.16 présente le signal calculé par simulation au centre de la pointe. Ce signal est calculé à partir de la composante normale du champ de déplacement. On observe un pic intense à 0.12 ns qui est dû à la force d'excitation appliquée à la surface. Il indique donc l'instant de l'excitation à la surface supérieure de la pointe. Le signal présente un grand nombre d'échos. On peut identifier parmi ceux-ci le pic à 3.65 ns. Celui-ci est dû à l'onde longitudinale réfléchi. On peut également identifier à 5.48 ns l'écho provoqué par l'onde transverse. L'écho à 4.48 ps correspond quant à lui à une onde transverse émise par conversion de modes au bout de la pointe lorsque l'onde longitudinale y a été réfléchi. On note que les échos sont détectés plus tôt sur le signal 4.16 que sur le signal expérimental 4.13. Cela est causé par le fait que la pointe simulée fait 15 μm et est donc plus courte que celles étudiées expérimentalement. La forme de l'écho dû à l'onde longitudinale ne reproduit pas exactement celles observées sur les figures 4.13 c) ou 4.15 a) sur les sondes CT130. Elle se rapproche néanmoins de celle observée sur une sonde SCOUT 70, figure 4.14 c). Cela s'explique par la différence de géométrie du bout de la pointe.

Enfin, on note la présence sur le signal 4.16 d'échos après ceux déjà identifiés mais aussi avant celui associé à l'onde longitudinale. De tels échos ne sont pas observés sur les signaux obtenus expérimentalement. Les raisons à cela sont l'absence de prise en compte des pertes dans le silicium. Une géométrie différente notamment à la base du cône peut également grandement modifier ces structures.

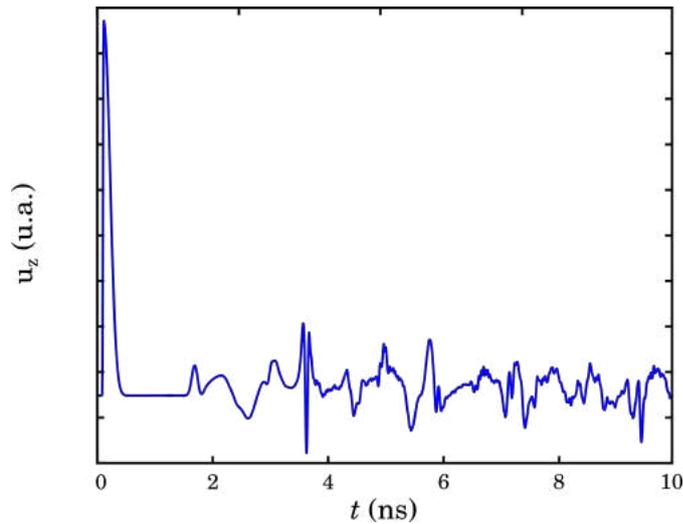


FIGURE 4.16 – Déplacement selon l'axe z relevé au centre de la surface supérieure de la pointe.

La réalisation de ces simulations permet d'observer la propagation au sein de la pointe. Les figures 4.17 et 4.18 représentent ainsi la composante selon l'axe z du champ de déplacement au sein de la pointe à deux différents instants, 0.83 ns et 3.26 ns respectivement. On peut identifier sur la première image l'onde longitudinale, indiquée par L, ainsi que l'onde transverse, indiquée par T, générées par l'impulsion à la surface supérieure de la pointe. Sur la seconde image, on peut également retrouver ces ondes que l'on identifie respectivement LL et TT. On observe également une onde transverse générée par conversion de modes lorsque l'onde longitudinale a été réfléchi au bout de la pointe. Cette dernière est identifiée sur l'image par LT.

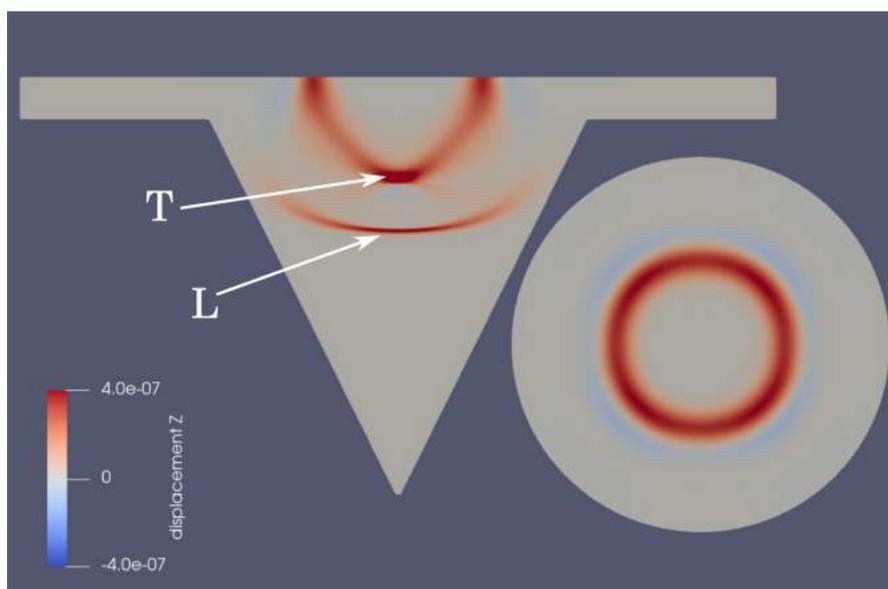


FIGURE 4.17 – Composante selon l'axe z du champ de déplacement

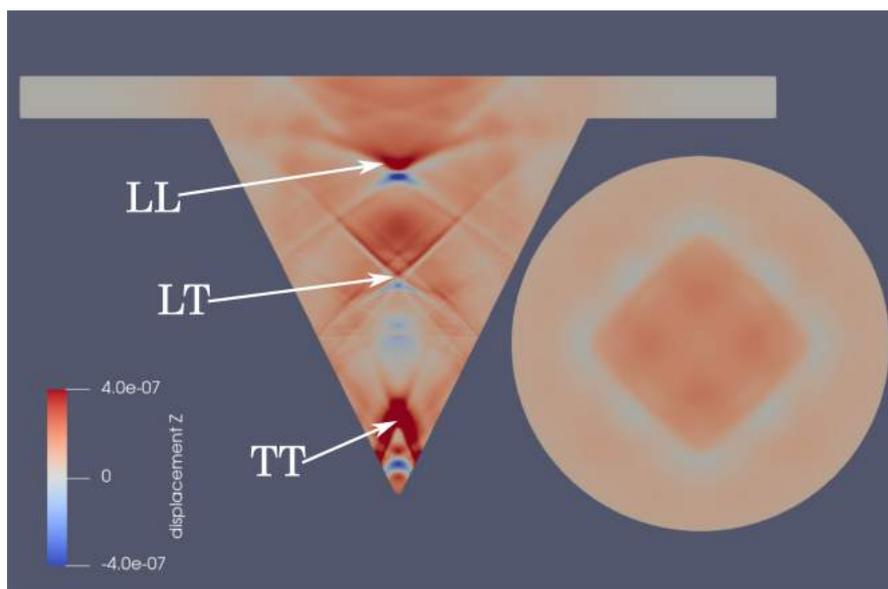


FIGURE 4.18 – Composante selon l'axe z du champ de déplacement

4.4.7 Mesures désaxées du centre de la pointe

La figure 4.19 introduit la variation de réflectivité mesurée sur une sonde AFM CT130 lorsque les faisceaux sont focalisés sur la couche d'aluminium au niveau de la pointe. Le signal représenté est centré sur l'écho dû à l'onde longitudinale réfléchi et est limité sur une courte fenêtre temporelle de 300 ps. On observe une structure similaire à celles présentées dans la partie 4.4.3 avec deux pics importants identifiés A et B.

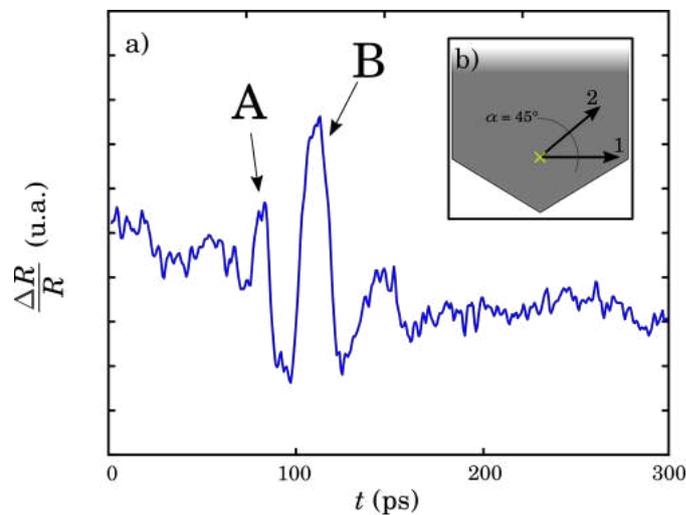


FIGURE 4.19 – a) Variation de réflectivité mesurée au centre de la pointe. b) Schéma donnant l'emplacement de la mesure.

Des mesures sont réalisées à différentes distances du bout de la pointe (1, 2 et 4 μm) selon deux directions différentes écartées de 45° que l'on identifie 1 et 2 comme sur le schéma 4.20 c). La direction 1 suit l'axe $[1\bar{1}0]$ du cristal de silicium tandis que la direction 2 est selon l'axe $[001]$. Les signaux mesurés selon les directions 1 et 2 sont introduits respectivement sur les figures 4.20 a) et b).

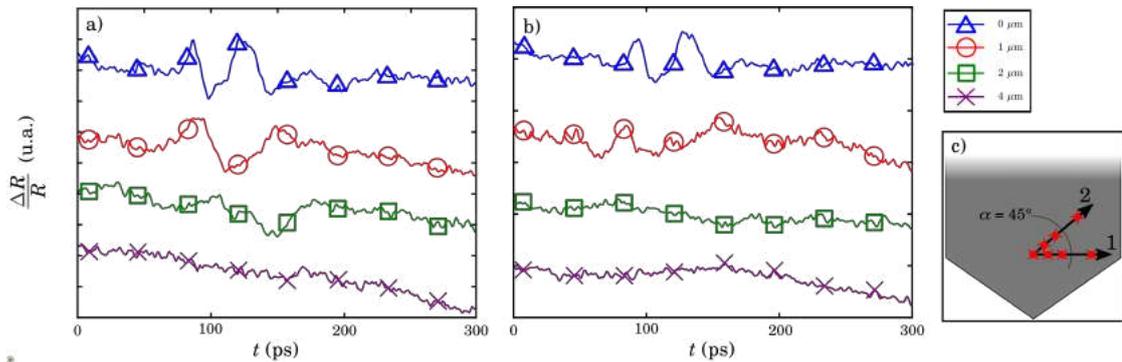


FIGURE 4.20 – Variations de réflectivité mesurées lorsque les faisceaux pompe et sonde sont focalisés à 0, 1, 2 et 4 μm du bout de la pointe selon respectivement a) la direction 1 correspondant à l'axe $[001]$ du silicium et 2) la direction 2 selon l'axe $[1\bar{1}0]$. c) Schéma indiquant les positions mesurées vis-à-vis de la forme du cantilever.

On s'intéresse tout d'abord aux signaux mesurés selon la direction 1 sur la figure 4.20 a). On observe que l'écho est détecté avec un retard lorsque les faisceaux s'écartent du centre de la pointe. De plus, l'écho s'élargit temporellement : le retard du pic B croît plus rapidement que celui du pic A. On ne distingue plus l'écho lorsque les faisceaux sont placés à 4 μm .

On note en comparant les figures 4.20 a) et b) que les signaux mesurés selon la direction 2 lorsque les faisceaux sont placés à 1 et 2 μm sont différents de ceux obtenus selon la direction 1. Les mesures étant pourtant réalisées aux mêmes distances du bout de la pointe, ces différences confirment la sensibilité à l'anisotropie du silicium. Tout comme selon la direction 1, on ne distingue plus de signature lorsque les faisceaux sont placés à 4 μm du bout de la pointe.

Ces résultats mettent en évidence que la position des faisceaux est un paramètre important pour détecter l'écho dû à l'onde longitudinale. Si les faisceaux sont focalisés loin du bout de la pointe, on observe plus d'écho. Toutefois, du fait de la taille des faisceaux, de l'ordre de 2 μm , il est possible de se décaler un peu et de conserver une signature. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par Cyril Jean au cours de sa thèse [93].

Afin de d'étudier plus précisément les modifications de la structure de l'écho en fonction de la position des faisceaux par rapport au bout de la pointe, de nouvelles mesures sont réalisées. Les faisceaux sont progressivement écartés du bout de la pointe sur une distance de 4 μm selon la direction 1, soit l'axe $[1\bar{1}0]$.

La variation de réflectivité est mesurée tous les $0.1 \mu\text{m}$ sur une fenêtre temporelle courte de 400 ps centrée sur l'écho de l'onde longitudinale. La réponse thermique de la couche d'aluminium est retirée par régression polynomiale et les résultats sont présentés sur la figure 4.21 a). Des simulations sont également réalisées où le centre de la force d'excitation et le point de mesure sont décalés selon les directions 1 et 2. Les signaux sont coupés sur une fenêtre temporelle de 400 ps également et centrés sur l'écho associé à l'onde longitudinale. Les résultats obtenus sont présentés sur les figures 4.21 b) et c).

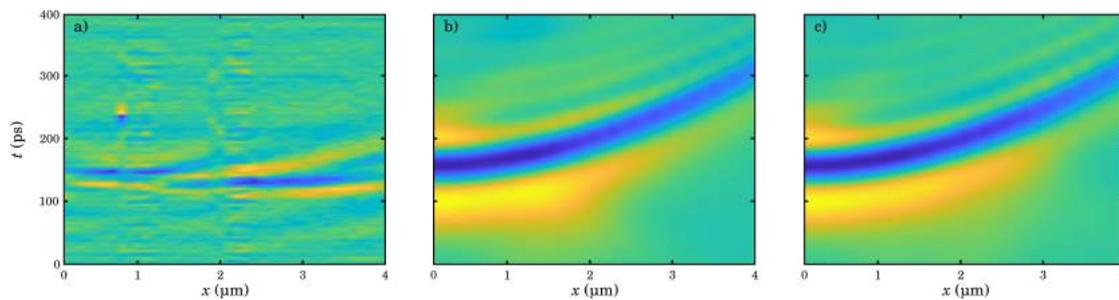


FIGURE 4.21 – a) Variations de réflectivité mesurées à différentes positions en s'écartant du centre de la pointe selon la direction 1 (axe $[1\bar{1}0]$). Déplacements calculés par simulations à différentes positions en s'écartant du centre du cône selon b) la direction 1 (axe $[1\bar{1}0]$) et c) la direction 2 (axe $[001]$)

Sur les résultats obtenus expérimentalement, figure 4.21 a), on observe que l'écho est mesuré à 150 ps en toutes positions. La structure de l'écho se transforme avec notamment un élargissement. Les résultats obtenus par simulations ne montrent pas la même tendance. L'écho est observé en toutes positions selon les directions 1 et 2. On observe toutefois que l'amplitude de l'écho est plus faible lorsque les faisceaux sont loin du bout de la pointe.

4.5 Mise en contact pointe - échantillon

4.5.1 Sensibilité au contact

Dans le but de démontrer la possibilité d'utiliser des sondes AFM pour la réalisation d'images acoustiques présentant une résolution nanométrique, on s'intéresse maintenant à la mise en contact entre la pointe AFM et un échantillon connu. On utilise pour cela le montage expérimental schématisé sur la figure 4.9. Par manque de temps, nous nous sommes focalisés sur l'utilisation des sondes AFM CT130.

La figure 4.22 a) introduit la variation de réflectivité mesurée sur une fenêtre de 1 ns centrée sur l'écho de l'onde longitudinale lorsque les faisceaux sont focalisés au niveau du bout de la pointe. La sonde est alors mise en contact avec un morceau de wafer de silicium orienté selon l'axe [100] à sa normale. En prenant un échantillon composé du même matériau que la pointe AFM et présentant la même orientation cristallographique, on minimise ainsi la différence d'impédance entre la pointe et l'échantillon au niveau de la surface de contact et maximise la possible transmission acoustique. La variation de réflectivité mesurée à l'instant de l'écho sur la même sonde une fois en contact est introduite sur la figure 4.22 b).

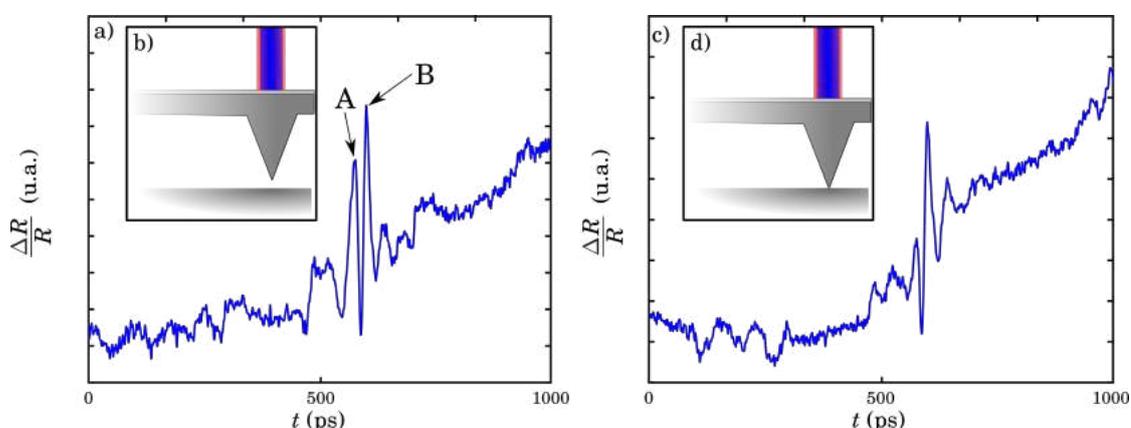


FIGURE 4.22 – Variations de réflectivité mesurées sur une sonde AFM au niveau de la pointe a) hors contact et d) en contact avec un wafer de silicium.

En comparant les figures 4.22 a) et b), on observe que l'on retrouve dans les deux cas l'écho présentant une signature similaire. Toutefois, lorsque la sonde AFM est en contact avec le wafer, on observe que l'intensité du pic A à 577 ps est beaucoup moins importante. Cela peut s'expliquer par un transfert d'énergie depuis la sonde AFM vers l'échantillon. Il est donc possible de détecter le contact entre la sonde AFM et un échantillon à l'aide de l'onde longitudinale se propageant dans la pointe. Le pic B à 600 ps ne semble quant à lui ne pas être affecté par le contact avec l'échantillon. Les deux signaux 4.22 a) et d) sont superposés sur la figure 4.23 a) après que la composante thermique ait été retirée. La différence des deux signaux est également introduite sur la figure 4.23 b). On observe un pic large au même instant que le pic B.

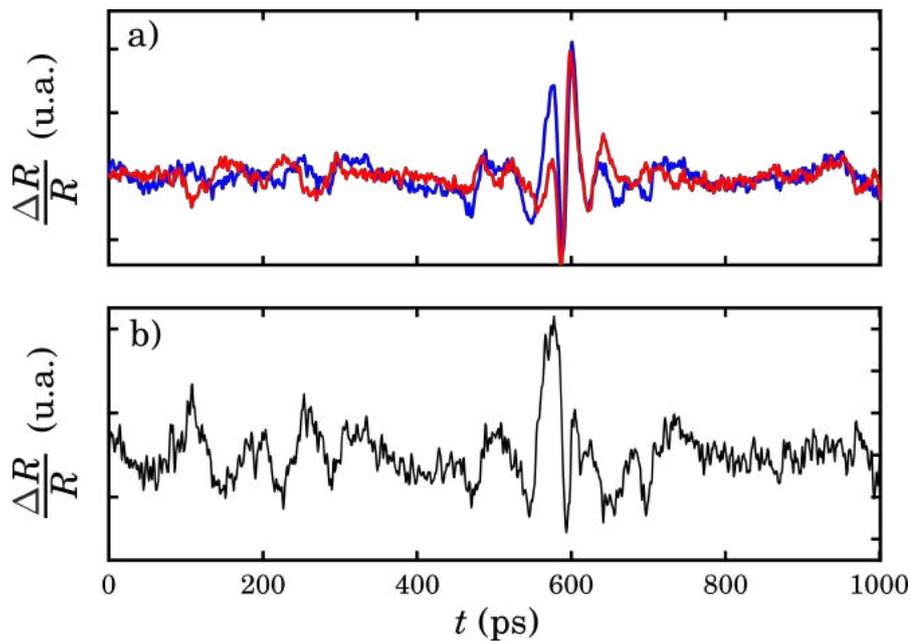


FIGURE 4.23 – a) Superposition des variations de réflectivité mesurées sur une sonde AFM CT130 au niveau du bout de la pointe en et hors contact. b) Différence de ces variations.

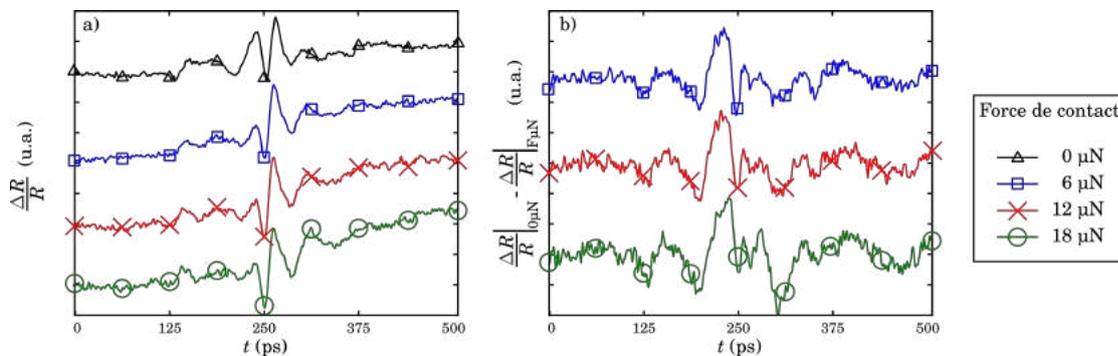


FIGURE 4.24 – a) Variations de réflectivité mesurées pour différents contacts entre la pointe AFM et un échantillon de silicium. b) Différence des variations de réflectivité mesurées pour différents contacts et de la variation mesurée hors contact.

Il est important de s'intéresser à la sensibilité de l'écho à la force de contact entre la pointe AFM et l'échantillon. On mesure pour cela la variation de réflectivité après avoir imposé un déplacement de la pointe de plusieurs micromètres après avoir mis en contact la pointe AFM et l'échantillon. Les différents échos mesurés sont représentés sur la figure 4.24 a).

On observe sur celle-ci que les échos présentent la même signature avec un pic à 240 ps moins intense qu'en absence du contact. Il semble donc que la force de contact n'influence que marginalement l'écho mesuré. Les différences entre les signaux obtenus pour différentes forces et celui mesuré hors contact sont introduites sur la figure 4.24 b). On retrouve dans chacun des cas la même structure avec un large pic à environ 240 ps. On note toutefois une baisse de $\Delta R/R$ pour une force plus importante à environ 310 ps.

Un telle sensibilité au contact entre la pointe AFM et un échantillon n'a pas été observé lors de l'étude réalisée sur les sondes SCOUT 70. Par conséquent, les résultats présentés par la suite ont été obtenus uniquement sur des sondes CT130.

4.5.2 Transmission acoustique

Les résultats présentés dans la partie 4.5.1 mettent en avant une transmission acoustique depuis la pointe AFM vers l'échantillon. Afin de valider cette hypothèse, on s'intéresse à la propagation dans l'échantillon après la génération d'ondes acoustiques dans la sonde. On utilise pour cela le montage en transmission schématisé sur la figure 4.10 dans la partie 4.3.2. L'échantillon utilisé pour cette mesure consiste en une membrane de silicium d'une épaisseur nominale de 10 μm . Celle-ci a été gravée chimiquement à partir d'un wafer SOI. Le silicium est donc orienté de manière à présenter un axe [100] normale à sa surface. On se place donc dans le même cas idéal que dans la partie 4.5.1 où l'on minimise la différence d'impédance entre la pointe et l'échantillon. Une fine couche d'aluminium est également déposée sur la surface de la membrane éclairée par le faisceau sonde, et qui n'est donc pas en contact avec la pointe AFM.

La figure 4.25 a) présente la variation de réflectivité mesurée directement sur la membrane. Le faisceau pompe est donc focalisé sur la membrane et aligné avec le faisceau sonde. On y observe la coïncidence à 69 ps ainsi que deux pics importants à 2404 et 4736 ps. Ceux-ci sont dus à l'onde longitudinale se propageant dans la membrane. Une nouvelle fois, à partir du temps de vol de l'onde, en considérant une vitesse de 8400 m s^{-1} , on retrouve une épaisseur de 9.81 μm proche de la valeur nominale de la membrane.

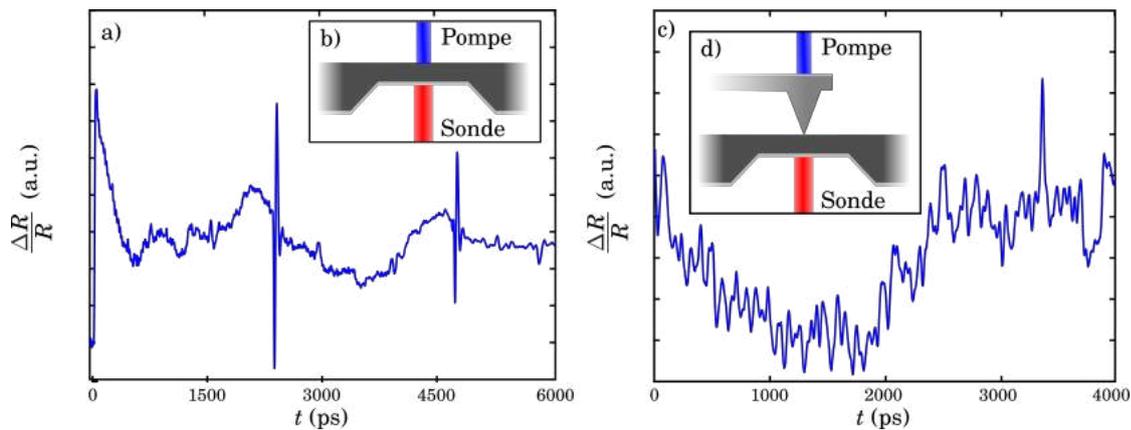


FIGURE 4.25 – a) Variation de réflectivité mesurée au niveau de la couche d’aluminium sur la surface inférieure de la membrane lorsque le faisceau pompe est focalisé sur la surface supérieure de la membrane. c) Variation de réflectivité mesurée au niveau de la couche d’aluminium sur la surface inférieure de la membrane lorsque le faisceau pompe est focalisé sur la couche d’aluminium supérieure de la sonde AFM et que cette dernière est en contact avec la membrane de silicium. Les schémas de ces deux mesures sont respectivement représentés sur les figures b) et d).

On place maintenant une sonde CT130 en contact avec l’échantillon. Le faisceau pompe est focalisé au niveau de la pointe sur la couche d’aluminium du cantilever. Le faisceau sonde est aligné avec le faisceau pompe et focalisé sur la couche d’aluminium de la membrane comme schématisé sur la figure 4.25 d). La variation de réflectivité mesurée est représentée sur la figure 4.25 c). Ni la coïncidence ni les échos dus à l’onde longitudinale ne sont détectés dans cette géométrie. On observe toutefois un pic sortant du bruit à 3372 ps. En considérant une vitesse de 8400 m s^{-1} , cela correspond à une épaisseur de $27.8 \mu\text{m}$. Or, la membrane présente une épaisseur de $10 \mu\text{m}$ et la sonde a une hauteur nominale de $16.7 \mu\text{m}$ au niveau de la pointe. Le temps de vol de cette onde indique donc que celle-ci est une onde longitudinale générée par une impulsion du faisceau pompe au niveau de la couche d’aluminium de la sonde AFM ayant traversé la pointe et l’échantillon.

Afin de confirmer cette hypothèse, des mesures sont réalisées avec une fenêtre temporelle plus courte centrée sur l’écho. Des mesures sont réalisées lorsque la pointe et l’échantillon sont en contact. La pointe est retirée du contact et de nouvelles mesures sont réalisées. Les deux signaux obtenus sont introduits sur la figure 4.26.

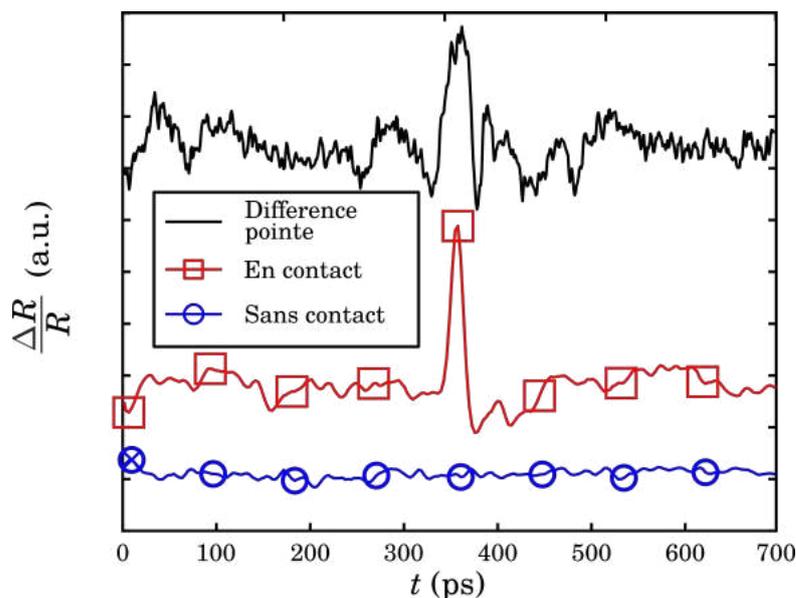


FIGURE 4.26 – Variations de réflectivité mesurées sur l'échantillon lorsque la pointe AFM est en contact et hors contact avec la membrane de silicium. Rappel de la différence de la variation de réflectivité mesurée sur la pointe AFM hors et en contact

La variation de réflectivité mesurée lorsque la pointe et l'échantillon sont en contact présente un écho à 359 ps d'une largeur à mi-hauteur de 15 ± 3 ps. Toutefois, lorsque le contact est retiré, l'écho n'est plus détecté. Le pic correspond donc bien à une onde transmise depuis la sonde AFM à l'échantillon. La différence calculée entre $\Delta R/R$ mesurée sur la pointe lorsque celle-ci est en contact et lorsque le contact est retiré est également rappelée sur la figure 4.26. On peut ainsi remarquer que le pic mesuré par transmission est plus fin que celui visible sur la différence.

Cette différence de signal implique également une différence dans le contenu fréquentiel entre l'onde transmise et celle qui n'est plus observée en réflexion. Plus précisément, un pic plus fin signifie un contenu fréquentiel plus élevé. Le bout de la pointe dont le diamètre est de l'ordre de quelques nanomètres d'après le constructeur agit comme un filtre passe-haut, effet attendu par diffraction pour une source de dimension inférieure aux longueurs d'ondes acoustiques émises. L'influence observée ici du bout de la pointe sur le contenu fréquentiel des ondes transmises justifie l'intérêt porté aux cônes de silicium dans la partie 4.2. Bien que des résultats incomplets ont été obtenus, l'utilisation de sondes AFM pour l'imagerie acoustique nécessite de connaître l'influence de la taille du guide dans lequel se propagent les ondes.

Une nouvelle étude en utilisant notamment le mode d'épaisseur des disques d'or introduit dans la partie 3.4 sera donc nécessaire. En modifiant l'épaisseur des disques, on module la fréquence de l'onde émise dans le substrat de silicium. Il est donc possible d'augmenter l'épaisseur afin de plus facilement obtenir des structures dont la zone de contact entre le disque et le cône de silicium est de l'ordre de grandeur voire inférieure à longueur d'onde transmise.

4.5.3 Imagerie de surface

L'échantillon utilisé dans la partie 4.5.1 permettait de se placer dans un cas idéal la différence d'impédance acoustique entre la sonde AFM et l'échantillon étant faible. Cela favorise ainsi le transfert d'énergie au bout de la pointe. Afin de s'intéresser à l'importance du matériau de l'échantillon avec lequel la pointe est en contact, on considère un nouvel échantillon. Celui-ci est formé d'un morceau de wafer de silicium partiellement recouvert d'une fine couche de 100 nm d'or déposée par évaporation thermique.

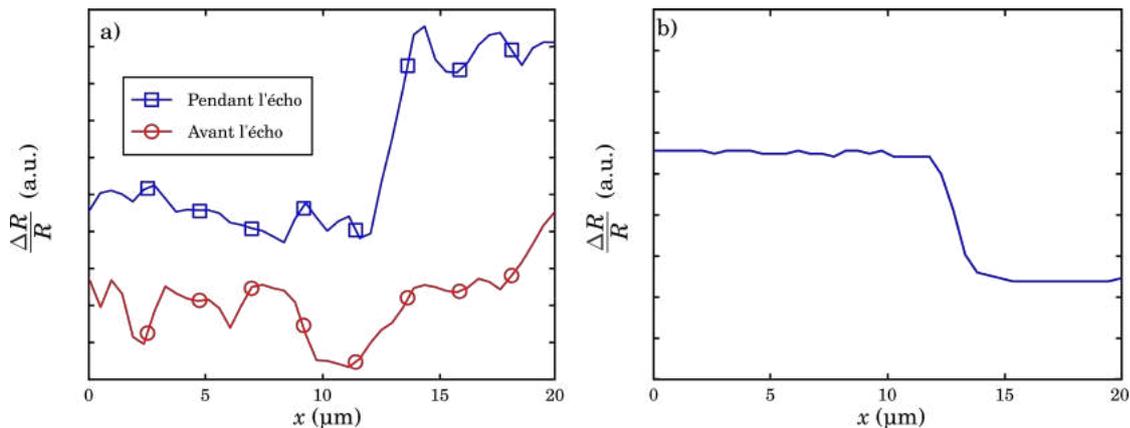


FIGURE 4.27 – a) Variation de réflectivité mesurée le long d'une ligne présentant deux matériaux à deux instants différents. b) Variation de l'intensité du faisceau sonde réfléchi par l'échantillon le long de la même ligne mettant en évidence la présence des deux matériaux, l'or et le silicium.

La pointe AFM est mise en contact avec cet échantillon. Elle est alors déplacée, toujours en contact le long de celui-ci de manière à ce que la pointe soit en contact avec le silicium puis passe sur l'or. En fixant la position de la ligne à retard, on mesure ainsi la variation spatiale de $\Delta R/R$ à un instant donné. Cette mesure est réalisée à différents instants sur un intervalle de temps comprenant l'écho.

La figure 4.27 a) présente les variations spatiales de $\Delta R/R$ le long de la ligne définie à deux instants différents : avant l'écho et pendant l'écho, plus précisément à l'instant du pic A identifié sur la figure 4.22 a). La mesure réalisée avant l'écho ne présente aucune structure clairement identifiable. Toutefois, celle réalisée pendant l'écho met en avant un saut important de la variation de réflectivité à $13 \mu\text{m}$.

La sonde AFM est retirée du montage expérimental et une nouvelle mesure est réalisée le long de la ligne. Toutefois, pour cette mesure, seul le faisceau sonde est focalisé sur l'échantillon. Il n'y a donc pas de génération acoustique par le faisceau pompe. Le faisceau sonde réfléchi par l'échantillon est mesuré par une unique photodiode. La figure 4.27 b) introduit la variation de l'intensité du faisceau réfléchi le long de la ligne. La ligne définie est la même que celle suivie par la sonde AFM. On observe sur cette figure une variation importante à $17 \mu\text{m}$ due au changement de matériau éclairé par le faisceau sonde.

On remarque que l'on observe la même structure sur la mesure introduite sur la figure 4.27 b) que sur la variation de $\Delta R/R$ au moment de l'écho sur la figure 4.27 a). Cette similitude ainsi que l'absence de structure sur la variation de $\Delta R/R$ avant l'écho met en évidence la possibilité de réaliser une image de la surface d'un échantillon.

On souhaite mettre en évidence que l'on ne détecte le changement de matériau uniquement pendant l'écho, et plus précisément à l'instant du pic A. Pour cela, on calcule pour chacune des mesures réalisées le long de la ligne, soit à chacun des instants considérés, la différence

$$\Delta r|_n = \left| \frac{\Delta R}{R} \Big|_n - \frac{\Delta R}{R} \Big|_{n+5} \right|. \quad (4.4)$$

Une valeur élevée de $\Delta r[n]$ indique un saut dans la variation spatiale de $\Delta R/R$ tel qu'observé à l'instant de l'écho sur la figure 4.27 a). Les résultats calculés sont présentés sur la figure 4.28 a).

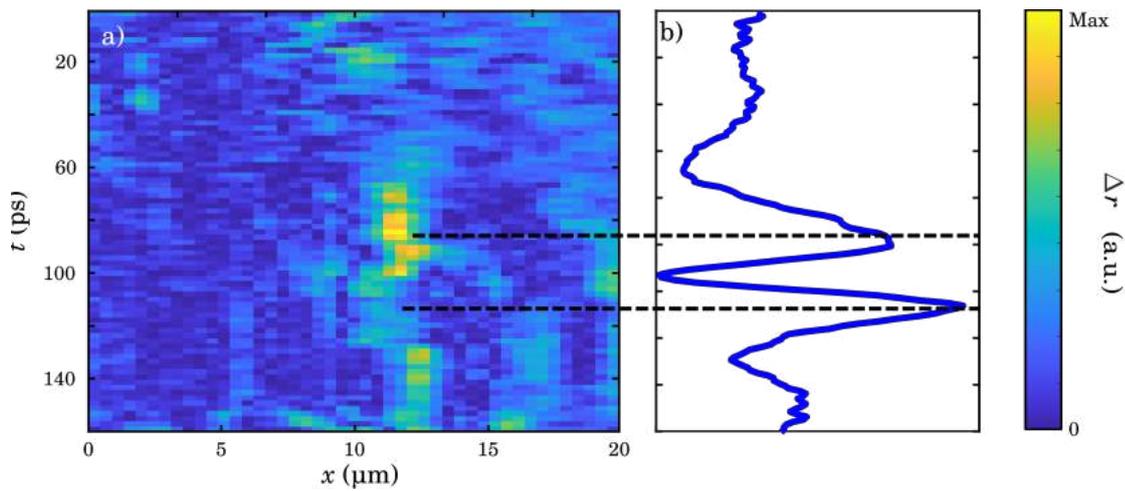


FIGURE 4.28 – a) Valeurs obtenues par le calcul de Δr . b) Variation de réflectivité mesurée au centre de la pointe en l'absence du contact avec l'échantillon.

La variation de réflectivité mesurée sur une sonde AFM au niveau de la pointe hors contact et déjà introduit sur la figure 4.22 a) est rappelé sur la figure 4.28 b). Le signal est coupé sur une fenêtre temporelle correspondant à l'intervalle de temps pendant lequel des mesures sur la ligne ont été réalisées. Les résultats présentés sur la figure 4.28 a) mettent en évidence que Δr prend des valeurs importantes à 13 μm sur un court intervalle de temps centré à 80 ps. Sur la figure 4.27 b), ce court intervalle de temps correspond au temps du pic A. Les valeurs de Δr aux instants du pic B restent faibles tout le long de la ligne. On note enfin que Δr prend des valeurs un peu plus élevées à 138 ps. Les résultats présentés dans cette partie confirment ceux introduits dans la partie 4.5.1 : seule une partie de l'écho associé à l'onde longitudinale réfléchie est sensible au contact avec un échantillon au bout de la pointe et aux propriétés de ce dernier.

4.6 Conclusion

L'étude dont les résultats sont présentés dans ce chapitre s'est intéressée à la possibilité d'utiliser des sondes AFM dans le but de développer une nouvelle technique d'imagerie acoustique avec une résolution spatiale nanométrique. Deux exemples de sondes ont été considérés.

Pour cela, on s'est intéressé dans un premier temps à la propagation d'ondes acoustiques dans la sonde elle-même. Après génération par une impulsion laser sur une surface recouverte d'aluminium, la propagation d'ondes longitudinales dans le cantilever ainsi que dans la pointe a pu être mesurée pour chacune des deux sondes. Des ondes transverses ont également pu être détectées.

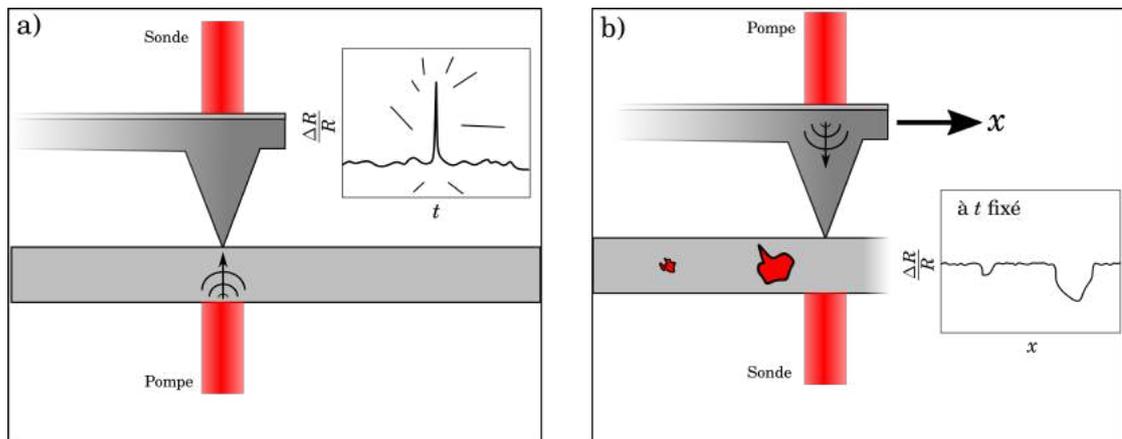


FIGURE 4.29 – a) Schéma de l'expérience visant à confirmer qu'une onde acoustique se propageant dans l'échantillon peut être transmise à la sonde au travers de la pointe.

Un écho unique de manière similaire à celui montré dans la partie 4.5.2 sur la figure 4.26 serait attendu. b) Schéma de l'expérience démontrant la possibilité de détecter un défaut ou une structure interne de l'échantillon par transmission. Une variation de $\Delta R/R$ à un instant donné au moment de l'écho dû à l'onde transmise traduirait une transmission moindre et donc une interface, un défaut, ... dans l'échantillon.

Dans un second temps, on s'est intéressé à la mise en contact d'un échantillon et d'une sonde AFM au niveau du bout de la pointe de cette dernière. Il a été observé que l'onde longitudinale se propageant dans la sonde au niveau de la pointe est sensible à ce contact.

En effet, une transmission acoustique depuis la sonde vers l'échantillon a pu être mise en évidence en examinant l'onde réfléchie au bout de la pointe dans la sonde mais également en détectant une onde transmise au travers de l'échantillon. Enfin, la sensibilité de l'onde réfléchie au matériau de l'échantillon avec lequel la sonde est en contact au niveau de la pointe a été mise en avant au travers de mesures le long de profils de l'échantillon.

Ces résultats sont prometteurs dans le but de développer une nouvelle technique d'imagerie acoustique pouvant être intégrée à un microscope à force atomique. Des résultats complémentaires sont néanmoins nécessaires avant de conclure aux possibilités que pourrait offrir cette technique. La transmission depuis la sonde AFM vers l'échantillon par un contact au niveau du bout de la pointe a été mise en évidence dans la partie 4.5.2. Des mesures doivent être réalisées pour vérifier si l'onde transmise est suffisamment sensible à des défauts ou des interfaces au sein de l'échantillon pour pouvoir réaliser une image de l'intérieur de ce dernier. Cette expérience est schématisée sur la figure 4.29 b).

Toutefois, dans cette dernière configuration, il reste nécessaire de focaliser le faisceau sonde sur l'échantillon. De plus, cela peut impliquer le besoin de réaliser un dépôt métallique sur l'échantillon. Ce besoin limiterait fortement les possibilités d'utilisation et compliquerait le système optique à implémenter au sein d'un AFM. Pour passer outre ce besoin, il serait nécessaire de vérifier qu'une onde acoustique dans l'échantillon puisse être transmise vers la sonde AFM comme cela est schématisé sur la figure 4.29 a).

Si une telle transmission est confirmée, cela permettrait de ne travailler qu'en géométrie de réflexion, où les deux faisceaux pompe et sonde sont focalisés sur la sonde AFM. Enfin, on pourrait s'intéresser à la possibilité de détecter une structure, qu'il s'agisse d'un défaut ou une interface par exemple, dans cette configuration telle que schématisée sur la figure 4.30.

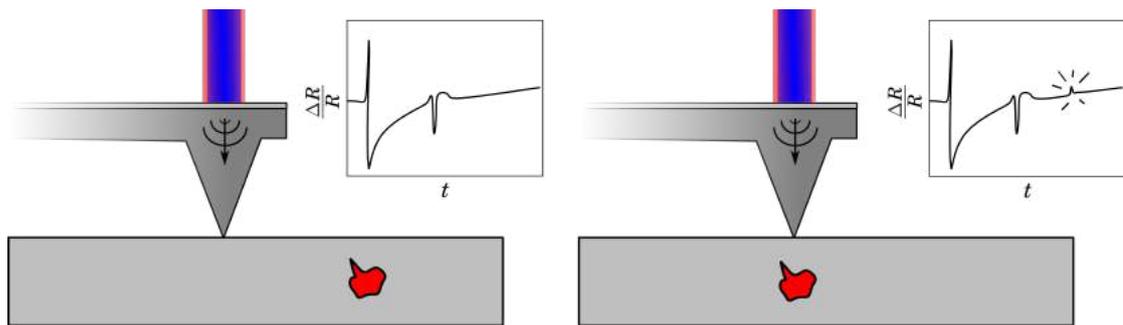


FIGURE 4.30 – Schema de l'expérience visant à vérifier qu'une structure ou un défaut dans un échantillon puisse être localisé par réflexion de l'onde transmise de la sonde vers l'échantillon.

La comparaison des résultats obtenus sur les deux exemples de sondes mettent en évidence l'importance cruciale du choix de la sonde. Une sonde la plus courte possible dans le but de limiter les pertes acoustiques est bien évidemment préférable. La forme de la sonde et surtout de la pointe a également son importance et pourrait être le sujet d'une étude complémentaire. L'utilisation d'ondes transverses à la place ou en plus des ondes longitudinales est également une problématique nécessitant des travaux.

Chapitre 5

Conclusion générale

Les travaux réalisés au cours de cette thèse se sont, de manière générale, intéressés à la possibilité d'utiliser des nanostructures comme sources acoustiques. L'objectif à plus long terme de ces recherches est le développement de nouvelles techniques d'imagerie acoustique présentant une résolution nanométrique.

L'émission d'ondes acoustiques, dont les fréquences sont de l'ordre de la dizaine de GHz, par des nanoparticules a pu être observée au cours des dernières années pour différentes formes de nanoparticules. Toutefois, les matériaux employés présentent peu de diversité en se limitant à seulement quelques métaux de transitions. Or, les ondes émises par une nanoparticule sont liées aux modes de vibrations de celle-ci et donc à la fois à sa forme ainsi qu'à ses propriétés mécaniques et élastiques. Le faible nombre de matériaux employés implique donc que, si l'on souhaite émettre des ondes à une fréquence donnée, il n'y ait peu de possibilités en terme de taille de nanoparticules et réciproquement. Une des possibilités pour permettre une plus grande diversité de nanoparticules employables est l'utilisation de particules présentant des hétérostructures. En effet, l'utilisation de plusieurs matériaux permet l'obtention de particules présentant des propriétés uniques. Toutefois, cela implique également de pouvoir caractériser ces nouvelles propriétés.

Au cours du chapitre 2 de cette thèse, une méthode de caractérisation complète des propriétés élastiques d'un nanofil à section circulaire métallique unique a été présentée. En effet, connaissant le rayon de ce nanofil, les vitesses longitudinales et transverses du matériau qui le compose peuvent être déterminées en résolvant l'équation de Pochhammer-Chree à partir des fréquences

des modes de respiration du nanofil. Ces fréquences peuvent être déterminées expérimentalement en réalisant une mesure pompe-sonde d'acoustique picoseconde sur un nanofil unique en utilisant un substrat pré-structuré limitant le contact et le transfert d'énergie vers le substrat.

Cette technique a été employée sur des nanofils d'or et les résultats obtenus sont cohérents avec les valeurs des vitesses pouvant être trouvées dans la littérature validant ainsi son utilisation. Il est aussi montré que la détection de modes de vibrations supplémentaires - pas de respiration - permet d'affiner les résultats et de diminuer l'incertitude sur les vitesses. Elle a également été utilisée afin de déterminer les propriétés élastiques de nanofils composés d'alliages d'or et d'argent dans des proportions différentes. La possibilité de moduler ces propriétés en modifiant la composition de l'alliage a ainsi été mise en avant. Cette étude a également permis de valider l'utilisation des modèles d'homogénéisation de Voigt et de Reuss à l'échelle nanométrique. Ces résultats sont particulièrement intéressants dans la perspective de synthétiser des nanofils complexes présentant des propriétés souhaitées. Dans le cadre de l'utilisation de nanofils comme sources acoustiques, cela ouvre également la voie à un plus grand nombre de possibilités en fréquence comme en taille.

Des premiers résultats encourageants ont également été obtenus sur des nanofils composés d'or poreux. Une augmentation de l'atténuation ainsi qu'une diminution de la rigidité des nanofils ont pu être mises en évidence. Il n'a toutefois pas été possible de déterminer les propriétés élastiques d'un milieu effectif homogène équivalent puisque seule la fréquence du mode de respiration fondamentale a été détectée. Il a également été montré que l'application d'une fine couche métallique - dans notre cas de l'aluminium - permet d'utiliser cette technique pour des nanofils composés de matériaux fragiles ou qui ne présentent qu'un très faible couplage lumière-matière. Ces résultats ouvrent la voie à l'utilisation de cette technique pour la caractérisation de nanofils composés de nouveaux matériaux très variés. Au sein de l'équipe 'Acoustique pour les NanoSciences' de l'INSP, elle est notamment considérée pour l'étude des propriétés piézoélectriques de nanofils à section hexagonale de nitrure de gallium. Cette technique pourrait également être employée pour étudier les vibrations - fréquences et surtout facteurs de qualités - de nanofils présentant d'autres hétérostructures. Des nanofils dits segmentés qui présentent une alternance de sections de différents matériaux sont particulièrement prometteurs dans le cadre du développement de bio-capteurs. Enfin, la technique présentée a également été employée afin de suivre l'évolution en température des propriétés de l'or. Une bonne cohérence entre les résultats obtenus sur les nanofils, ceux mesurés par temps de vol dans une couche mince et un modèle théorique a été observée, en particulier concernant la vitesse des ondes longitudinales.

L'utilisation de simples nanoparticules uniques comme sources acoustiques présente toutefois plusieurs autres limites que le simple besoin de caractériser au préalable leurs propriétés. La position de ces particules sur un échantillon n'est que peu - voire pas - maîtrisée. La réalisation d'images de l'échantillon étudié nécessiterait donc la démultiplication des nanoparticules employées et des mesures. La technique serait donc coûteuse et longue.

C'est la principale raison pour laquelle on s'est intéressé au cours des travaux présentés dans le chapitre 3 à la réponse vibrationnelle d'une structure composée d'un disque d'or d'épaisseur nanométrique partiellement supporté par un micro-cône de silicium. Le processus de fabrication de cette structure permet en effet de maîtriser sa position sur l'échantillon. L'étude s'est notamment portée sur l'influence de la zone de contact entre le disque et le cône de silicium sur lequel il repose. L'utilisation de disques présentant un rapport de forme important permet de distinguer et d'étudier séparément les modes radiaux et les modes d'épaisseur du disque, ces deux classes présentant des fréquences dans des gammes de fréquences différentes. Concernant le mode d'épaisseur fondamental, il a principalement été montré que le rayonnement dans le substrat est la principale raison de la perte d'énergie. En réduisant ou retirant le contact, on réduit donc considérablement les pertes d'énergie de ce mode par cycle. En étudiant ce rayonnement, l'émission dans le substrat de silicium d'ondes dont la fréquence est équivalente à celle du mode d'épaisseur a été démontrée.

L'impact de la zone de contact sur les modes radiaux des disques a également été investigué. La réalisation et l'utilisation d'un modèle numérique basé sur des simulations par éléments finis a été au préalable validée en comparant les résultats calculés à ceux obtenus expérimentalement pour un disque complètement supporté par le substrat de silicium. L'utilisation de ce modèle a permis de mettre en évidence qu'une gravure plus importante du substrat provoque un décalage en fréquence des différents modes radiaux des disques. Ainsi, une zone de contact plus faible entre le disque et le substrat aboutit à des fréquences également plus faibles. Cette tendance a pu être observée et confirmée expérimentalement. Des variations spatiales du contenu fréquentiel de la réponse vibrationnelle d'un même disque à des positions en contact et hors contact avec le silicium a été observée.

La possibilité d'exciter des disques par des ondes acoustiques se propageant dans le substrat a également été mise en évidence. Il a alors été démontré que la réponse vibrationnelle mesu-

rée dans ce cas présente un contenu fréquentiel différent de celles obtenues lorsque le disque est excité par une impulsion laser du faisceau pompe. Des modes supplémentaires ont ainsi été détectés. Cela ouvre la voie à la réalisation d'études vibrationnelles plus complètes de nanoparticules métalliques. Cela peut également permettre d'étudier les propriétés de particules composés de matériaux fragiles, tels que le bismuth, ou dont le couplage lumière-matière limite les possibilités aux longueurs d'ondes classiquement utilisées lors d'expériences pompe-sonde d'acoustique picoseconde, comme le nitrure de gallium. Ces résultats font également partie des premiers à démontrer la possibilité de détecter des ondes acoustiques à l'aide de nanoparticules.

On trouve aujourd'hui dans la littérature des travaux présentant la synthèse de nanodisques et nanoplaquettes dont l'épaisseur est de l'ordre de quelques nanomètres. Si la réduction de l'épaisseur des disques jusqu'à cet ordre de grandeur pose différents problèmes notamment concernant la rigidité même des disques ou encore l'absorption de la lumière lors de la mise en excitation, cela met en évidence les grandes possibilités de modulation de la fréquence du champ émis. L'utilisation d'un matériau dont la vitesse des ondes longitudinales est plus élevée constitue une autre voie pour la génération d'ondes de très hautes fréquences. Le développement de nanoplaquettes et nanodisques présentant des hétérostructures peut également permettre de réduire l'épaisseur tout en garantissant une absorption suffisante du faisceau lumineux d'excitation.

Pour la structure considérée, la taille de la source correspond à la zone de contact entre le disque d'or et le silicium. Le processus de fabrication qui consiste à graver le silicium sous le disque d'or permet de réduire très fortement la taille de cette source. Il est alors important de s'intéresser à l'impact que peut avoir le cône de silicium sur l'émission acoustique et notamment la directivité dans le cas où la taille de contact est inférieure aux longueurs d'ondes émises. Des mesures ont été réalisées en s'intéressant au champ acoustique réfléchi par le bout du cône pour différentes tailles. Malheureusement, la difficile maîtrise du processus de fabrication et l'impossibilité actuelle de contrôler complètement la taille de la zone de contact n'ont pas permis d'obtenir des structures suffisamment petites. Toutefois, l'importance de cette influence reste à déterminer. Des nouvelles mesures pourraient être réalisées au utilisant le champ émis par le disque au lieu de mesurer la réflexion dans le cône. En modulant l'épaisseur du disque, on peut en effet modifier la fréquence du mode d'épaisseur et donc des ondes émises. Une épaisseur plus importante impliquerait d'avoir moins besoin de graver le silicium afin d'obtenir une zone de contact dont le diamètre est inférieur à la longueur d'onde. Il serait donc plus facile d'obtenir des structures présentant les caractéristiques souhaitées.

La position de la nanostructure étudiée au cours du chapitre 3 est maîtrisée et le champ acoustique qu'elle émet peut être modulé dès sa conception. Toutefois, afin d'être utilisée pour réaliser des images d'un échantillon, elle nécessite d'être directement synthétisée sur celui-ci ce qui limite son utilisation. De plus, elle ne peut être bougée et son rayon d'action est par conséquent limité. Ce type de structure reste néanmoins un bon candidat dans la cadre d'études de contrôle de santé intégré. Ce type d'études est généralement utilisé pour contrôler l'état de structures et la présences de défauts et autres fissures.

Dans le cas de structures imposantes ou difficilement accessibles tels que des ponts ou encore des gratte-ciels, les capteurs piézoélectriques employés sont directement intégrés à la structure elle-même. De façon analogue, on peut ainsi imaginer synthétiser et intégrer la nanostructure étudiée dans ce chapitre directement sur des structures nécessitant un contrôle régulier de leur santé et la détection de fissures à l'échelle nanométrique.

Finalement, il a été proposé au cours des travaux présentés lors du chapitre 4 de cette thèse d'utiliser des sondes AFM comme sources acoustiques. L'approche choisie est très différente des techniques d'AFM acoustique classiques. Celles-ci consistent généralement à étudier les variations de la force de contact, par exemple, provoquées par la mise en vibration soit de l'échantillon étudié soit de la sonde employée. On propose ainsi de générer des ondes acoustiques à l'aide d'une impulsion laser dans une sonde AFM mise en contact avec l'échantillon souhaité au niveau du bout de la pointe. L'étude des ondes transmises et réfléchies au niveau de cette interface permettent alors d'étudier l'échantillon considéré.

Dans cette perspective, la propagation acoustique au sein même de la sonde AFM a donc été étudiée dans un premier temps. Deux types de sondes présentant des géométries différentes ont été considérées. Pour chacune d'entre elles, les ondes longitudinales ont pu être identifiées lors de la propagation de celles-ci selon l'épaisseur du cantilever et surtout au niveau de la pointe. L'importance de la géométrie de la pointe sur les ondes mesurées a ainsi été mise en évidence. L'anisotropie du silicium composant la sonde AFM a également été observée en étudiant les ondes réfléchies par le bout de la pointe. Un modèle numérique a été développé et les résultats obtenus sont cohérents avec ceux observés expérimentalement qualitativement.

La sensibilité de l'onde réfléchi au bout de la pointe à la présence d'un échantillon en contact a également été montrée en mettant notamment en avant une perte d'énergie lorsqu'il y a contact. La transmission d'ondes au travers de la sonde vers l'échantillon a été confirmée par la détection d'ondes longitudinales dans l'échantillon. Il a également été démontré que le champ acoustique réfléchi mesuré n'est pas sensible dans son intégralité à la présence d'un échantillon en contact. Seule une partie des structures mesurées permet d'obtenir des informations sur l'échantillon. La possibilité de réaliser une image de l'impédance de surface d'un échantillon a été montrée en s'intéressant à la variation d'intensité de l'onde réfléchi lors d'un changement de matériau avec lequel la pointe est en contact. La réalisation de mesures complémentaires est néanmoins nécessaire afin d'obtenir une image complète d'un échantillon présentant différents matériaux à sa surface.

Différentes expériences sont proposées afin de continuer à vérifier la potentielle utilisation de sondes AFM au sein desquelles se propagent des ondes acoustiques dans le but de réaliser des images en trois dimensions d'un échantillon avec une résolution nanométrique. La possibilité pour une des ondes d'être transmises depuis l'échantillon vers la sonde, la transmission réciproque de ce qui a été observée, est notamment d'un grand intérêt pour pouvoir étudier un échantillon sans que celui-ci ne soit en contact avec le moindre faisceau lumineux. Une étude plus poussée pourrait également être conduite sur la forme de la pointe de la sonde AFM. Les résultats obtenus dépendraient bien évidemment de la configuration choisie, en réflexion ou en transmission. Une géométrie en transmission nécessiterait de maximiser la transmission et les travaux réalisés sur les trous noirs acoustiques pourraient être une source d'inspiration par exemple.

L'utilisation de ces sondes permettrait d'avoir une source acoustique de taille nanométrique, le diamètre au bout des pointes étant de l'ordre de la dizaine de nanomètre, dont la position par rapport à un échantillon est maîtrisée et qui peut être déplacée. Le contenu fréquentiel dans ce cas de l'onde acoustique utilisée serait "décidé" par le processus de génération acoustique photoélastique au niveau de la couche métallique recouvrant la pointe AFM. Cette technique pourrait alors être intégrée à un microscope à force atomique et permettrait d'étudier avec une grande précision la surface mais aussi le volume d'échantillons sans avoir à les placer sous vide, à des températures extrêmement froides ou encore à les exposer à de forts rayonnements électromagnétiques.

Annexes

Annexe A

Suivi des propriétés élastiques de l'or en fonction de la température

La méthode inverse présentée au sein du chapitre 2 permet de déterminer les propriétés élastiques du milieu composant un nanofil en s'intéressant aux fréquences des modes de respiration de ce dernier. Au cours de ce chapitre, on propose d'utiliser cette technique afin de suivre l'évolution des propriétés élastiques de l'or en fonction de la température. Cette étude s'est malheureusement avérée incomplète. On présente toutefois dans cette annexe les résultats obtenus.

Mesures de propriétés sur nanofils

Échantillons utilisés

Afin d'utiliser la technique décrite dans le chapitre 2, on utilise des nanofils composés d'or synthétisés au GSI Helmholtz par électrodéposition selon la méthode détaillée dans la partie 2.3. Les échantillons étudiés présentent des nanofils de diamètre nominal 160 ou 180 nm placés sur des substrats de silicium. Il n'est pas possible d'utiliser des substrats pré-structurés. En effet, à hautes températures, les nanofils glissent et tombent au fond des tranchées.

Montage expérimental

Le montage expérimental utilisé pour cette étude est schématisé sur la figure A.1. Ce dernier est similaire à celui utilisé dans le chapitre 2. Toutefois, afin de pouvoir augmenter la température des nanofils, l'échantillon étudié est placé au sein d'un four à Argon (TS1500, Linkam) au lieu du microscope Olympus. Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés sur le nanofil d'intérêt à l'aide d'un objectif de grossissement 50 et d'ouverture numérique 0.5. La température du four est contrôlée par ordinateur à l'aide d'une interface et d'un thermocouple dans le four. On peut ainsi faire varier celle-ci sur une large gamme de température, depuis la température ambiante et jusqu'à 1500 °C.

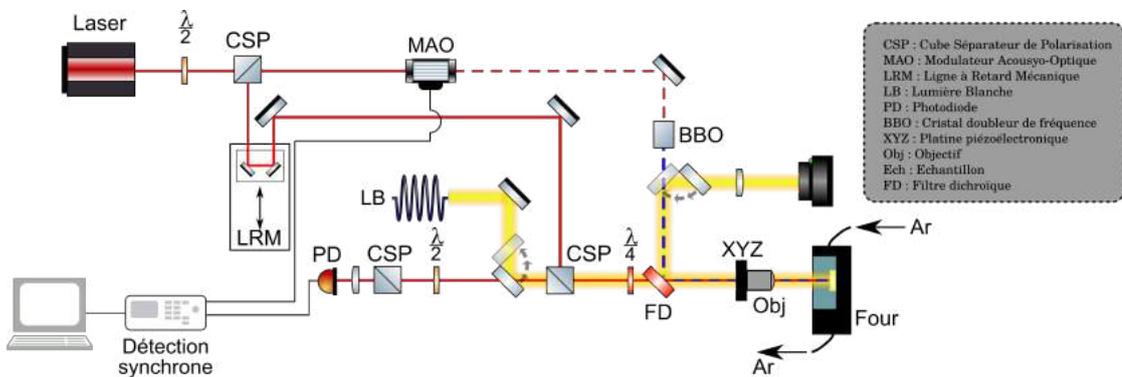


FIGURE A.1 – Schéma optique du montage en réflexion expérimental utilisé pour l'étude des nanofils d'or en fonction de la température.

Résultats expérimentaux

Pour un même nanofil des mesures sont réalisées par pas de 100 °C à partir de 100 °C et jusqu'à 900 °C. On rappelle que la température de fusion de l'or est de $T_F = 1064$ °C. On fait ainsi attention à rester loin de ce point. Une mesure est également réalisée à température ambiante, soit à environ 20 °C. Pour chaque mesure, les fréquences des deux premiers modes de respiration sont relevées si ces modes sont détectés.

La figure A.2 présente la fréquence du premier mode de respiration mesurée sur un unique nanofil de diamètre nominal 180 nm pour différentes température, entre 20 et 600 °C. Ce mode n'est plus détecté au-delà de cette température. On observe sur cette figure que la fréquence

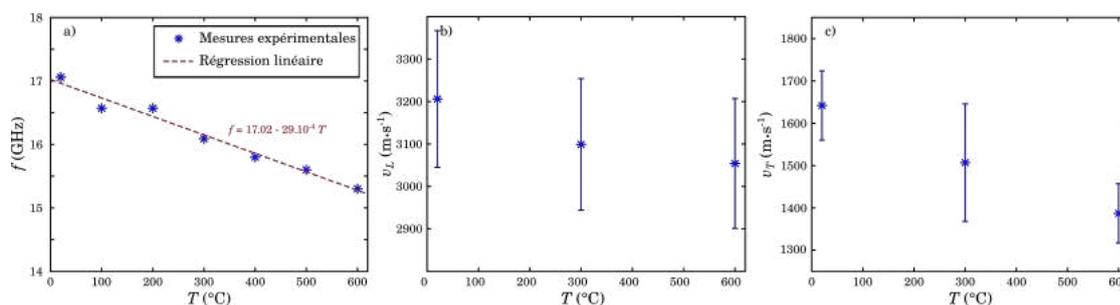


FIGURE A.2 – a) Evolution de la fréquence du premier mode de respiration d'un nanofil d'or de 160 nm en fonction de la température. Evolutions des vitesses b) longitudinales et c) transverses dans l'or en fonction de la température déterminées à partir des fréquences des modes de respirations d'un nanofil

du premier mode de respiration diminue à mesure que la température augmente. En raison de l'absence de tranchées dans le substrat de silicium, le second mode de respiration n'est que rarement détecté. Les vitesses longitudinales et transverses obtenues à partir de mesures sur un nanofil à température ambiante, 300 °C et 600 °C sont représentées sur les figures A.2 b) et A.2 c). Les barres d'erreurs prennent en compte une incertitude relative de 5% sur le rayon du nanofil. On remarque sur les deux figures que les vitesses diminuent à mesure que la température augmente.

Mesure sur couche d'or

Afin de comparer les vitesses obtenues sur nanofil, on cherche à déterminer les vitesses dans une couche épaisse d'or. On réalise pour cela des mesures de temps de vol à différentes températures.

Échantillons utilisés

Une couche épaisse d'or d'une épaisseur nominale de 400 nm est déposée par évaporation thermique sur un wafer de verre. Une fine couche de 10 nm de chrome est placée sur le verre afin d'améliorer l'adhérence de l'or.

de la couche d'or. Celle-ci peut être estimée à 5% considérant la technique de synthétisation employée pour fabriquer cette couche d'or. La vitesse déterminée en prenant en compte cette incertitude est donc de $v_L = 3170 \pm 160 \text{ m s}^{-1}$.

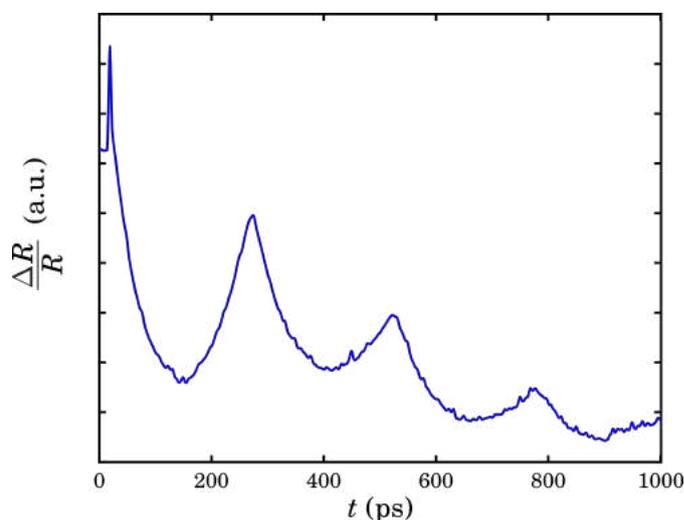


FIGURE A.4 – Variation de réflectivité mesurée par interférométrie sur une couche d'or mesurée à température ambiante (20 °C) présentant trois pics à 274, 522 et 776 ps

Sur la figure A.5 a), les variations de réflectivité mesurées à température ambiante mais également de 100 à 400 °C sont représentées. Des agrandissements sont réalisés sur les instants de la coïncidence et des trois pics. On note sur la figure A.5 b) que la coïncidence est bien mesurée au même instant pour chacun de ces signaux. Toutefois, sur les figures A.4 c), d) et e), on note que les pics sont détectés avec du retard croissant avec la température qui augmente. Pour chacun de ces signaux, la vitesse longitudinale est déterminée et les résultats sont présentés sur la figure A.6 a). On observe tout comme sur les nanofils que la vitesse de l'onde longitudinale diminue à mesure que la température augmente.

Prise en compte de la dilatation de l'or

Dans le cadre de mesures de temps de vol en fonction de la température, il est important de s'intéresser à l'impact de la dilatation thermique du matériau. Ainsi, le coefficient de dilatation thermique linéaire de l'or est de $14.2 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$. Toutefois, cette valeur n'est que représentative

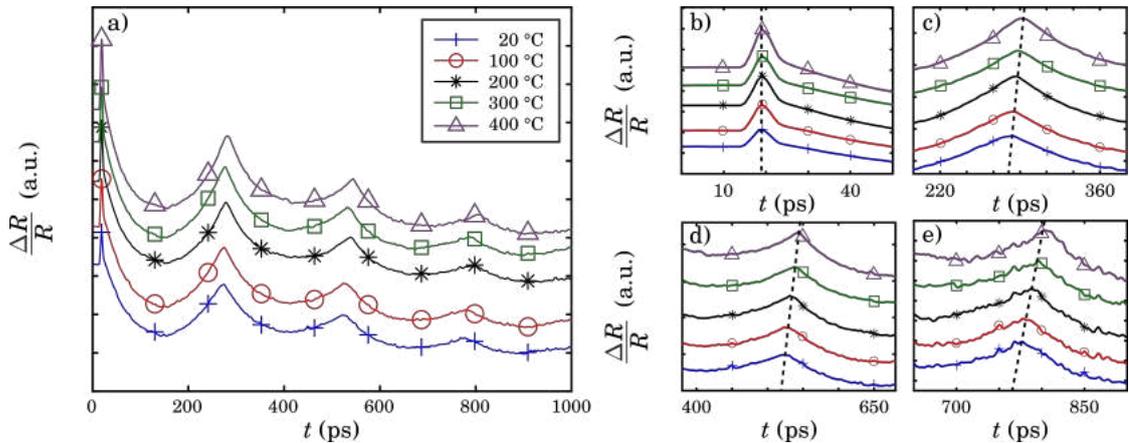


FIGURE A.5 – a) Variations de réflectivité mesurées par interférométrie sur une couche d'or mesurée à différentes températures. Zoom sur b) la coïncidence c) le premier pic d) le second pic et e) le troisième pic. Les signaux sont décalés à l'aide de composantes continues. Sur les figures b), c), d) et e), les lignes en pointillées passent par les maximums des pics, mettant en évidence le décalage temporel

de l'intervalle de température allant de 0 à 100 °C. Elle est donc insuffisante pour l'intervalle de température considéré au cours de cette étude.

Une étude a présenté les résultats de différents métaux dont l'or [94]. Les auteurs mettent en avant une expansion quasiment uniforme sur une large gamme de température (entre 293 et 1228 K). Ils proposent alors de décrire l'évolution à l'aide de l'équation

$$\frac{\Delta L}{L_0} = A_{1_i}(T - 293) + A_{2_i}(T - 293)^2 \quad (\text{A.2})$$

où ΔL est la variation de longueur, L_0 la longueur à 293 K, T la température en Kelvin. A_{1_i} et A_{2_i} sont quant à eux des coefficients déterminés empiriquement. L'indice i indique la technique employée pour déterminer ces coefficients. En effet, deux méthodes ont été utilisées afin de les déterminer : la dilatométrie et la diffraction de rayons X. Les valeurs sont données dans le tableau A.1. Les coefficients sont valides sur la gamme de température utilisée pour les déterminer.

ΔL correspondant à la variation de longueur, celle-ci peut être exprimée sous la forme $\Delta L = L - L_0$ où L est la longueur à la température T considérée. L'expression A.2 peut donc être arrangée afin de pouvoir calculer la longueur L en fonction de la température connaissant la

	A_{1_i} (K)	A_{2_i} (K ²)	Gamme T (K)
Dilatmètre ($i = 1$)	1.36×10^{-5}	2.74×10^{-9}	[273, 1100]
Diffraction de rayons X ($i = 2$)	1.27×10^{-5}	4.25×10^{-9}	[273, 1325]

TABLE A.1 – Coefficients déterminés expérimentalement par dilatométrie ou par diffraction des rayons X utilisés par la loi A.2 pour décrire la dilation de l'or. Chaque couple de coefficients est valide sur la gamme de température employé pour les déterminer.

longueur initiale et les coefficients. Cette nouvelle équation s'exprime

$$L = [A_{1_i}(T - 293) + A_{2_i}(T - 293)^2 + 1]L_0. \quad (\text{A.3})$$

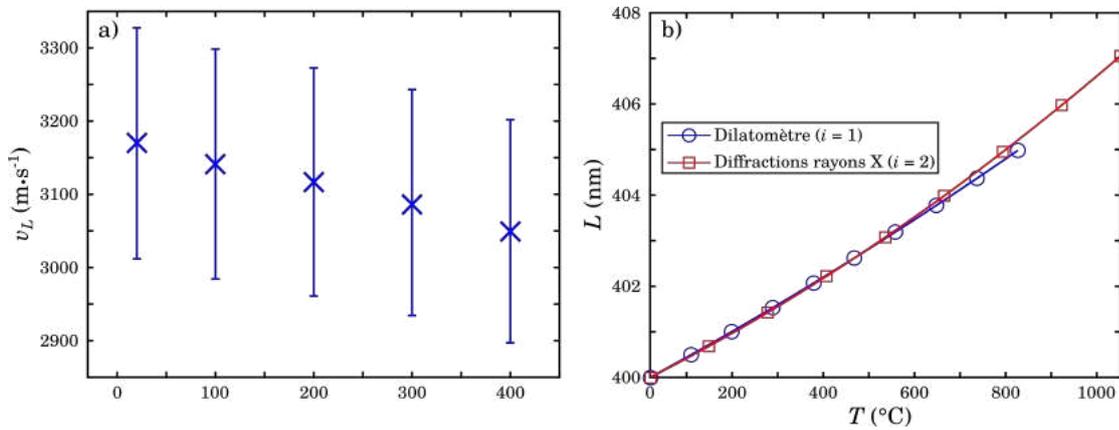


FIGURE A.6 – a) Evolution de la vitesse mesurée sur la couche d'or par temps de vol. b) Variation de l'épaisseur de la couche d'or due à la dilation thermique.

En prenant une longueur initiale de $L_0 = 400$ nm, la longueur L est calculée pour chaque couple de constantes (A_1 , A_2) et les résultats sont représentés sur la figure A.6 b). On note sur cette figure que l'augmentation d'épaisseur due à la dilation de l'or est faible devant son épaisseur initiale. Ainsi, pour une couche d'or de 400 nm à 20°C, l'épaisseur de celle-ci est de 406.6 nm à 1000°C. Cela correspond à une variation relative de 1.65%. Elle est donc quasiment 4 fois inférieure à l'incertitude de l'épaisseur de la couche d'or due à sa fabrication. On peut toutefois s'intéresser à l'influence de cette variation d'épaisseur sur la mesure des vitesses longitudinales dans la couche d'or. Les valeurs prenant en compte la dilation sont comparées à

celles en l'absence de cette correction sur la figure A.7 a). La vitesse calculée à 400 °C en prenant en compte la dilatation est de $3050 \pm 152 \text{ m s}^{-1}$ quand elle est de $3066 \pm 154 \text{ m s}^{-1}$ si on la considère. La variation étant faible, il est possible de la négliger en l'absence d'une mesure précise de l'épaisseur de la couche d'or à température ambiante.

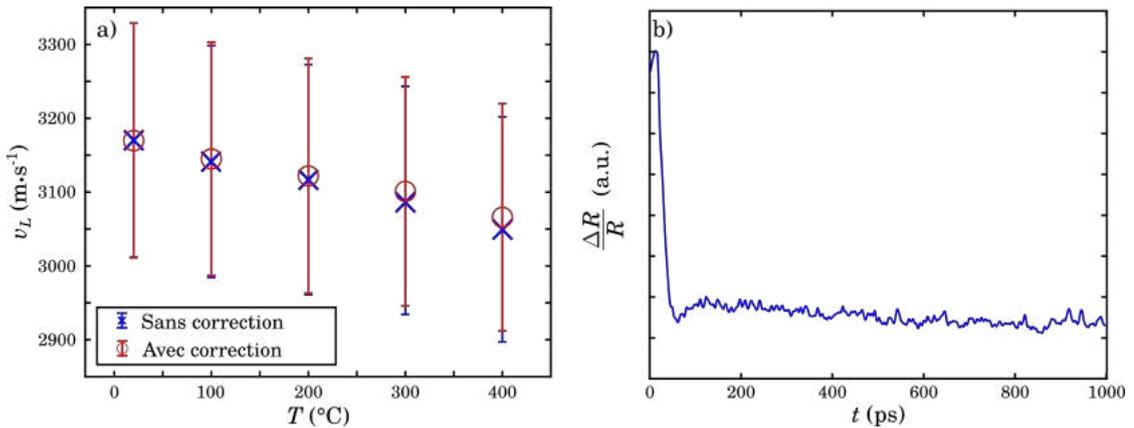


FIGURE A.7 – a) Comparaison des variations de la vitesse longitudinale dans l'or en fonction de la température avec ou sans prise en compte de la dilatation thermique. b) Variation de réflectivité mesurée sur la couche d'or à une température de 600 °C

Les résultats expérimentaux présentés dans cette partie sont limités à l'intervalle [20, 400]°C. En effet, aucun résultat n'ont pu être obtenu à plus hautes températures. La figure A.7 b) représente par exemple le signal obtenu sur la même couche d'or mais à 600 °C. Sur ce signal, aucun pic ne sont détectés. Il n'est donc pas possible de calculer la vitesse longitudinale à cette température. La raison à ce changement n'a pas pu être clairement identifiée. De nouvelles mesures ont été réalisées avec un échantillon similaire mais sans la couche de chrome servant de couche d'adhérence. Le même phénomène a pu être observé indiquant que le changement observé n'est pas lié à un phénomène de diffusion des atomes de chrome dans l'or. La littérature fait état de changements morphologique de l'or en fonction de la température, notamment de réarrangement des grains dans le cas d'or polycristallin. Toutefois, cela semble peut probable qu'il s'agisse de la raison à ce changement important des propriétés optiques et/ou élastiques. Cela est du à une modification morphologique non-identifiée de la couche d'or.

Modèle théorique

Constantes élastiques et vitesses acoustiques

Différentes études se sont intéressées à l'évolution des propriétés élastiques de l'or en fonction de la température. Ces études ont notamment cherché à déterminer expérimentalement les constantes élastiques du tenseur des rigidités de l'or à l'aide de mesure de temps de vol. En effet, dans le cas d'or monocristallin, celui-ci présente une structure cubique face centrée. Une telle structure peut être caractérisée à l'aide de trois composantes c_{11} , c_{12} et c_{44} et peuvent être obtenues à partir des vitesses et de la masse volumique ρ du matériau selon les expressions

$$c_{11} = \rho(v_{L_{[100]}})^2 \quad (\text{A.4})$$

et

$$c_{44} = \rho(v_{T_{[100]}})^2 \quad (\text{A.5})$$

où $v_{L_{[100]}}$ et $v_{T_{[100]}}$ sont les vitesses des ondes longitudinales et transverses respectivement selon l'axe [100] du cristal. La composante c_{12} s'exprime quant à elle

$$c_{12} = \rho(v_{L_{[110]}})^2 - c_{11} - 2c_{44}. \quad (\text{A.6})$$

où $v_{L_{[110]}}$ est la vitesse des ondes longitudinales selon l'axe [110] du cristal.

Modèles d'homogénéisation

S.M.Collard et R.B.MecLellan ont regroupé les résultats de différentes études [95]. Utilisant les modèles d'homogénéisation de Voigt et de Reuss, ils proposent de définir les modules d'Young E et de cisaillement G de l'or polycristallin à partir des constantes élastiques de l'or monocristallin. Le modèle de Reuss donne ainsi les expressions

$$E_R = \frac{5c_{44}(c_{11}-c_{12})(c_{11}+c_{12})}{c_{11}^2+c_{11}c_{12}-2c_{12}^2+3c_{44}c_{11}+c_{44}c_{12}}, \quad (\text{A.7})$$

$$G_R = \frac{5c_{44}(c_{11}-c_{12})}{4c_{44}+(c_{11}-c_{12})} \quad (\text{A.8})$$

quant au modèle de Voigt, il conduit aux expressions

$$E_V = \frac{(c_{11}-c_{12}+3c_{44})(c_{11}+2c_{12})}{2c_{11}+3c_{12}+c_{44}}, \quad (\text{A.9})$$

$$G_V = \frac{c_{11}-c_{12}+3c_{44}}{5}. \quad (\text{A.10})$$

Loi polynomiale

Enfin, ils proposent de décrire à l'aide d'une loi polynomiale du quatrième ordre l'évolution des constantes élastiques de l'or en fonction de la température. Celle-ci s'exprime

$$(E, G) = \alpha + \beta T + \gamma T^2 + \delta T^3 + \epsilon T^4 \quad (\text{A.11})$$

où la température T est exprimée en Kelvin. Les coefficients α , β , γ et δ sont déterminés en réalisant une régression polynomiale des données expérimentales. Attention toutefois les coefficients fournis dans [95] présentent vraisemblablement une erreur de signe. Par conséquent, les coefficients utilisés sont ceux fournis dans la thèse de S.M. Collard [96]. Ceux-ci sont donnés dans le tableau A.2.

	α (GPa)	β (GPa/K ¹)	δ (GPa/K ²)	γ (GPa/K ³)	ϵ (GPa/K ⁴)
E	0.8486	-2.6726×10^{-4}	-0.6579×10^{-7}	1.8372×10^{-10}	-1.3490×10^{-13}
G	0.2853	-0.5019×10^{-4}	-1.0286×10^{-7}	1.3848×10^{-10}	-0.7448×10^{-13}

TABLE A.2 – Coefficients utilisés par la loi polynomiale A.11 décrivant l'évolution des modules d'Young E et de cisaillement G obtenus par régressions polynomiales des données expérimentales

Vitesses dans l'or

Le coefficient de Poisson ν peut à son tour être calculé à partir des modules d'Young et de cisaillement selon l'expression

$$\nu_i = \frac{E_i}{2G_i} - 1. \quad (\text{A.12})$$

où l'indice i correspond à V ou R selon que l'on utilise les modules obtenus par le modèle de Voigt ou de Reuss. Connaissant dans le cadre de chacun des deux modèles, le module d'Young et le coefficient de Poisson, les vitesses longitudinales et transverses peuvent être déterminées à l'aide des expressions

$$v_L = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}}, \quad (\text{A.13})$$

$$v_T = \sqrt{\frac{E}{2\rho(1+\nu)}}. \quad (\text{A.14})$$

où ρ est la masse volumique du matériau qui prend la valeur $19\,300\text{ kg m}^{-3}$ dans le cas de l'or. Les évolutions de ces deux vitesses ainsi que la moyenne arithmétique sont représentées entre 0 et $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ sur les figure A.8 a) et b) respectivement.

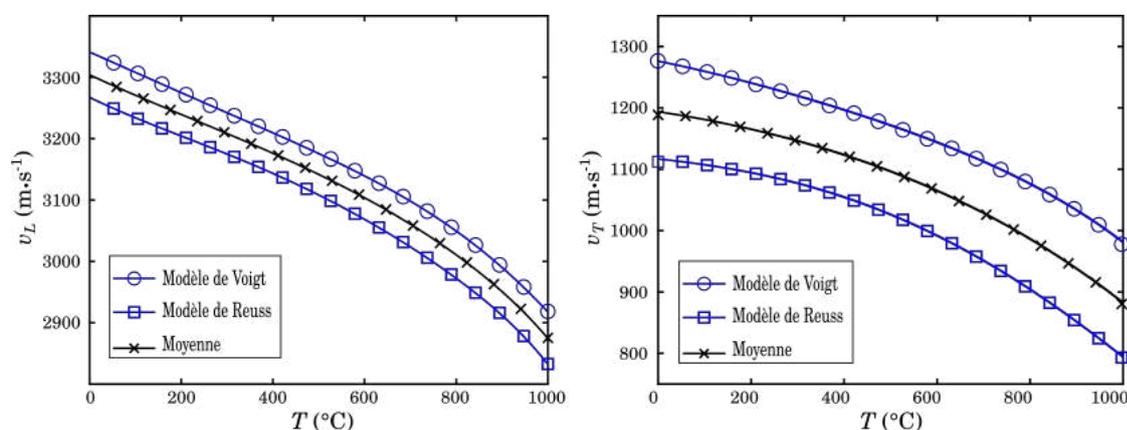


FIGURE A.8 – Evolution de vitesses a) transverses et b) longitudinales dans l'or en fonction de la température déterminée à l'aide des modèles d'homogénéisation de Voigt et de Reuss à partir des constantes élastiques de l'or monocristallin.

On observe sur les figures A.8 a) et b) que les vitesses décroissent à mesure que la température augmente. Cette tendance se retrouve pour les deux modèles d'homogénéisation. Toutefois, les valeurs obtenues à l'aide du modèle de Voigt sont supérieures à celles données par le modèle de Reuss, d'environ 200 m s^{-1} dans le cas de la vitesse transverse et de 100 m s^{-1} pour la vitesse longitudinale. Entre 0 et $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$, la vitesse transverse décroît d'environ 25% tandis que la vitesse longitudinale diminue d'environ 12%.

Comparaison des résultats

Les vitesses déterminées sur un nanofil d'or à l'aide de la méthode inverse du chapitre 2 sont comparées sur les figures A.9 à celles obtenues par mesure de temps de vol sur la couche d'or ainsi que celles prédites par la loi polynomial de Collard et MacLellan.

Sur la figure A.9 a), on observe que les vitesses des ondes longitudinales déterminées sur le nanofil ou sur la couche d'or sont inférieures à celles données par les modèles. Toutefois, les valeurs données par les modèles sont comprises dans l'intervalle de l'incertitude sur le rayon du nanofil ou sur l'épaisseur de la couche d'or. Dans le cas de la vitesse des ondes transverses,

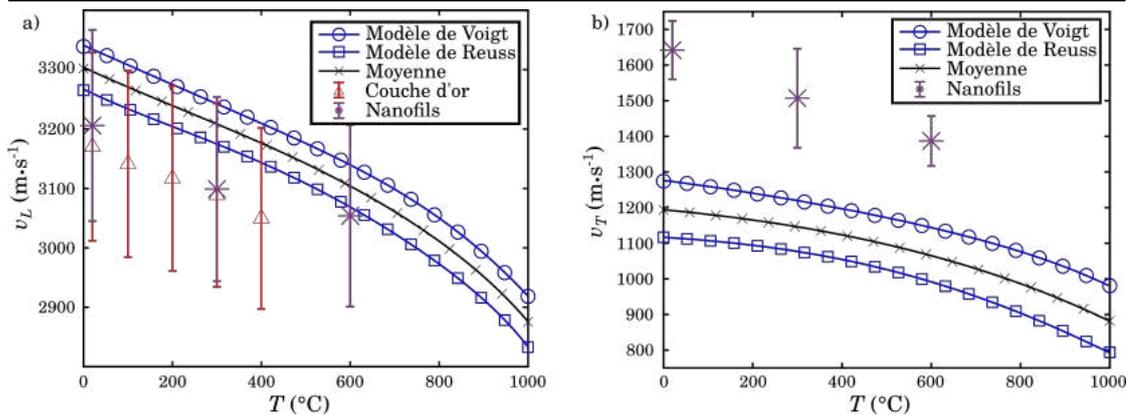


FIGURE A.9 – Comparaison des vitesses a) longitudinales et b) transverses obtenues expérimentalement sur la couche d'or et sur un nanofil et théorique

figure A.9 b), les valeurs déterminées en s'intéressant aux fréquences des modes de respiration d'un nanofil sont supérieures à celles prédites par les modèles. L'incertitude sur le rayon du nanofil ne compense pas cette différence. Il est nécessaire de rappeler que les fréquences des modes de respiration sont moins sensibles à la vitesse transverse qu'à la vitesse longitudinale.

Instabilité de Savart-Plateau-Rayleigh

Lors des expériences réalisées à hautes températures, à partir de 600 °C soit encore loin de la température de fusion de l'or, il a pu être observé que les nanofils d'or se disloquent pour former des particules quasi-sphériques. Il a été considéré d'utiliser cette instabilité, nommée instabilité de Savart-Plateau-Rayleigh (ou SPR), afin d'obtenir des chaînes de nanosphères régulièrement espacées. Toutefois, devant la difficulté à maîtriser l'instabilité, par manque de temps, ce travail n'a pas été poursuivi.

À la fin du 19ième siècle, les physiciens français Félix Savart et belge Joseph Plateau observe la dislocation d'une colonne de liquide en gouttes sous l'effet de perturbation. Joseph Plateau calcule qu'une colonne de liquide de rayon r devient instable si elle est exposée à une perturbation de rayon si la longueur d'onde λ de cette dernière excède la circonférence de la colonne. Elle se brise alors en une suite de gouttes tout en respectant le principe de conservation du volume dans le but de réduire son énergie totale. Ce travail sera par la suite continué par Lord Rayleigh.

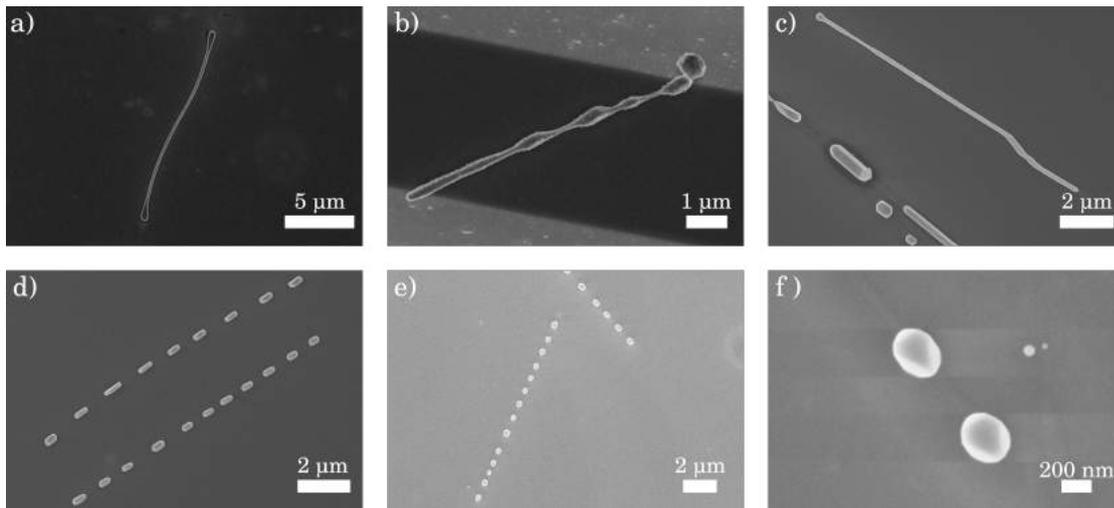


FIGURE A.10 – a) Nanofil présentant une variation d'épaisseur à ces extrémités. b) Nanofil présentant des variations sur la longueur. c) Nanofil encore intact à côté d'un nanofil scindé. d) Nanofils brisés en nanobatonnets e) Nanofil brisé en nanosphères. f) Zoom sur deux nanosphères obtenues à l'aide d'instabilité SPR sur un nanofil.

Par la suite, un travail similaire a été réalisé pour un cylindre solide en s'intéressant au transport de masse par diffusion atomique de surface [97]. Nichols et Mullins ont ainsi mis en évidence la possibilité pour un cylindre solide de se disloquer en une chaîne de sphères. Ce phénomène ne s'observe toutefois pas à l'échelle macroscopique à cause de limitations dues à l'énergie cinétique requise. Cette instabilité peut néanmoins être observée à l'échelle nanométrique sur des nanofils. La théorie développée par Nichols et Mullins se base sur une perturbation sinusoïdale impliquant une variation du rayon R d'un nanofil

$$R = R_0 + \delta_r \sin(2\pi/\lambda) \quad (\text{A.15})$$

où R_0 est le rayon initial du fil et δ_r et λ sont respectivement l'amplitude et la longueur d'onde de la perturbation. Si cette dernière grandeur est supérieure à la circonférence du fil, alors celui-ci devient instable morphologiquement. La longueur d'onde λ_m pour laquelle on trouve le maximum de perturbation peut être calculée $\lambda_m = 8.89R_0$. Cette grandeur est celle que l'on attend entre deux sphères successives.

Les images prises au MEB et introduites sur la figure A.10 présentent les différentes étapes de transformations que subit le nanofil. Comme le montre les images a) et b), on peut tout d'abord observer une fluctuation du diamètre du fil le long de son axe. Celui-ci va ensuite se briser en

batônnetts, figures A.10 c) et d). S'il est petit, le batônnet va se sphériser pour donner forme à une nanosphère. S'il est plus grand, une étape intermédiaire d'ovalisation peut également être observé. Enfin, il est possible d'obtenir des chaînes de nanosphères, images e) et f). Ce processus est tout de fois lent. [98] indique que pour des nanofils d'or de 50 nm de diamètre chauffés à 500 °C, les variations de diamètre peuvent être observées au bout de soixante minutes mais qu'il est nécessaire près de quatre heures pour obtenir des chaînes de nanosphères. La théorie de Nichols et Mullins prédit en effet que le temps nécessaire pour la dislocation est proportionnel à R_0^4 . Augmenter la température permet d'augmenter la vitesse du processus mais le point de fusion du matériau composant le nanofil limite l'augmentation possible. La présence d'impureté à la surface ou le contact avec le substrat peuvent également amplifier ou annuler cette insabilité. Des résultats similaires ont été obtenus dans le vide que dans un environnement sous diazote.

EDS

La figure A.11 b), une image prise au MEB d'un échantillon chauffé à 900 °C, mets en évidence la présence d'une trace entre les nanosphères. On note également que la nanoparticule suivante selon la chaîne a été retirée et qu'elle laisse une empreinte sur le silicium dont la forme tend vers le triangle. Il semble donc que l'instabilité puisse conduire à des zones de contact entre particule et substrat difficile à considérer dans le cadre de l'utilisation de ces particules comme sources acoustiques. Une analyse élémentaire par spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie est toutefois réalisée afin d'étudier cette trace.

Spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie

La Spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie permet de réaliser une analyse élémentaire d'un échantillon en mesurant les rayons X qu'il émet. Ce dernier est auparavant excité à l'aide d'un rayon de particules chargées. Dans notre cas, le faisceau utilisé est le faisceau d'électrons du MEB de l'INSP en salle blanche. Un capteur de rayons X permet de mesurer l'énergie des photons émis par l'échantillon.

Lorsqu'un faisceau de particules chargées est focalisé sur un échantillon au repos, un électron

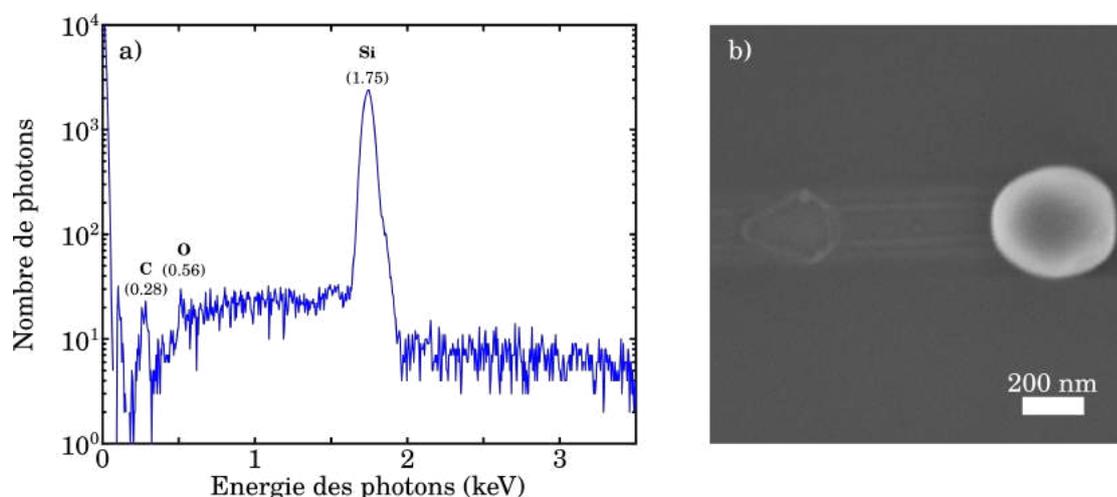


FIGURE A.11 – a) Spectre d'énergie mesuré sur le substrat de silicium loin de toutes les particules d'or. b) Image obtenue au MEB d'une nanoparticule issue d'une chaîne. On observe la présence d'une trace à l'endroit où se situait initialement le nanofil. La nanosphère suivante dans la chaîne a été décrochée laissant apparaître une empreinte triangulaire sur le substrat.

à l'état fondamental peut être excité voir être éjecté laissant un trou. Un électron d'un niveau d'énergie supérieur peut alors se combiner avec ce trou en relâchant sous la forme d'un photon X la différence d'énergie entre l'électron et le trou. L'énergie du photon est donc équivalente à la différence d'énergie entre deux bandes de l'atome excité. Chaque élément présentant une structure unique, en mesurant l'énergie du photon X il est possible d'identifier l'atome.

Marque sur le substrat

La figure A.11 a) présente le spectre obtenu sur le substrat de silicium loin de la chaîne de sphères. Celui-ci présente un important pic large à 1.75 keV. Ce pic correspond au pic principal du silicium. De petits pics peuvent également être identifiés à 0.28 et 0.56 keV et associés respectivement au carbone et à l'oxygène.

Sur la figure A.12 a), le spectre obtenu sur la marque laissée entre deux particules est introduit et comparé à celui des chaînes de nanosphères. On retrouve sur ce second spectre les pics à 0.28 et 1.75 keV avec les mêmes largeurs et intensités que sur le premier spectre. Toutefois, le

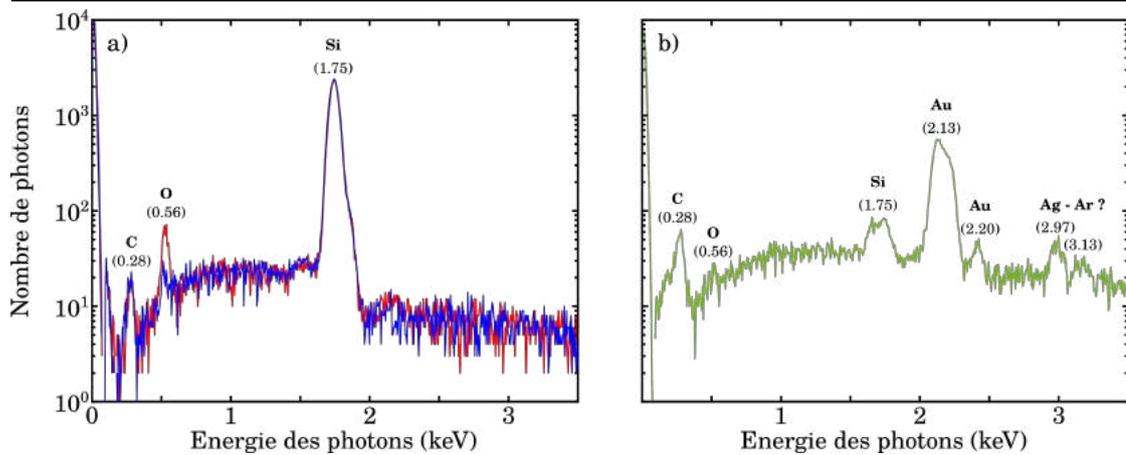


FIGURE A.12 – a) Spectres d'énergie mesurés sur le substrat de silicium au niveau de la trace observé entre deux nanoparticules d'or et loin de toute structure. c) Spectre d'énergie mesuré sur une nanoparticule d'or.

pic correspondant à l'oxygène à 0.56 keV présente une intensité plus importante. L'échantillon étant chauffé sous atmosphère d'argon et l'augmentation d'oxygène étant localisé à l'emplacement initial du nanofil, il est peu probable qu'il s'agisse d'une oxydation du substrat de silicium due à l'augmentation de température. Ce surplus d'oxygène est probablement du à la solution contenant les nanofils. En déposant les nanofils sur le substrat et en laissant sécher l'échantillon, un dépôt s'est formé sous le nanofil. Ce type de dépôt pourrait avoir une influence sur le contact entre le nanofil et son substrat et nécessiterait une étude plus poussée avant d'utiliser des nanofils comme source acoustique.

Capture d'Argon

Une mesure supplémentaire est réalisée sur une particule d'or et le spectre obtenu est représenté sur la figure A.12 b). Du fait de la longueur de pénétration du faisceau d'électron dans l'or, même lorsque le faisceau d'électron est focalisé sur une nanoparticule, on peut observer sur le spectre le pic à 1.75 eV du au silicium. Un second pic d'intensité importante est visible à 2.13 keV et correspond à l'or. Ce pic correspond en fait à deux pics superposés comme le mets en évidence le tableau A.3 recensant les énergies des photons pour les différentes transitions pour les différents éléments. On retrouve aussi à 0.28 eV le pic correspondant au carbone ainsi que celui à 0.56 eV du à l'oxygène. Enfin, deux pics sont identifiables à 2.97 et 3.13 eV. Comme le montre le tableau A.3, ces pics pourraient être associés soit à l'argent soit à l'argon. Les nano-

files étudiés sont censées être composés uniquement d'or. La présence d'argent constituerai donc une pollution de l'échantillon. La présence d'argon signifierai quant à lui que ce gaz, présent dans le four au moment de la dislocation du fil, est pu être piégé dans l'or lors de la transformation morphologique.

			$K\alpha_1$	$K\beta_1$	$L\alpha_1$	$L\beta_1$	$M\alpha_1$	$M\beta_1$
6	Carbon	C	0.277					
8	Oxygen	O	0.525					
14	Silicon	Si	1.740	1.837				
18	Argon	Ar	2.958	3.190				
47	Silver	Ag	22.163	24.941	2.983	3.150		
79	Gold	Au	68.806	77.982	9.713	11.443	2.123	2.203

TABLE A.3 – Énergies des photons-x émis pour différents atomes

Conclusion sur l'instabilité SPR

La motivation initial quand à l'étude de l'instabilité de Savart-Plateau-Rayleigh était la possible utilisation des nanosphères obtenues comme sources acoustiques nanométrique. L'avantage de ce processus de fabrication par rapport à l'achat ou la synthétisation de nanosphères par d'autres processus résidait dans l'obtention d'une chaîne. Si l'on considère chaque sphère comme une source possible, la structure obtenue présente une géométrie similaire à celles de capteurs multi-éléments. Ces derniers présentent en effet n (généralement 16, 32 ou encore 64 afin de profiter au maximum des possibilités offertes par l'électronique utilisé) cristaux piézo-électriques pouvant chacun d'entre eux être utilisé comme source et/ou récepteurs et sont couramment utilisés dans le cadre d'études d'évaluation et de contrôle non-destructifs. n mesures sont réalisées. Pour chacune d'entre elle, un cristal est utilisé pour générer des ondes acoustiques dans la structure étudiée et l'ensemble des cristaux sont utilisés pour mesurer le champ acoustique. Un possible défaut réfléchira les ondes acoustiques et le champ réfléchis pourra alors être capter par une partie ou l'ensemble des cristaux. Il pourra alors être caractérisé et localisé en étudiant notamment la différence de temps de vol et le retard avec lequel le champ réfléchis est capté par les différents cristaux.

Cette possible utilisation des chaîne de nanosphères obtenues à l'aide de l'instabilité a été abandonnée pour différentes raisons. Tout d'abord, les nanofils utilisés présentant un rayon important, le temps requis pour obtenir la chaîne de sphère est important. Ce temps est d'autant

plus long si l'on souhaite obtenir des sphères et non des particules "sphéroïdes". Le contact entre les particules et le substrat est également une source d'interrogations. Enfin, la capture d'Argon par l'Or pourrait signifier la présence d'une structuration interne de la sphère ou simplement d'impureté ce qui diminuerait le facteur de qualité des modes de vibrations des sphères.

Annexe B

Propriétés mécaniques

	ρ (kg/m ³)	E (GPa)	ν	$c_L \times 10^3$ (m s ⁻¹)	$c_T \times 10^3$ (m s ⁻¹)	$Z_{ac} \times 10^6$ (kg/m ² s ¹)
Au	19300	78	0.43	3.39	1.19	65.5
Si _[100]	2300	130	0.28	8.50	4.70	19.5
Cr	7100	265	0.21	6.48	3.93	46.0
Ag	10500	84	0.37	3.78	1.72	39.5
Bi	9780	32	0.33	2.20	1.11	21.6
Cu	8700	110	0.35	4.50	2.16	39.2
Al	2700	71	0.31	6.04	3.17	16.3

Annexe C

Propriétés optiques

Indice de réfraction, coefficient d'absorption et longueur de pénétration

Matériau	Symbole	$\bar{n} = n + kj$	α (m ⁻¹)	δ_p (nm)
Aluminium [99]	Al	2.77 + 8.36j	1.31e8	7.62
Argent [100]	Ag	0.088 + 5.25j	8.25e8	12.12
Or [101]	Au	0.10 + 5.22j	8.21 × 10 ⁸	12.19
Silicium [102]	Si	3.67 + 5.27 × 10 ⁻³ j	8.27 × 10 ⁴	12.09 × 10 ³

TABLE C.1 – Indice de réfraction, coefficient d'absorption et longueur de pénétration à $\lambda = 800$ nm

Matériau	Symbole	$\bar{n} = n + kj$	α (m ⁻¹)	δ_p (nm)
Aluminium [99]	Al	0.49 + 4.83j	1.52e8	6.58
Argent [100]	Ag	0.064 + 1.76j	5.52e7	18.12
Or [101]	Au	1.67 + 1.97j	6.20 × 10 ⁷	16.13
Silicium [102]	Si	5.62 + 3.27 × 10 ⁻² j	1.03 × 10 ⁷	97.56

TABLE C.2 – Indice de réfraction, coefficient d'absorption et longueur de pénétration à $\lambda = 400$ nm

Coefficient de Réflexion

	Au	Si	Cr
Au	0	-0.54	-0.17
Si	0.54	0	0.40
Cr	0.17	-0.40	0

Coefficient de Transmission

	Au	Si	Cr
Au	1	0.46	0.82
Si	1.54	1	1.40
Cr	1.17	0.60	1

Bibliographie

- [1] Richard Feynman. There's plenty of room at the bottom. California Institute of Technology, Engineering and Science magazine, 1960.
- [2] K. Eric Drexler. Engines of creation. Anchor books, 1986.
- [3] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel. Surface Studies by Scanning Tunneling Microscopy. Physical Review Letters, 49(1) :57–61, July 1982. Publisher : American Physical Society.
- [4] G. Binnig, C. F. Quate, and Ch. Gerber. Atomic Force Microscope. Physical Review Letters, 56(9) :930–933, March 1986. Publisher : American Physical Society.
- [5] Traceable measurement of mechanical properties of nano-objects. Technical report, EUR-AMET, 2011.
- [6] Willoughby Smith. Effect of Light on Selenium During the Passage of An Electric Current. Nature, 7(173) :303–303, February 1873. Number : 173 Publisher : Nature Publishing Group.
- [7] A. Bell. On the production and reproduction of sound by light. American Journal of Science, 20(118) :305–324, October 1880.
- [8] J. P. Joule. XVII. On the effects of magnetism upon the dimensions of iron and steel bars. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 30(199) :76–87, February 1847. Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://doi.org/10.1080/14786444708645656>.
- [9] W. C. Röntgen. On tones produced by the intermittent irradiation of a gas. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 11(68) :308–311, April 1881. Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://doi.org/10.1080/14786448108627021>.

- [10] John Tyndall. Action of an Intermittent Beam of Radiant Heat Upon Gaseous Matter. Science, 2(37) :110–114, 1881. Publisher : American Association for the Advancement of Science.
- [11] T. H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. Nature, 187(4736) :493–494, August 1960. Number : 4736 Publisher : Nature Publishing Group.
- [12] F. J. McClung and R. W. Hellwarth. Giant Optical Pulsations from Ruby. Journal of Applied Physics, 33(3) :828–829, March 1962. Publisher : American Institute of Physics.
- [13] R. M. White. An Elastic Wave Method for the Measurement of Pulse-Power Density. IRE Transactions on Instrumentation, I-11(3 and 4) :294–298, December 1962. Conference Name : IRE Transactions on Instrumentation.
- [14] R. M. White. Elastic Wave Generation by Electron Bombardment or Electromagnetic Wave Absorption. Journal of Applied Physics, 34(7) :2123–2124, July 1963. Publisher : American Institute of Physics.
- [15] R. M. White. Generation of Elastic Waves by Transient Surface Heating. Journal of Applied Physics, 34(12) :3559–3567, December 1963. Publisher : American Institute of Physics.
- [16] G A Askar'Yan, A M Prokhorov, and G P Shipulo. The effects of a laser beam in a liquid. Soviet Physics—JETP, 17(6) :1463–1465, 1963.
- [17] C. B. Scruby, R. J. Dewhurst, D. A. Hutchins, and S. B. Palmer. Quantitative studies of thermally generated elastic waves in laser-irradiated metals. Journal of Applied Physics, 51(12) :6210–6216, December 1980. Publisher : American Institute of Physics.
- [18] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, and J. J. Hauser. Coherent Phonon Generation and Detection by Picosecond Light Pulses. Physical Review Letters, 53(10) :989–992, September 1984. Publisher : American Physical Society.
- [19] Floyd A. Firestone. The Supersonic Reflectoscope, an Instrument for Inspecting the Interior of Solid Parts by Means of Sound Waves. The Journal of the Acoustical Society of America, 17(3) :287–299, January 1946. Publisher : Acoustical Society of America.
- [20] Rafael Fuentes-Domínguez, Fernando Pérez-Cota, Shakila Naznin, Richard J. Smith, and Matt Clark. Super-resolution imaging using nano-bells. Scientific Reports, 8(1) :16373, December 2018.
- [21] Christophe Voisin, Natalia Del Fatti, Dimitris Christofilos, and Fabrice Vallée. Ultrafast Electron Dynamics and Optical Nonlinearities in Metal Nanoparticles. The Journal of Physical Chemistry B, 105(12) :2264–2280, March 2001. Publisher : American Chemical Society.

- [22] Gregory V. Hartland. Measurements of the material properties of metal nanoparticles by time-resolved spectroscopy. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 6(23) :5263–5274, 2004. Publisher : Royal Society of Chemistry.
- [23] Meindert A. van Dijk, Markus Lippitz, and Michel Orrit. Far-Field Optical Microscopy of Single Metal Nanoparticles. *Accounts of Chemical Research*, 38(7) :594–601, July 2005. Publisher : American Chemical Society.
- [24] Todd A. Major, Aurélien Crut, Bo Gao, Shun Shang Lo, Natalia Del Fatti, Fabrice Vallée, and Gregory V. Hartland. Damping of the acoustic vibrations of a suspended gold nanowire in air and water environments. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 15(12) :4169–4176, February 2013. Publisher : The Royal Society of Chemistry.
- [25] Pierre-Adrien Mante, Laurent Belliard, and Bernard Perrin. Acoustic phonons in nanowires probed by ultrafast pump-probe spectroscopy. *Nanophotonics*, 7(11) :1759–1780, November 2018. Publisher : De Gruyter Section : Nanophotonics.
- [26] Tuphan Devkota, Debadri Chakraborty, Kuai Yu, Gary Beane, John E. Sader, and Gregory V. Hartland. On the measurement of relaxation times of acoustic vibrations in metal nanowires. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 20(26) :17687–17693, 2018. Publisher : Royal Society of Chemistry.
- [27] R. Delalande, L. Burr, E. Charron, M. Jouini, M. E. Toimil-Molares, and L. Belliard. Vibrational response of Au-Ag alloy and porous Au single nanowires probed by ultrafast pump-probe spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 115(8) :083103, August 2019.
- [28] Yannick Guillet, Clément Rossignol, Bertrand Audoin, Gaëtan Calbris, and Serge Ravaine. Optoacoustic response of a single submicronic gold particle revealed by the picosecond ultrasonics technique. *Applied Physics Letters*, 95(6) :061909, August 2009. Publisher : American Institute of Physics.
- [29] Y. Guillet, C. Rossignol, B. Audoin, G. Calbris, and S. Ravaine. Photo-acoustic response of a single 430 nm gold particle : Semi-analytical model and picosecond ultrasonics measurements. *Journal of Physics : Conference Series*, 214 :012046, March 2010. Publisher : IOP Publishing.
- [30] Yannick Guillet, Allaoua Abbas, Serge Ravaine, and Bertrand Audoin. Ultrafast microscopy of the vibrational landscape of a single nanoparticle. *Applied Physics Letters*, 114(9) :091904, March 2019. Publisher : American Institute of Physics.
- [31] A. Amziane, L. Belliard, F. Decremps, and B. Perrin. Ultrafast acoustic resonance spectroscopy of gold nanostructures : Towards a generation of tunable transverse waves. *Physical Review B*, 83(1) :014102, January 2011. Publisher : American Physical Society.

- [32] Fabio Medeghini, Aurélien Crut, Marco Gandolfi, Francesco Rossella, Paolo Maioli, Fabrice Vallée, Francesco Banfi, and Natalia Del Fatti. Controlling the Quality Factor of a Single Acoustic Nanoresonator by Tuning its Morphology. *Nano Letters*, 18(8) :5159–5166, August 2018. Publisher : American Chemical Society.
- [33] Li Wang, Shohei Takeda, Ryota Sato, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, and Naoto Tamai. Morphology-Dependent Coherent Acoustic Phonon Vibrations and Phonon Beat of Au Nanopolyhedrons. *ACS Omega*, 6(8) :5485–5489, March 2021. Publisher : American Chemical Society.
- [34] Kuai Yu, Todd A. Major, Debadi Chakraborty, Mary Sajini Devadas, John E. Sader, and Gregory V. Hartland. Compressible viscoelastic liquid effects generated by the breathing modes of isolated metal nanowires. *Nano letters*, 15(6) :3964–3970, 2015. Publisher : ACS Publications.
- [35] Cyril Jean, Laurent Belliard, Thomas W. Cornelius, Olivier Thomas, Yan Pennec, Marco Cassinelli, Maria Eugenia Toimil-Molares, and Bernard Perrin. Spatiotemporal Imaging of the Acoustic Field Emitted by a Single Copper Nanowire. *Nano Letters*, 16(10) :6592–6598, October 2016. Publisher : American Chemical Society.
- [36] Yuta Imade, Vitalyi E. Gusev, Osamu Matsuda, Motonobu Tomoda, Paul H. Otsuka, and Oliver B. Wright. Gigahertz Optomechanical Photon–Phonon Transduction between Nanostructure Lines. *Nano Letters*, July 2021. Publisher : American Chemical Society.
- [37] Justin C. Johnson, Haoquan Yan, Richard D. Schaller, Louis H. Haber, Richard J. Saykally, and Peidong Yang. Single Nanowire Lasers. *The Journal of Physical Chemistry B*, 105(46) :11387–11390, November 2001. Publisher : American Chemical Society.
- [38] Michael H. Huang, Samuel Mao, Henning Feick, Haoquan Yan, Yiying Wu, Hannes Kind, Eicke Weber, Richard Russo, and Peidong Yang. Room-Temperature Ultraviolet Nanowire Nanolasers. *Science*, 292(5523) :1897–1899, June 2001. Publisher : American Association for the Advancement of Science Section : Report.
- [39] Samuel W. Eaton, Anthony Fu, Andrew B. Wong, Cun-Zheng Ning, and Peidong Yang. Semiconductor nanowire lasers. *Nature Reviews Materials*, 1(6) :16028, June 2016.
- [40] Caofeng Pan, Lin Dong, Guang Zhu, Simiao Niu, Ruomeng Yu, Qing Yang, Ying Liu, and Zhong Lin Wang. High-resolution electroluminescent imaging of pressure distribution using a piezoelectric nanowire LED array. *Nature Photonics*, 7(9) :752–758, September 2013. Number : 9 Publisher : Nature Publishing Group.
- [41] Dan Dalacu, Philip J. Poole, and Robin L. Williams. Nanowire-based sources of non-classical light. *Nanotechnology*, 30(23) :232001, March 2019. Publisher : IOP Publishing.

- [42] L. Tsakalakos, J. Balch, J. Fronheiser, B. A. Korevaar, O. Sulima, and J. Rand. Silicon nanowire solar cells. *Applied Physics Letters*, 91(23) :233117, December 2007. Publisher : American Institute of Physics.
- [43] Bozhi Tian, Thomas J. Kempa, and Charles M. Lieber. Single nanowire photovoltaics. *Chemical Society Reviews*, 38(1) :16–24, 2009. Publisher : Royal Society of Chemistry.
- [44] Erik C. Garnett, Mark L. Brongersma, Yi Cui, and Michael D. McGehee. Nanowire Solar Cells. *Annual Review of Materials Research*, 41(1) :269–295, 2011. _eprint : <https://doi.org/10.1146/annurev-matsci-062910-100434>.
- [45] Vincent Consonni, Joe Briscoe, Erki Kärber, Xuan Li, and Thomas Cossuet. ZnO nanowires for solar cells : a comprehensive review. *Nanotechnology*, 30(36) :362001, June 2019. Publisher : IOP Publishing.
- [46] Mihir Kumar Sahoo and Paresh Kale. Integration of silicon nanowires in solar cell structure for efficiency enhancement : A review. *Journal of Materiomics*, 5(1) :34–48, March 2019.
- [47] Josh Goldberger, Donald J. Sirbully, Matt Law, and Peidong Yang. ZnO Nanowire Transistors. *The Journal of Physical Chemistry B*, 109(1) :9–14, January 2005. Publisher : American Chemical Society.
- [48] Kumaran Ramanathan, Mangesh A. Bangar, Minhee Yun, Wilfred Chen, Nosang V. Myung, and Ashok Mulchandani. Bioaffinity Sensing Using Biologically Functionalized Conducting-Polymer Nanowire. *Journal of the American Chemical Society*, 127(2) :496–497, January 2005. Publisher : American Chemical Society.
- [49] Yashuang Lu, Minghui Yang, Fengli Qu, Guoli Shen, and Ruqin Yu. Enzyme-functionalized gold nanowires for the fabrication of biosensors. *Bioelectrochemistry*, 71(2) :211–216, November 2007.
- [50] K Dawson and A O’Riordan. Towards Nanowire (Bio) Sensors. *Journal of Physics : Conference Series*, 307 :012004, August 2011.
- [51] Peng Peng, Hong Huang, Anming Hu, Adrian P. Gerlich, and Y. Norman Zhou. Functionalization of silver nanowire surfaces with copper oxide for surface-enhanced Raman spectroscopic bio-sensing. *Journal of Materials Chemistry*, 22(31) :15495–15499, 2012. Publisher : Royal Society of Chemistry.
- [52] Eduardo Gil-Santos, Daniel Ramos, Javier Martínez, Marta Fernández-Regúlez, Ricardo García, Álvaro San Paulo, Montserrat Calleja, and Javier Tamayo. Nanomechanical mass sensing and stiffness spectrometry based on two-dimensional vibrations of resonant nanowires. *Nature Nanotechnology*, 5(9) :641–645, September 2010. Number : 9 Publisher : Nature Publishing Group.

- [53] S. Krawczyk, M. Kozłowski, H. Wronka, and E. Czerwosz. CuO nanowires sensor of gases. In Photonics Applications in Astronomy, Communications, Industry, and High-Energy Physics Experiments 2018, volume 10808, page 108084K. International Society for Optics and Photonics, October 2018.
- [54] Charles M. Lieber and Zhong Lin Wang. Functional Nanowires. MRS Bulletin, 32(2) :99–108, February 2007. Publisher : Cambridge University Press.
- [55] Andrei Kolmakov, Xihong Chen, and Martin Moskovits. Functionalizing Nanowires with Catalytic Nanoparticles for Gas Sensing Application. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 8(1) :111–121, January 2008.
- [56] Lorenzo Leandro, Jacob Hastrup, Rodion Reznik, George Cirlin, and Nika Akopian. Resonant excitation of nanowire quantum dots. npj Quantum Information, 6(1) :1–5, December 2020. Number : 1 Publisher : Nature Publishing Group.
- [57] Ravi Agrawal, Bei Peng, Eleftherios E. Gdoutos, and Horacio D. Espinosa. Elasticity Size Effects in ZnO Nanowires-A Combined Experimental-Computational Approach. Nano Letters, 8(11) :3668–3674, November 2008. Publisher : American Chemical Society.
- [58] Jinhui Song, Xudong Wang, Elisa Riedo, and Zhong L. Wang. Elastic Property of Vertically Aligned Nanowires. Nano Letters, 5(10) :1954–1958, October 2005. Publisher : American Chemical Society.
- [59] Young-Soo Sohn, Jinsung Park, Gwonchan Yoon, Jiseok Song, Sang-Won Jee, Jung-Ho Lee, Sungsoo Na, Taeyun Kwon, and Kilho Eom. Mechanical Properties of Silicon Nanowires. Nanoscale Research Letters, 5(1) :211, October 2009.
- [60] Jiankuai Diao, Ken Gall, and Martin L. Dunn. Atomistic simulation of the structure and elastic properties of gold nanowires. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 52(9) :1935–1962, September 2004.
- [61] Cyril Jean, Laurent Belliard, Thomas W. Cornelius, Olivier Thomas, Maria Eugenia Toimil-Molares, Marco Cassinelli, Loïc Becerra, and Bernard Perrin. Direct Observation of Gigahertz Coherent Guided Acoustic Phonons in Free-Standing Single Copper Nanowires. The Journal of Physical Chemistry Letters, 5(23) :4100–4104, December 2014. Publisher : American Chemical Society.
- [62] Laurent Belliard, Thomas W. Cornelius, Bernard Perrin, Nazim Kacemi, Loïc Becerra, Olivier Thomas, Maria Eugenia Toimil-Molares, and Marco Cassinelli. Vibrational response of free standing single copper nanowire through transient reflectivity microscopy. Journal of applied physics, 114(19) :193509, 2013. Publisher : American Institute of Physics.

- [63] Todd A. Major, Shun Shang Lo, Kuai Yu, and Gregory V. Hartland. Time-resolved studies of the acoustic vibrational modes of metal and semiconductor nano-objects. The journal of physical chemistry letters, 5(5) :866–874, 2014. Publisher : ACS Publications.
- [64] Sara Fernández, Cyril Jean, Eric Charron, Pascal Gentile, Marie-Ingrid Richard, Olivier Thomas, Bernard Perrin, and Laurent Belliard. In depth characterization of Ge-Si core-shell nanowires using X-ray coherent diffraction and time resolved pump-probe spectroscopy. Journal of Applied Physics, 126(20) :204304, November 2019. Publisher : American Institute of Physics.
- [65] Aurélien Crut, Paolo Maioli, Natalia Del Fatti, and Fabrice Vallée. Optical absorption and scattering spectroscopies of single nano-objects. Chemical Society Reviews, 43(11) :3921–3956, May 2014. Publisher : The Royal Society of Chemistry.
- [66] S. Link, Z. L. Wang, and M. A. El-Sayed. Alloy Formation of Gold-Silver Nanoparticles and the Dependence of the Plasmon Absorption on Their Composition. The Journal of Physical Chemistry B, 103(18) :3529–3533, May 1999. Publisher : American Chemical Society.
- [67] Renkun Chen, Jaeho Lee, Woochul Lee, and Deyu Li. Thermoelectrics of Nanowires. Chemical Reviews, 119(15) :9260–9302, August 2019. Publisher : American Chemical Society.
- [68] Evgeny Glushkov, Natalia Glushkova, and Olga Boyko. An analytically based computer model for evaluating effective elastic properties of nitride nanowire-polymer compositions using laser-generated surface acoustic waves. Journal of Physics : Conference Series, 1092 :012042, September 2018. Publisher : IOP Publishing.
- [69] Evgeny Glushkov, Natalia Glushkova, Bernard Bonello, Lu Lu, Eric Charron, Noëlle Gogneau, François Julien, Maria Tchernycheva, and Olga Boyko. Evaluation of Effective Elastic Properties of Nitride NWs/Polymer Composite Materials Using Laser-Generated Surface Acoustic Waves. Applied Sciences, 8(11) :2319, November 2018. Number : 11 Publisher : Multidisciplinary Digital Publishing Institute.
- [70] Guang-Yuan Su, Ying-Xu Li, Xiang-Yu Li, and Ralf Müller. Free and forced vibrations of nanowires on elastic substrates. International Journal of Mechanical Sciences, 138-139 :62–73, April 2018.
- [71] Yannick Guillet, Bertrand Audoin, Mélanie Ferrié, and Serge Ravaine. All-optical ultrafast spectroscopy of a single nanoparticle-substrate contact. Physical Review B, 86(3) :035456, July 2012. Publisher : American Physical Society.

- [72] Feng Xu, Yannick Guillet, Serge Ravaine, and Bertrand Audoin. All-optical in-depth detection of the acoustic wave emitted by a single gold nanorod. Physical Review B, 97(16) :165412, April 2018. Publisher : American Physical Society.
- [73] Xuesheng Chen, Theodosia Stratoudaki, Steve D. Sharples, and Matt Clark. A laser-activated MEMS transducer for efficient generation of narrowband longitudinal ultrasonic waves. IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, 58(2) :470–476, February 2011. Conference Name : IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control.
- [74] Wei-Shun Chang, Fangfang Wen, Debadi Chakraborty, Man-Nung Su, Yue Zhang, Bo Shuang, Peter Nordlander, John E. Sader, Naomi J. Halas, and Stephan Link. Tuning the acoustic frequency of a gold nanodisk through its adhesion layer. Nature Communications, 6(1) :7022, May 2015. Number : 1 Publisher : Nature Publishing Group.
- [75] Chongyue Yi, Man-Nung Su, Pratiksha D. Dongare, Debadi Chakraborty, Yi-Yu Cai, David M. Marolf, Rachael N. Kress, Behnaz Ostovar, Lawrence J. Tauzin, Fangfang Wen, Wei-Shun Chang, Matthew R. Jones, John E. Sader, Naomi J. Halas, and Stephan Link. Polycrystallinity of Lithographically Fabricated Plasmonic Nanostructures Dominates Their Acoustic Vibrational Damping. Nano Letters, 18(6) :3494–3501, June 2018. Publisher : American Chemical Society.
- [76] A. Manjavacas and F. J. García de Abajo. Tunable plasmons in atomically thin gold nanodisks. Nature Communications, 5(1) :3548, March 2014. Number : 1 Publisher : Nature Publishing Group.
- [77] Xiangxian Wang, Jiankai Zhu, Huan Tong, Xudong Yang, Xiaoxiong Wu, Zhiyuan Pang, Hua Yang, and Yunping Qi. A theoretical study of a plasmonic sensor comprising a gold nano-disk array on gold film with a SiO₂ spacer. Chinese Physics B, 28(4) :044201, April 2019. Publisher : IOP Publishing.
- [78] Lu Ding, Christophe Baker, Pascale Senellart, Aristide Lemaitre, Sara Ducci, Giuseppe Leo, and Ivan Favero. High Frequency GaAs Nano-Optomechanical Disk Resonator. Physical Review Letters, 105(26) :263903, December 2010. Publisher : American Physical Society.
- [79] C. Baker, C. Belacel, A. Andronico, P. Senellart, A. Lemaitre, E. Galopin, S. Ducci, G. Leo, and I. Favero. Critical optical coupling between a GaAs disk and a nanowaveguide suspended on the chip. Applied Physics Letters, 99(15) :151117, October 2011. Publisher : American Institute of Physics.
- [80] Christopher Baker, William Hease, Dac-Trung Nguyen, Alessio Andronico, Sara Ducci, Giuseppe Leo, and Ivan Favero. Photoelastic coupling in gallium arsenide optomechanical

- cal disk resonators. Optics Express, 22(12) :14072–14086, June 2014. Publisher : Optical Society of America.
- [81] E. Gil-Santos, C. Baker, D. T. Nguyen, W. Hease, C. Gomez, A. Lemaître, S. Ducci, G. Leo, and I. Favero. High-frequency nano-optomechanical disk resonators in liquids. Nature Nanotechnology, 10(9) :810–816, September 2015. Number : 9 Publisher : Nature Publishing Group.
- [82] Eduardo Gil-Santos, Jose J. Ruz, Oscar Malvar, Ivan Favero, Aristide Lemaître, Priscila M. Kosaka, Sergio García-López, Montserrat Calleja, and Javier Tamayo. Optomechanical detection of vibration modes of a single bacterium. Nature Nanotechnology, 15(6) :469–474, June 2020. Number : 6 Publisher : Nature Publishing Group.
- [83] Ronan Delalande, Jérémy Bonhomme, E. Dandeu, L. Becerra, and Laurent Belliard. Substrate influence on the vibrational response of gold nanoresonators : Towards tunable acoustic nanosources. Physical Review B, 105 :035422, January 2022.
- [84] Francesco Marinello, Daniele Passeri, and Enrico Savio, editors. Acoustic Scanning Probe Microscopy. NanoScience and Technology. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2013.
- [85] U. Rabe, E. Kester, and W. Arnold. Probing linear and non-linear tip–sample interaction forces by atomic force acoustic microscopy - Rabe - 1999 - Surface and Interface Analysis - Wiley Online Library. Surface and Interface Analysis, May 1999.
- [86] Gajendra S. Shekhawat and Vinayak P. Dravid. Nanoscale Imaging of Buried Structures via Scanning Near-Field Ultrasound Holography. Science, 310(5745) :89–92, October 2005. Publisher : American Association for the Advancement of Science.
- [87] Kazushi Yamanaka, Hisato Ogiso, and Oleg Kolosov. Ultrasonic force microscopy for nanometer resolution subsurface imaging. Applied Physics Letters, 64(2) :178–180, January 1994. Publisher : American Institute of Physics.
- [88] Hossein J. Sharahi, Mohsen Janmaleki, Laurene Tetard, Seonghwan Kim, Hamed Sadeghian, and Gerard J. Verbiest. Acoustic subsurface-atomic force microscopy : Three-dimensional imaging at the nanoscale. Journal of Applied Physics, 129(3) :030901, January 2021. Publisher : American Institute of Physics.
- [89] Chengfu Ma and Walter Arnold. Nanoscale ultrasonic subsurface imaging with atomic force microscopy. Journal of Applied Physics, 128(18) :180901, November 2020. Publisher : American Institute of Physics.
- [90] Adrien Pelat, François Gautier, Stephen C. Conlon, and Fabio Semperlotti. The acoustic black hole : A review of theory and applications. Journal of Sound and Vibration, 476 :115316, June 2020.

- [91] D. Passeri, A. Bettucci, M. Germano, M. Rossi, A. Alippi, S. Orlanducci, M. L. Terranova, and M. Ciavarella. Effect of tip geometry on local indentation modulus measurement via atomic force acoustic microscopy technique. Review of Scientific Instruments, 76(9) :093904, September 2005. Publisher : American Institute of Physics.
- [92] Malgorzata Kopycinska-Müller, Roy H. Geiss, and Donna C. Hurley. Contact mechanics and tip shape in AFM-based nanomechanical measurements. Ultramicroscopy, 106(6) :466–474, April 2006.
- [93] Jean Cyril. Confinement élastique au sein de nanostructures : le nanofil isolé, un système modèle. phdthesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, June 2017.
- [94] In-Kook Suh, H. Ohta, and Y. Waseda. High-temperature thermal expansion of six metallic elements measured by dilatation method and X-ray diffraction. Journal of Materials Science, 23(2) :757–760, February 1988.
- [95] S. M. Collard and R. B. McLellan. High-temperature elastic constants of gold single-crystals. Acta Metallurgica et Materialia, 39(12) :3143–3151, December 1991.
- [96] Stephen Martin Collard. High-Temperature Elastic Constants of Gold Single-Crystals. PhD thesis, Rice University, 1991.
- [97] F. A. Nichols and W. W. Mullins. Morphological Changes of a Surface of Revolution due to Capillarity-Induced Surface Diffusion. Journal of Applied Physics, 36(6) :1826–1835, June 1965.
- [98] S. Karim, M. E. Toimil-Molares, A. G. Balogh, W. Ensinger, T. W. Cornelius, E. U. Khan, and R. Neumann. Morphological evolution of Au nanowires controlled by Rayleigh instability. Nanotechnology, 17(24) :5954–5959, November 2006. Publisher : IOP Publishing.
- [99] Aleksandar D. Rakić. Algorithm for the determination of intrinsic optical constants of metal films : application to aluminum. Applied Optics, 34(22) :4755–4767, August 1995. Publisher : Optical Society of America.
- [100] Yajie Jiang, Supriya Pillai, and Martin A. Green. Realistic Silver Optical Constants for Plasmonics. Scientific Reports, 6(1) :30605, July 2016. Bandiera_abtest : a Cc_license_type : cc_by Cg_type : Nature Research Journals Number : 1 Primary_atype : Research Publisher : Nature Publishing Group Subject_term : Energy harvesting;Nanoparticles;Nanophotonics and plasmonics;Optical materials and structures Subject_term_id : energy-harvesting;nanoparticles;nanophotonics-and-plasmonics;optical-materials-and-structures.
- [101] Kevin M. McPeak, Sriharsha V. Jayanti, Stephan J. P. Kress, Stefan Meyer, Stelio Iotti, Aurelio Rossinelli, and David J. Norris. Plasmonic Films Can Easily Be Better : Rules and

- Recipes. ACS Photonics, 2(3) :326–333, March 2015. Publisher : American Chemical Society.
- [102] Carsten Schinke, P. Christian Peest, Jan Schmidt, Rolf Brendel, Karsten Bothe, Malte R. Vogt, Ingo Kröger, Stefan Winter, Alfred Schirmacher, Siew Lim, Hieu T. Nguyen, and Daniel MacDonald. Uncertainty analysis for the coefficient of band-to-band absorption of crystalline silicon. AIP Advances, 5(6) :067168, June 2015. Publisher : American Institute of Physics.

Résumé

Le développement de nouvelles techniques d'imagerie acoustique présentant une résolution nanométrique nécessite la mise en place de nouvelles stratégies pour la génération et la détection d'ondes. L'une des alternatives possibles, et le sujet central des travaux présentés, est l'utilisation de nanoparticules et nanostructures. Dans un premier temps, une technique d'évaluation des propriétés élastiques d'un nanofil unique est présentée. Elle est notamment utilisée pour suivre les propriétés de nanofils composés d'alliage Or-Argent pour différentes compositions. On s'intéresse ensuite à la réponse vibrationnelle d'une structure basée sur un disque d'or d'épaisseur nanométrique posé sur un cône de silicium. Le processus de fabrication permettant de moduler le contact entre le disque et son support, l'influence du substrat sur les modes du disque est étudié. L'émission d'ondes acoustiques par le disque dans le cône de silicium est également mise en évidence. Enfin, on s'intéresse à la propagation acoustique au sein de sondes AFM. La possibilité d'utiliser de telles structures pour le développement d'une technique de microscopie acoustique est mise en évidence au travers de l'étude des champs réfléchis et transmis lorsqu'une pointe est en contact avec un échantillon.

Mots clefs : Acoustique picoseconde, nanoparticules, Techniques Pompe-sonde, Elements finis, nanodisques, sondes AFM, Generation acoustique

Summary

In order to develop new acoustic imaging techniques with a nanometric resolution new ways to generate and detect acoustic waves have to be investigated. One promising strategy is to use nanoparticles. This is the subject of the work carry out during this PhD. Firstly, a new method allowing to perform the complete elastic evaluation of a single metallic nanowire is introduced. This technique is used for instance to monitor the elastic properties of nanowires made of Silver-Gold alloy with different proportions. The vibrationnal response of a nano-structure composed of a gold disk exhibiting a nanometric thickness and supported by a silicon micro-cone is then investigated. The fabrication process allowing to obtain structures with different contact area between the disk and its support, the impact of the silicon substrat on the vibration mode of the disk is studied. Acoustic emission with a frequency that can be monitored by a careful design of the structure is also highlighted. Finally, the acoustic propagation in a AFM probe is examined. Investigation of the reflected and transmitted waves when a probe is in contact with a sample show are performed and pave the way to the development of acoustic microscopy.

Keywords : Picosecond acoustic, nanoparticles, Pump-Probe technique, Finite Element Method, Nanodisk, AFM Probe, Acoustic Generation